HAL
archives-ouvertes.fr

Etude expérimentale de propriétés non-classique de la lumière; interférences à un seul photon

Philippe Grangier

▶ **To cite this version:**

Philippe Grangier. Etude expérimentale de propriétés non-classique de la lumière; interférences à un seul photon. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Université Paris Sud - Paris XI, 1986. Français. <tel-00009436>

HAL Id: tel-00009436

https://pastel.archives-ouvertes.fr/tel-00009436

Submitted on 9 Jun 2005

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.

ORSAY
n° d'ordre :

UNIVERSITE DE PARIS-SUD

CENTRE D'ORSAY

THESE

présentée

Pour obtenir

Le GRADE de DOCTEUR ES SCIENCES PHYSIQUES

PAR

Philippe GRANGIER

SUJET :

ETUDE EXPERIMENTALE DE PROPRIETES NON-CLASSIQUES DE LA LUMIERE ;
INTERFERENCES A UN SEUL PHOTON

soutenue le 15 Septembre 1986 devant la Commission d'examen

MM. C. IMBERT Président
A. ASPECT
J. BAUCHE
C. COHEN-TANNOUDJI
H. DOUCET
S. REYNAUD
R. J. GLAUBER

ABSTRACT

We have performed several experiments, involving a quantum description of the electromagnetic field as a crucial feature. As a matter of fact, the need for field quantization appears through the experimental evidence for a quantum state of the field very close to a Fock "single-photon" state.

The properties of such a state are evidenced, using two photomultipliers on both sides of a beamsplitter : the probability for a joint detection, during a counting gate of duration w, has to be much smaller than the product of the probabilities for single detections during the same time. This non-classical property of light ("anticorrelation") is demonstrated for a radiative cascade of Calcium, using fast counting techniques.

We have then carried out an interference experiment, with light for which we have demonstrated the anticorrelation property. Using a Mach-Zehnder interferometer adjusted close to zero path difference, we have observed a fringe visibility of 98 %, in perfect agreement with quantum mechanical predictions.

Eventually, we present two other experiments, illustrating single-photon interference effects : quantum beats in a continuously excited atomic cascade, and modulation in the time-resolved fluorescence light, following the photodissociation of Ca_2 molecules by a pulsed laser.

Le travail présenté dans ce mémoire a été effectué à l'Institut d'Optique Théorique et Appliquée à Orsay de 1982 à 1986. Je remercie Messieurs les Professeurs André Maréchal et Christian Imbert qui m'ont accueilli dans leur laboratoire. Monsieur le Professeur Christian Imbert a accepté d'assurer la direction scientifique de cette thèse, et aussi de présider ce jury ; je tiens à le remercier pour l'intérêt qu'il a porté à ce travail, et pour son soutien constant au cours de ces quatre années.

Je tiens à exprimer toute ma gratitude à Alain Aspect qui, après avoir dirigé mes premiers pas dans la recherche, m'a proposé ce sujet de thèse ; ses conseils et ses encouragements m'ont apporté une aide inappréciable.

Ma reconnaissance va également à ceux avec qui j'ai pu collaborer fructueusement, et dont certains font partie de ce jury : Monsieur le Professeur Jacques Bauche, Monsieur Serge Reynaud, mais aussi Messieurs Jean Dalibard et Antoine Heidmann, et Monsieur Jacques Vigué, que je remercie particulièrement pour les discussions que nous avons eues sur des points délicats de physique moléculaire.

Je remercie sincèrement Monsieur le Professeur Claude Cohen-Tannoudji, qui a accepté de faire partie de ce jury, et dont les conseils et l'enseignement m'ont été précieux.

Ce travail est consacré à un sujet dont R.J. Glauber a été l'initiateur au cours des années soixante ; je lui suis aujourd'hui reconnaissant de l'intérêt qu'il a manifesté pour les expériences décrites dans ce mémoire, en acceptant de faire partie de ce jury.

Je remercie Monsieur J. Doucet, qui a accepté de faire partie du jury.

L'enthousiasme et la compétence de Gérard Roger, qui a participé à l'élaboration du montage expérimental dès son origine, ont été un élément déterminant du succès des nombreuses expériences que nous avons réalisées ensemble.

Ce succès est aussi dû à la qualité remarquable des ateliers de mécanique et d'optique de l'Institut d'Optique ; je remercie en particulier Messieurs Streicher et Bouchot du bureau d'étude, et Monsieur Bonino de l'atelier du verre, pour leurs rôles dans la réalisation de l'interféromètre de Mach-Zehnder. Je remercie aussi amicalement nos électroniciens André Villing et Alain Aide.

../..

Enfin, que tous ceux qui ont participé à ce travail, en me donnant un conseil ou en me prêtant un appareil, et que je ne peux tous citer ici, soient assurés de ma reconnaissance.

Je ne saurai terminer sans remercier Mademoiselle Nelly Bonavent, qui a assuré la frappe de ce mémoire avec une grande gentillesse et une grande efficacité, et Madame Delmotte qui s'est chargée de la reproduction.

TABLE DES MATIERES

INTRODUCTION 1

CHAPITRE I - CORRELATIONS D'AMPLITUDE ET CORRELATIONS D'INTENSITE : OUTILS THEORIQUES 6

I-A - SIGNAUX DE PHOTODETECTION 7

I-A-1 - Théorie quantique de la photodétection 7
I-A-2 - Théorie semi-classique de la photodétection 14
I-A-3 - Phénomènes d'interférence 17
I-A-4 - Conflit entre les descriptions quantiques et semi-classiques du rayonnement 20
I-A-5 - Corrélations d'intensité et phénomènes d'interférence pour un état à un seul photon 25

I-B - CALCUL DES FONCTIONS DE CORRELATIONS DU CHAMP EMIS PAR UNE CASCADE RADIATIVE 31

I-B-1 - Calcul du champ diffusé 31
I-B-2 - Calcul des fonctions de corrélations 38
I-B-3 - Discussion : état du champ après la première détection. 44

I-C - CALCUL DES FONCTIONS DE CORRELATIONS DU CHAMP EMIS PAR LA SOURCE REELLE (MULTIATOMIQUE) 49

I-C-1 - Prise en compte des effets à plusieurs atomes..... 49
I-C-2 - Effets d'interférences 54
I-C-3 - Conclusions 56

CHAPITRE II - EFFET D'ANTICORRELATION DE PHOTONS DANS UNE CASCADE RADIATIVE 57

II-A - INEGALITES SEMI-CLASSIQUES 59

II-A-1 - Remarques préliminaires 59
II-A-2 - Principe de l'expérience 60
II-A-3 - Autre démonstration d'inégalités semi-classiques 63

II-B - L'EXPERIENCE D'ANTICORRELATION : CALCULS QUANTIQUES DES TAUX DE COMPTAGES ET DU RAPPORT SIGNAL/BRUIT ... 69

II-B-1 - Calcul du signal attendu 69
II-B-2 - Etude du rapport signal sur bruit 73
II-B-3 - Tests auxiliaires 78

II-C - L'EXPERIENCE D'ANTICORRELATION : REALISATION PRATIQUE 85

II-C-1 - La source 85
II-C-2 - L'électronique de comptage 90

II-D - RESULTATS EXPERIMENTAUX 98

II-D-1 - Procédure expérimentale 98
II-D-2 - Analyse des données 102
II-D-3 - Discussion - Comparaison avec d'autres expériences 109

CHAPITRE III - INTERFERENCES A UN SEUL PHOTON 115

III-A - L'INTERFEROMETRE 118

III-A-1 - Choix de l'interféromètre 118
III-A-2 - Etude quantitative 121
III-A-3 - Réalisation et contrôles 126

III-B - LA PROCEDURE EXPERIMENTALE 135

III-B-1 - Acquisition de données 135
III-B-2 - Contrôle de la stabilité de l'interféromètre 136
III-B-3 - Déroulement d'une expérience 137

III-C - TRAITEMENTS DES DONNEES ET RESULTATS 140

III-C-1 - Les mesures de contrastes 140
III-C-2 - Les contrôles auxiliaires 147

III-D - DISCUSSION ET CONCLUSION 153

III-D-1 - Discussion 153
III-D-2 - Conclusion 160

CHAPITRE IV - BATTEMENTS QUANTIQUES DANS UNE CASCADE RADIATIVE EXCITEE DE FACON CONTINUE 163

IV-A - DESCRIPTION DE L'EXPERIENCE 164

IV-A-1 - Configurations utilisées 164
IV-A-2 - Paramètres expérimentaux 171

IV-B - DISCUSSION 175

IV-B-1 - Battements quantiques et interférences 175
IV-B-2 - Discussion et conclusion 176

CHAPITRE V - EFFETS D'INTERFERENCES POUR DEUX ATOMES EMETTANT UN SEUL PHOTON 178

V-A - PRINCIPE ET DESCRIPTION DE L'EXPERIENCE 179

V-A-1 - Contexte expérimental et théorique 179
V-A-2 - Description de l'expérience 187

V-B - ANALYSE THEORIQUE ET INTERPRETATION QUANTITATIVE ... 193

V-B-1 - Modèle quantique 197
V-B-2 - Discussion du modèle et calculs de physique moléculaire. 214
V-B-3 - Discussion de l'expérience 222

CONCLUSION 240

ANNEXE I 242

ANNEXE II 249

REFERENCES 258

Introduction

L'étude théorique et expérimentale des signaux de photodétections dans le domaine optique au sens large (10^{13} à 10^{18} Hz) a été un domaine très actif de l'optique des vingt dernières années. Les travaux de Glauber[1] (milieu des années soixante) ont jeté les bases d'un formalisme permettant de relier les signaux observés par un photodétecteur (courant photoélectrique moyen, corrélations entre photodétections, statistiques de comptages) à des fonctions de corrélation du champ électromagnétique quantifié. Au cours des années soixante-dix, plusieurs mises en évidence expérimentales de propriétés spécifiquement quantiques de la lumière[2] ont établi définitivement la validité - et la nécessité - de ce formalisme, qui constitue actuellement la seule théorie rendant compte de tous les phénomènes observés dans le domaine optique.

La réalisation de telles expériences est en fait liée aux progrès énormes accomplis dans le contrôle des processus d'excitation des atomes, qui ont été rendus possibles grâce à l'utilisation des lasers. Parallèlement, les photodétecteurs rapides ont considérablement progressé : dans le domaine des très faibles flux lumineux ("comptage de photon") qui nous intéressera dans ce travail, l'emploi des technologies les plus récentes permet des mesures d'intervalles de temps avec une résolution meilleure que 0.1 ns.

Le présent travail est consacré à l'étude expérimentale de quelques situations conceptuellement très simples - et presque "exemplaires" - pour lesquelles la quantification du champ électromagnétique joue un rôle essentiel dans la description théorique et la compréhension physique des phénomènes observés.

Ce domaine de recherche est actuellement très actif ; en particulier, la préparation "d'états du champ à un seul photon" que nous présenterons dans ce travail a été étudiée récemment par d'autres groupes[3], au moyen de techniques reliées à l'optique non-linéaire cristalline plutôt qu'à la physique atomique. Par ailleurs, les propriétés statistiques du champ électromagnétique quantifié, et en particulier ses fluctuations ("bruit de photons") sont actuellement très étudiées. En particulier, les états du champ "comprimés" ou "squeezés" sont l'objet d'une activité intense[4].

../..

Les expériences que nous allons présenter sont reliées à un sujet qui a joué un rôle important dans le développement historique de la mécanique quantique : les "interférences à un seul photon".

L'originalité essentielle de nos expériences, par rapport aux nombreuses expériences d'interférences dites "à un seul photon" réalisées auparavant[52], est que nous utilisons pour définir ce qu'est un "photon unique" un critère qui repose sur des bases, à la fois expérimentales et théoriques, beaucoup mieux établies que par le passé. En effet, ce critère est explicitement associé à un comportement "corpusculaire" de la lumière, et ne peut être satisfait que dans le cadre de la théorie quantique de la photodétection[1]. Afin de préciser ce point, considérons le schéma de la figure 1 : un faisceau lumineux est divisé par une lame semi-transparente, et on mesure les probabilités de détection p_1, p_2 et p_c pendant une "porte de comptage" W ; les probabilités p_1 et p_2 correspondent aux détections simples par les photomultiplicateurs PM1 ou PM2, et p_c aux détections en coïncidences par PM1 et PM2 pendant W.

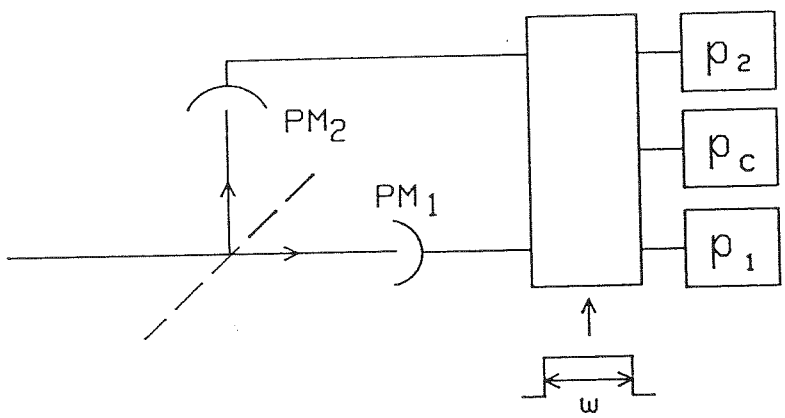


Figure 1

Si la lumière incidente sur la lame séparatrice, pendant chaque porte W, est dans un "état à un seul photon", on doit avoir $p_c = 0$, alors que p_1 et p_2 sont non nuls : en effet, un photon unique peut être détecté soit par PM1, soit par PM2, mais ne peut donner lieu à une coïncidence. Un tel comportement est évidemment de nature "corpusculaire", et entre en contradiction avec une description purement "ondulatoire" de la lumière. Nous montrerons au cours de ce travail qu'on peut donner à cette affirmation un caractère quantitatif : si la lumière est décrite par une onde électromagnétique classique (non quantifiée), alors on a nécessairement :

$$p_{c\ Class} \geq p_1\, p_2$$

Physiquement, cette inégalité résulte du fait qu'une onde classique est divisée par la lame séparatrice ; un tel modèle ne peut donc pas décrire un comportement corpusculaire d'alternative exclusive entre les deux voies. Au contraire, dans l'état "à un seul photon" considéré précédemment, on doit avoir $p_c \ll p_1 p_2$: la description théorique d'une telle situation doit nécessairement faire appel à des champs quantifiés.

Munis de ces outils, il est aisé de comparer les différents critères utilisés dans les expériences d'interférence. Le critère utilisé dans les expériences précédentes était simplement que la probabilité d'une détection double soit beaucoup plus faible que celle d'une détection simple, c'est-à-dire, $p_c \ll p_1$. En fait, on peut remarquer que lorsque les détections sont statistiquement indépendantes (non corrélées) on a $p_c = p_1 p_2$; la plupart des expériences s'effectuaient donc en vérifiant la condition moins restrictive $p_1 \ll 1$, et en ajoutant une hypothèse relative à l'indépendance des évènements observés. Une objection essentielle à ce raisonnement est que les inégalités $p_c \ll p_1$ ou $p_1 \ll 1$ n'ont rien de spécifiquement quantique : elles caractérisent simplement un régime de lumière atténuée*. En fait, nous montrerons que pour une source "ordinaire" (lampe spectrale, lumière thermique, laser...), mettant en jeu un grand nombre d'atomes émetteurs, l'inégalité $p_c \geq p_1 p_2$ est satisfaite quelque soit le niveau d'atténuation : toutes les expériences en lumière atténuée peuvent donc être décrites par un modèle ondulatoire classique.

Le critère $p_c < p_1 p_2$, que nous allons utiliser pour caractériser un "état à un seul photon", est au contraire significatif, à la fois comme indice d'un comportement corpusculaire, et comme preuve de non-applicabilité de la théorie ondulatoire classique. Ce critère ne peut être satisfait que dans des configurations expérimentales spécifiques, produisant des champs lumineux "non-classiques". La méthode utilisée dans ce travail pour produire une lumière non-classique repose sur l'utilisation d'une cascade radiative, dans laquelle deux photons ν_A et ν_B sont émis par un seul atome. La détection du photon ν_A provoque l'ouverture de la "porte de comptage" W (Fig. 1) ; il est alors possible de montrer théoriquement (Chapitre I) et expérimentalement (Chapitre II) que le champ lumineux pendant la porte W est "non-classique", et vérifie le critère $p_c \ll p_1 p_2$. L'origine physique de ce comporte-

---

* *Le caractère discret des photodétections n'est pas en lui-même une preuve définitive du caractère quantique du champ (voir plus loin, et Ref. 31 et 37). Remarquons également que l'introduction du "rendement quantique" des photodétecteurs ne changerait rien au raisonnement qui a été fait.*

ment est que l'on pourra, pendant W, isoler le champ émis par un atome unique, qui est l'atome ayant émis ν_A ; on conçoit alors que le champ émis par un atome excité unique soit très proche d'un état à un seul photon.

Il est important de remarquer que la probabilité p_c, qui permet de définir notre critère $p_c \ll p_1 p_2$, est en fait une simplification de la notion de corrélation d'intensité ; dans des situations plus complexes - et plus réalistes - nous aurons recours aux véritables fonctions de corrélations, pour caractériser les propriétés non-classiques du champ quantifié. Ces fonctions de corrélations seront calculées pour les différentes configurations expérimentales que nous considérerons dans ce travail. Nous utiliserons pour cela deux approches différentes :

- la théorie de la diffusion, qui permet de calculer perturbativement la fonction d'onde du champ diffusé par un atome[5]. Cette approche est particulièrement bien adaptée au premier des systèmes que nous étudierons, qui est une cascade radiative atomique excitée par un processus non-linéaire. La description du champ émis en terme de photons apparait alors naturellement, et nous montrerons que l'état du champ obtenu après la détection du premier photon de la cascade est très proche d'un "état à un seul photon" dont les propriétés "corpusculaires" seront clairement mises en évidence.

- l'autre approche a été très utilisée en théorie de la fluorescence de résonnance[6], et revient à exprimer directement les fonctions de corrélation du champ en fonction des dipôles émetteurs. Cette méthode sera appliquée dans une autre expérience (Chapitre V), dans laquelle nous considérerons deux atomes préparés dans un état quantique "non factorisable" par photodissociation d'une molécule diatomique. Cet état met en jeu les deux atomes et un seul quantum d'excitation, et on pourra prédire et observer un effet d'interférence entre les "chemins" associés à l'émission d'un photon unique par l'un ou l'autre atome.

Une idée directrice de ce travail a été de se placer dans des situations où il était possible d'isoler le rayonnement émis par un système atomique unique (un seul atome dans le cas de la cascade, ou une seule paire d'atomes dans l'expérience de photodissociation) ; le caractère quantique de la lumière émise sera alors clairement mis en évidence. Les effets "à plusieurs atomes" ont donc été délibérément réduits au minimum, afin de ne pas masquer les phénomènes étudiés. Cependant, la possibilité d'obtention de champs quantiques "macroscopiques", (c'est-à-dire, émis par un grand nombre d'atomes, mais conservant des propriétés statistiques

de nature quantique) suscite actuellement un très vif intérêt[4]. Le prolongement naturel du présent travail serait donc l'étude des propriétés quantiques de la lumière émise par une source multiatomique. Nous avons effectivement obtenu récemment des résultats en ce sens[11], qui ne seront pas présentés dans ce mémoire, mais où des des propriétés spécifiquement quantiques de la fluorescence de résonance d'une source multiatomique ont pu être observées. Ces résultats confirment que les techniques de corrélations d'intensité, que nous décrirons en détail dans ce travail, fournissent un moyen puissant d'étude des propriétés statistiques du champ électromagnétique quantifié[11].

Le plan de l'exposé est le suivant : dans le Chapitre I, nous rappellerons les résultats essentiels de la théorie de la photodétection de Glauber, et présenterons les outils théoriques nécessaires à la description et à l'interprétation de nos expériences. Le chapitre II est consacré à la mise en évidence expérimentale d'un effet "d'anticorrélation", caractéristique d'un comportement corpusculaire de la lumière. Dans les trois derniers chapitres, nous décrirons trois expériences que l'on peut rassembler sous le nom "d'interférences à un seul photon" : une expérience d'interférométrie optique (Chapitre III), une expérience de battements quantiques dans une cascade radiative excitée de façon continue (Chapitre IV), et enfin un effet d'interférence lié au "partage" d'un seul photon entre deux atomes émetteurs (Chapitre V).

Chapitre 1

CORRELATIONS D'AMPLITUDE ET CORRELATIONS D'INTENSITE :

OUTILS THEORIQUES

Une expérience d'interférences peut être décrite comme une mesure des corrélations qui existent entre les amplitudes de la "vibration lumineuse" en deux points d'espace-temps différents. Dans le cadre de la théorie ondulatoire classique[23], cette "vibration" est assimilée à celle du champ électrique d'une onde électromagnétique, et les corrélations d'amplitude sont décrites par des fonctions caractérisant la "cohérence" de la lumière étudiée.

Il existe cependant d'autres expériences, moins souvent considérées en optique ondulatoire classique, dans lesquelles on mesure les corrélations entre les intensités lumineuses en deux points différents[6]. Un point fondamental, sur lequel nous reviendrons souvent dans ce travail, est qu'il existe des situations où la théorie ondulatoire classique est totalement incapable de rendre compte du résultat d'une expérience de corrélations d'intensité ; il semble pourtant légitime d'exiger que les deux types d'expériences (corrélations d'amplitudes ou d'intensité) puissent être décrites dans le même cadre conceptuel.

L'origine de cette difficulté, qui est maintenant bien comprise, est que les propriétés quantiques de la lumière, que l'on "ignore" en optique ondulatoire classique, jouent parfois un rôle essentiel dans une expérience de corrélation d'intensité. Ces propriétés quantiques peuvent conduire à des comportements de type "corpusculaire", qui sont incompatibles avec une description de la lumière limitée aux effets de nature "ondulatoire". Glauber[1] a proposé en 1965 un traitement théorique synthétique, basé sur une description quantique du champ électromagnétique. Notre propos ici est de manipuler la "brique élémentaire" de cette description quantique de la lumière, qui est le photon unique.

Ce chapître présente les outils nécessaires à la description théorique de nos expériences. La partie I-A contient les éléments de la théorie quantique de la photodétection, qui nous seront utiles par la suite, et introduit la notion "d'état à un seul photon". Les parties B et C développent des calculs quantiques de fonctions de corrélations d'amplitude et d'intensité, relatifs à une cascade radiative. Nous montrerons en effet au cours de ce travail (Chapitres II et III) qu'une cascade radiative fournit un moyen concret pour préparer un champ lumineux "non classique", dont les propriétés sont très proches de celles d'un "état à un seul photon".

../..

I-A - SIGNAUX DE PHOTODETECTION

Ce paragraphe est consacré à un rappel des résultats essentiels de la théorie de la photodétection de Glauber[1], qui nous seront utiles tout au long de ce travail. Nous rappellerons ensuite brièvement les grandes lignes de la théorie "semi-classique" de la photodétection, en insistant sur les points où les deux théories entrent en conflit. Enfin, après avoir rappelé la description quantique des phénomènes d'interférence, nous introduirons et discuterons les propriétés d'un "état" particulier du champ électromagnétique quantifié : l'état à un seul photon.

I-A-1 - Théorie quantique de la photodétection

a) Introduction

Le cadre théorique de ce travail est celui de l'électrodynamique quantique non relativiste, dans lequel les atomes sont décrits par la mécanique quantique non-relativiste (équation de Schrödinger), et la lumière par un champ électromagnétique quantifié obéissant aux équations de Maxwell (pour des opérateurs). La quantification du champ est effectué en jauge de Coulomb, qui permet aisément, en utilisant un formalisme non explicitement covariant, de définir des "variables normales" reliées aux parties transverses (de divergence nulle) du champ électrique et du potentiel vecteur[7]. Ces variables normales décrivent un ensemble d'oscillateurs harmoniques, associés aux différents "modes" du champ électromagnétique, et leur quantification se ramène à la définition d'opérateurs de création et d'annihilation de quanta d'excitation (photons) pour chacun des modes du champ. L'expression du champ électrique transverse en fonction de ces opérateurs est bien connue :

$$\vec{E}(\vec{r}) = i \sum_{\vec{k},\vec{\varepsilon}} \xi(\omega) \left[a_{\vec{k}\vec{\varepsilon}} \, \vec{\varepsilon} \, e^{i \vec{k}.\vec{r}} - a^{+}_{\vec{k}\vec{\varepsilon}} \, \vec{\varepsilon}^{\,*} \, e^{-i \vec{k}.\vec{r}} \right] \qquad (I\text{-}1)$$

$a_{\vec{k}\vec{\varepsilon}}$ et $a^{+}_{\vec{k}\vec{\varepsilon}}$ sont respectivement les opérateurs d'annihilation et de création de photons dans le "mode" défini par le vecteur d'onde $\vec{k}$ et le vecteur polarisation complexe $\vec{\varepsilon}$ (le caractère transverse de $\vec{E}(\vec{r})$ impose $\vec{k}.\vec{\varepsilon} = 0$). En désignant par λ le mode $(\vec{k},\vec{\varepsilon})$, les opérateurs a_λ et a_λ^{+} satisfont les relations de commutation :

$$\left[a_\lambda, a_{\lambda'}\right] = \left[a^+_\lambda, a^+_{\lambda'}\right] = 0$$

$$\left[a_\lambda, a^+_{\lambda'}\right] = \delta_{\lambda\lambda'} \qquad (I-2)$$

Enfin, $\xi(\omega)$ est donné par la relation :

$$\xi(\omega) = \sqrt{\frac{\hbar\omega}{2\,\varepsilon_o\,V}}, \qquad (I-3)$$

où V est le volume de quantification nécessaire pour donner un sens à la sommation discrète sur $\vec{k}$.

L'équation (I-1) correspond à l'expression de $\vec{E}(\vec{r})$ en représentation de Schrödinger, dans laquelle les dépendances temporelles sont reportées dans le vecteur d'état du champ $|\psi(t)\rangle$. Nous utiliserons également la représentation de Heisenberg, dans laquelle $|\psi\rangle$ est constant tandis que les opérateurs a_λ, a^+_λ dépendent du temps. Les relations de commutation (I-2) restent valables pour des opérateurs pris au même instant. Dans le cas d'un champ libre (pas de sources), $\vec{E}(\vec{r}, t)$ s'écrit simplement :

$$\vec{E}(\vec{r}, t) = i \sum_{\vec{k}, \vec{\varepsilon}} \xi(\omega) \left[a_{\vec{k}, \vec{\varepsilon}}\,(t_o)\; \vec{\varepsilon}\; e^{i(\vec{k}\vec{r} - \omega(t-t_o))} - a^+_{\vec{k}, \vec{\varepsilon}}\,(t_o)\; \vec{\varepsilon}^{\,*}\, e^{-i(\vec{k}\vec{r} - \omega(t-t_o))} \right] \qquad (I-4)$$

On pose usuellement :

$$\vec{E}(\vec{r},t) = \vec{E}^+(\vec{r},t) + \vec{E}^-(\vec{r},t) \qquad (I-5)$$

où $\vec{E}^+$ correspond aux opérateurs d'annihilation $a_{\vec{k}\vec{\varepsilon}}$ et $\vec{E}^-$ aux opérateurs de création $a^+_{\vec{k}\vec{\varepsilon}}$.

En présence de systèmes de charges (électrons, noyaux) susceptibles d'émettre ou d'absorber du rayonnement, on peut écrire les équations de Heisenberg régissant l'évolution des opérateurs champs, et des opérateurs de positions et d'impulsions associés au mouvement des charges (équations de Maxwell-

../..

Lorentz quantiques[12]). Nous n'utiliserons pas ces équations générales ici, mais considérerons l'approximation dans laquelle le rayonnement est émis ou absorbé par des atomes de taille très inférieure aux longueurs d'ondes optiques, le couplage atomes-champ pouvant alors être décrit dans le cadre de l'approximation dipolaire électrique[7]. Le hamiltonien d'interaction peut alors s'écrire sous la forme simple :

$$W = - \vec{D}.\vec{E}(\vec{r}_o, t) \qquad (I-6)$$

où $\vec{r}_o$ correspond à la position de l'atome, et $\vec{D}$ est l'opérateur dipôle, dont les éléments de matrice sont non nuls entre niveaux atomiques satisfaisant aux règles de sélection dipolaires électriques.

b) Probabilité de photoionisation d'un atome détecteur

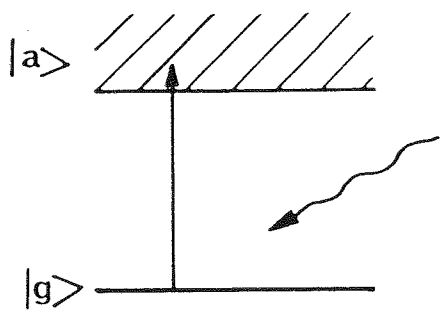


Figure 1 : Modèle élémentaire de photodétection par ionisation d'un atome détecteur, qui passe d'un état |g> lié à un état |a> du continuum.

Le modèle le plus simple de photodétecteur est un atome irradié par une onde incidente, et susceptible d'être ionisé en libérant un électron ; dans un photomultiplicateur, cet électron provoque la formation d'une impulsion électrique qui est finalement détectée par des circuits électroniques. Le premier pas de la théorie de la photodétection consiste donc à calculer l'amplitude de probabilité pour que l'atome passe d'un état |g> lié à un état |a> du continuum (Fig. I-1), le champ électromagnétique incident passant d'un état initial |i> à un état final |f>. Afin de ne pas alourdir les notations, nous supposerons qu'un polariseur sélectionnant la polarisation $\vec{\varepsilon}_D$ est placé devant le détecteur ; on ne considérera donc qu'une seule composante de polarisation $\vec{\varepsilon}_D.\vec{E}$, que nous noterons E_D. Si l'on suppose que le

../..

champ est appliqué à partir de l'instant t_o, l'amplitude de probabilité pour que l'atome soit dans l'état $|a\rangle$ du continuum à l'instant t sera obtenue en calculant l'opérateur d'évolution $U(t, t_o)$ au premier ordre de la théorie des perturbations :

$$\langle a,f|U(t, t_o)\ |g,i\rangle = \frac{i}{\hbar} \int_{t_o}^{t} e^{i\omega_{ag}t'}\ d_{ag}.\ \langle f|\ E_D(\vec{r},t')\ |i\rangle\ dt' \qquad (I-7)$$

où $\hbar\omega_{ag}$ et d_{ag} sont respectivement la différence d'énergie et l'élément de matrice de $\vec{D}.\vec{\varepsilon}_D$ entre les niveaux $|a\rangle$ et $|g\rangle$. Remarquons que nous avons supposé ici que la lumière incidente est la seule perturbation capable de porter l'atome de l'état $|g\rangle$ à l'état $|a\rangle$, ce qui revient en particulier à négliger la possibilité d'excitations thermiques ; cette approximation est très bien vérifiée dans le domaine optique, où l'on a $kT \ll \hbar\omega$.

Dans l'expression (I-7), $E_D(\vec{r}, t')$ peut être décomposé en la somme de E_D^+ et E_D^- ; les contributions de ces deux termes à l'intégrale sont très différentes. En effet, la contribution de E_D^- comporte un terme en $\exp(i\ (\omega_{ag} + \omega)\ t')$ avec $\omega > 0$, qui oscille très rapidement et donnera une contribution nulle dès que $(t - t_o)$ sera plus grand que quelques périodes optiques. Au contraire, le terme impliquant E_D^+ pourra donner une contribution importante. Ce résultat traduit simplement la conservation de l'énergie dans le processus d'ionisation : seul le terme en E_D^+, correspondant à la destruction d'un photon, c'est-à-dire à une diminution de l'énergie du champ, peut contribuer à porter l'atome de l'état $|g\rangle$ à l'état excité $|a\rangle$.

La probabilité d'ionisation de l'atome s'obtiendra alors en sommant le module carré de l'expression (I-7) sur tous les états $|f\rangle$ du champ qui correspondant à un même état $|a\rangle$ pour l'atome, et en prenant la moyenne du résultat sur les états initiaux $|i\rangle$:

$$P_{g\to a}(t) = \left\{ \sum_f\ |\langle a,f|\ U(t, t_o)\ |g,i\rangle|^2 \right\}_{\text{Moyenné sur } |i\rangle} \qquad (I-8)$$

En utilisant la relation $\langle f\ |E_D^+|\ i\rangle = (\langle i\ |E_D^-|\ f\rangle)^*$, on voit apparaitre la quantité :

../..

$$\left\{ \sum_f \langle i | E_D^-(\vec{r}, t) | f \rangle \langle f | E_D^+(\vec{r}, t') | i \rangle \right\} \text{ moyenné sur } |i\rangle$$

$$= \left\{ \langle i | E_D^-(\vec{r}, t) E_D^+(\vec{r}, t') | i \rangle \right\} \text{ moyenné sur } |i\rangle$$

où on a utilisé la relation de fermeture sur les états $|f\rangle$ du champ.

On introduit alors la fonction de cohérence du premier ordre :

$$G^{(1)}(\vec{r}, t, \vec{r}', t') = \left\{ \langle i | E_D^-(\vec{r}, t) E_D^+(\vec{r}', t') | i \rangle \right\} \text{ moyenné sur } |i\rangle \qquad (I-9)$$

Si l'état initial du champ est décrit par une matrice densité ρ, la moyenne sur $|i\rangle$ peut s'exprimer simplement par la relation :

$$G^{(1)}(\vec{r}, t, \vec{r}', t') = \mathrm{Tr} \left[\rho E_D^-(\vec{r}, t) E_D^+(\vec{r}', t') \right] \qquad (I-10)$$

On obtient alors :

$$p_{g \to a}(t) = \frac{1}{\hbar^2} \int_{t_o}^{t} dt' \int_{t_o}^{t} dt'' \, e^{i\omega_{ag}(t'' - t')} |d_{ag}|^2 \; G^{(1)}(\vec{r}, t', \vec{r}, t''). \qquad (I-11)$$

Une deuxième étape est nécessaire pour obtenir la probabilité de photo-détection : il faut introduire la probabilité R(a) pour qu'un électron éjecté dans l'état $|a\rangle$ soit effectivement détecté, et sommer sur les états $|a\rangle$. On obtient ainsi :

$$p^{(1)}(t) = \sum_a R(a) \, p_{g \to a}(t)$$

$$= \frac{1}{2\Pi} \int_{t_o}^{t} dt' \int_{t_o}^{t} dt'' \int d\omega \; s(\omega) \, e^{i\omega(t''-t')} \, G^{(1)}(\vec{r}, t', \vec{r}, t'') \qquad (I-12)$$

../..

où la fonction $s(\omega)$ est définie par :

$$s(\omega) = \frac{2\pi}{\hbar^2} \sum_a R(a) \; |d_{ag}|^2 \; \delta(\omega - \omega_{ag})$$

La somme sur a représente en fait une intégrale, dont le résultat est une fonction de ω sans singularité, qui traduit la réponse spectrale du photodétecteur ; cette fonction varie lentement avec ω pour un détecteur "large bande" comme un photomultiplicateur. La transformée de Fourier de $s(\omega)$:

$$S(t) = \frac{1}{2\pi} \int d\omega \; s(\omega) \; e^{i \omega t} \qquad (I-13)$$

a alors une largeur temporelle très faible, de l'ordre de l'inverse de la bande du photodétecteur, et on obtient :

$$p^{(1)}(t) = \int_{t_o}^{t} dt' \int_{t_o}^{t} dt'' \; S(t' - t'') \; G^{(1)}(\vec{r}, t', \vec{r}, t'') \qquad (I-14-a)$$

$$p^{(1)}(t) = s_o \int_{t_o}^{t} G^{(1)}(\vec{r}, t', \vec{r}, t') \qquad (I-14-b)$$

Le taux de comptage $w^{(1)}$ est alors donné par l'expression :

$$w^{(1)}(t) = \frac{d}{dt} \; p^{(1)}(t) = s_o \; G^{(1)}(\vec{r}, t, \vec{r}, t) \qquad (I-15-a)$$

ou encore :

$$w^{(1)}(t) = s_o \langle E_D^{-}(\vec{r},t) \; E_D^{+}(\vec{r},t) \rangle \qquad (I-15-b)$$

Le taux de comptage, ou plus précisément la probabilité $w^{(1)}(t)\,dt$ de détecter un photoélectron entre t et t + dt, est donc proportionnel à la valeur moyenne d'un produit d'opérateurs champs rangés dans l'ordre "normal" (opérateurs d'annihilation placés à droite des opérateurs de création).

../..

c) Généralisation : fonction de corrélation d'ordre n

Le traitement précédent peut être généralisé au cas où plusieurs atomes détecteurs indépendants placés aux points $(\vec{r}_1 \ldots \vec{r}_n)$ sont soumis au même rayonnement incident. La grandeur mesurée est alors la probabilité $w^{(n)}(t_1 \ldots t_n)$ $dt_1 \ldots dt_n$ d'observer n photoionisations aux instants t_1 (à dt_1 près).. t_n (à dt_n près). Comme précédemment, on calcule d'abord la probabilité d'ionisation $p^{(n)}(t_1 \ldots t_n)$, en supposant que l'atome $j(1 \leq j \leq n)$ est exposé au champ incident entre t_o et t_j. On obtient dans le cas d'un détecteur large bande :

$$p^{(n)}(t_1 \ldots t_n) = s_o^{\,n} \int_{t_o}^{t_1} dt'_1 \ldots \int_{t_o}^{t_n} dt'_n \, G^{(n)}(\vec{r}_1\, t'_1 \ldots \vec{r}_n\, t'_n, \vec{r}_n\, t'_n \ldots \vec{r}_1\, t'_1) \qquad (I\text{-}16)$$

où on définit la fonction de corrélation d'ordre n :

$$G^{(n)}(\vec{r}'_1, t'_1 \ldots \vec{r}'_n\, t'_n, \vec{r}''_n\, t''_n \ldots \vec{r}''_1\, t''_1) =$$

$$\langle E_D^-(\vec{r}'_1\, t'_1) \ldots E_D^-(\vec{r}'_n\, t'_n)\, E_D^+(\vec{r}''_n, t''_n) \ldots E_D^+(\vec{r}''_1, t''_1) \rangle \qquad (I\text{-}17)$$

La densité de probabilité $w^{(n)}(t_1 \ldots t_n)$ est obtenue en dérivant $p^{(n)}(t_1 \ldots t_n)$ par rapport aux variables $(t_1 \ldots t_n)$, et est simplement proportionnelle à, la fonction de corrélation d'ordre n :

$$w^{(n)}(t_1 \ldots t_n) = s_o^{\,n}\, G^{(n)}(\vec{r}_1\, t_1 \ldots \vec{r}_n\, t_n, \vec{r}_n\, t_n \ldots \vec{r}_1\, t_1) \qquad (I\text{-}18)$$

Un résultat essentiel de la théorie de Glauber est donc que les probabilités de photodétections sont données par des produits d'opérateurs rangés dans l'ordre normal ; les opérateurs de création et d'annihilation ne commutant pas en général,

des effets "spécifiquement quantiques" résultant de cette non-commutation pourront apparaitre dès que l'ordre n sera supérieur ou égal à deux.

Nous utiliserons dans ce travail des fonctions de corrélations d'ordre deux, qui sont d'un usage très courant (expériences de corrélations d'intensité)[6], ainsi que des fonctions d'ordre trois, dont l'interprétation physique sera discutée dans les paragraphes suivants. Mais, afin de mieux mettre en relief les spécificités de la théorie quantique de la photodétection, nous allons d'abord rappeler les caractéristiques essentielles de la théorie "semi-classique", dans laquelle le champ électromagnétique n'est pas quantifié.

I-A-2 - Théorie semi-classique de la photodétection

a) Introduction

On appelle théorie semi-classique de la photodétection la théorie obtenue lorsque le champ électromagnétique est décrit par des nombres, et non plus par des opérateurs, tandis que les atomes sont toujours décrits dans le cadre de la mécanique quantique non relativiste. Cette description peut être considérée comme une "limite classique" de la théorie quantique, sous des conditions que nous préciserons dans le paragraphe suivant. Cependant, la théorie semi-classique en tant que telle a été très largement utilisée en pratique ; en fait, c'est la théorie de base enseignée en "optique physique".

Le calcul semi-classique des signaux de photodétections, correspondant à l'ionisation d'un ou plusieurs atomes détecteurs, est très proche du calcul quantique effectué précèdemment. Le taux de comptages d'ordre n est donné par l'expression :

$$w^{(n)}(t_1 \ldots t_n) = s_o^{\,n}\, G^{(n)}(\vec{r}_1\, t_1 \ldots \vec{r}_n\, t_n\, ;\, \vec{r}_n\, t_n \ldots \vec{r}_1\, t_1) \qquad (I\text{-}19)$$

où la fonction de corrélation d'ordre n est donnée par l'expression (I-17), dans laquelle les champs ne sont plus des opérateurs, mais des fonctions aléatoires classiques ; l'introduction d'éléments aléatoires permet en effet de rendre compte d'une grande variété de mécanismes d'émissions[6]. Afin de pouvoir étudier plus précisément le domaine de validité de la théorie semi-classique, Glauber a introduit des outils mathématiques très commodes, dont nous allons brièvement rappeler les propriétés.

b) Relation entre la théorie semi-classique et la théorie quantique

Glauber a introduit des états du champ quantifié, appelés états cohérents, qui permettent d'établir un lien entre la théorie quantique et la théorie semi-classique. Ces états sont notés $|\{\alpha_\lambda\}\rangle$ où λ représente un mode $(\vec{k}, \vec{\varepsilon})$, et α_λ un nombre complexe. Les états cohérents sont solutions de l'équation aux valeurs propres :

$$E^+(\vec{r}, t) \; |\{\alpha_\lambda\}\rangle = E_{cl}(\vec{r},t) \; |\{\alpha_\lambda\}\rangle \qquad (I\text{-}20\text{-}a)$$

où $E_{cl}(\vec{r}, t)$ est la fonction :

$$E_{cl}(\vec{r},t) = i \sum_\lambda \xi(\omega) \; \alpha_\lambda \; \vec{\varepsilon} \; e^{i \vec{k}.\vec{r}} \qquad (I\text{-}20\text{-}b)$$

Ces relations sont équivalentes aux équations aux valeurs propres pour chacun des modes :

$$a_\lambda \; |\{\alpha_\lambda\}\rangle = \alpha_\lambda \; |\{\alpha_\lambda\}\rangle \qquad (I\text{-}21)$$

On déduit de cette relation toutes les propriétés des états cohérents, qui sont aussi appelés états "quasi-classiques" car, pour de tels états, les valeurs moyennes de tous les opérateurs du champ quantifié coïncident avec les valeurs classiques correspondantes, déduites de (I-20-b) [1, 7] .

Ainsi, lorsque le champ est dans un état cohérent, la quantité $w^{(n)}(t_1 \ldots t_n)$ définie dans le chapitre précédent prend la forme particulièrement simple :

$$w^{(n)}(t_1 \ldots t_n) = s_o{}^n \; \overline{E_{cl}{}^*(\vec{r}_1,t_1) \ldots E_{cl}{}^*(\vec{r}_n,t_n) \; E_{cl}(\vec{r}_n,t_n) \ldots E_{cl}(\vec{r}_1, t_1)}$$

$$= s_o{}^n \; \overline{I_{cl}(\vec{r}_1,t_1) \ldots I_{cl}(\vec{r}_n,t_n)} \qquad (I\text{-}22\text{-}a)$$

../..

où nous avons défini :

$$I_{cl}(\vec{r},\ t) = E_{cl}^{*}(\vec{r},t)\ E_{cl}(\vec{r},t) \qquad (I\text{-}22\text{-}b)$$

et utilisé le fait que les E_{cl} sont des nombres et non plus des opérateurs.

De façon plus générale, un champ quelconque peut être décrit par un opérateur densité qui est une somme de projecteurs sur les états $|\{\alpha_\lambda\}\rangle$, qui forment une base "surabondante"[1] :

$$\rho = \int d^2\ \{\alpha_\lambda\}\ P(\{\alpha_\lambda\})\ \ |\{\alpha_\lambda\}\rangle\langle\{\alpha_\lambda\}| \qquad (I\text{-}23)$$

où $P(\{\alpha_\lambda\})\ d^2(\alpha_\lambda)$ joue un rôle analogue à celui d'une probabilité pour que les paramètres $\{\alpha_\lambda\}$ de chacun des modes soient compris entre α_λ et $\alpha_\lambda + d^2\ \alpha_\lambda$ (le carré dont est affecté l'élément différentiel correspond au fait que α_λ est un paramètre complexe).

On obtient alors :

$$w^{(n)}(t_1 \ldots t_n) = s_o^{\,n} \int d^2\{\alpha_\lambda\}\ P(\{\alpha_\lambda\})\ (I_{cl}(\vec{r}_1,t_1)\ldots I_{cl}(\vec{r}_n,\ t_n)) \qquad (I\text{-}24)$$

Cette expression ressemble beaucoup à une valeur moyenne, sur les différentes valeurs possibles des paramètres α_λ, du produit $(I_{cl}(r_1, t_1)\ldots I_{cl}(r_n,\ t_n))$. Par ailleurs les relations $\rho = \rho^{+}$ et $Tr\ \rho = 1$ entrainent que $P(\{\alpha_\lambda\})$ est réel et que l'on a :

$$\int d^2\ \{\alpha_\lambda\}\ P(\{\alpha_\lambda\}) = 1$$

$P(\{\alpha_\lambda\})$ possède donc certaines propriétés d'une densité de probabilité ; il lui manque cependant une propriété essentielle pour une densité de probabilité classique, qui est d'être définie positive : il existe en effet des états du champ quantifié où $P(\{\alpha_\lambda\})$ prend localement des valeurs négatives, ou même

../..

est trop singulière pour être utilisable[1]. A la lumière de ce qui précède, on pourra donc distinguer deux types de situations. Lorsque $P(\{\alpha_\lambda\})$ est définie positive, l'expression (I-24) s'identifie à la probabilité de détection semi-classique (I-19) : on peut donc prévoir que la quantification du champ ne jouera pas un rôle essentiel dans la description des phénomènes mis en jeu. Au contraire, les situations où $P(\{\alpha_\lambda\})$ n'est pas définie positive vont correspondre à des états quantiques "sans équivalents classiques" ; nous préciserons ce point dans le paragraphe I-A-4.

Nous allons maintenant appliquer les formalismes quantiques et semi-classiques pour décrire deux types d'expériences : les expériences d'interférences (§ I-A-3) et les expériences de corrélations d'intensité (§ I-A-4) ; comme nous l'avons déjà annoncé, des désaccords importants vont apparaître entre les deux théories pour le deuxième type d'expériences.

I-A-3 - Phénomènes d'interférences

a) Introduction

La description quantique des phénomènes d'interférences lumineuses utilise les mêmes approximations que l'électromagnétisme classique[21]. On considère en général que le champ $E_I^+(\vec{r}, t)$ en sortie d'un interféromètre peut être décrit par la superposition de deux valeurs du champ incident $E^+(\vec{r}, t)$ pris en des points d'espace-temps différents (voir Fig. I-2 page 19).

$$E_I^+(\vec{r}, t) = \frac{1}{2}\left[E^+(\vec{r}_1, t_1) + E^+(\vec{r}_2, t_2)\right] \qquad (I\text{-}25)$$

Cette expression, qui a l'avantage de la simplicité, permet de discuter de l'essentiel des phénomènes d'interférences. Elle repose évidemment sur des approximations, qui reviennent à négliger le détail des phénomènes de propagation qui ont permis de "préparer" la superposition ; ces approximations sont identiques dans les descriptions classiques et quantiques, puisqu'il s'agit dans les deux cas de résoudre de façon approchée les équations de Maxwell pour les "modes" du champ qui interviennent dans la situation considérée.

Remarque : Si on considère un interféromètre "sans pertes", la transformation faisant passer des champs entrants aux champs sortants doit être unitaire. Ceci correspond classiquement à la conservation de l'énergie, et quantiquement au fait que les relations de commutations des champs sortants doivent, comme celles des champs entrants, vérifier le système d'équation (I-2)[22].

La probabilité de photodétection en sortie de l'interféromètre est alors donnée par l'expression :

$$w^{(1)}(\vec{r}, t) = \langle E_1^-(\vec{r}, t)\, E_1^+(\vec{r}, t)\rangle$$

$$= \frac{1}{4}\left[G^{(1)}(\vec{r}_1, t_1, \vec{r}_1, t_1) + G^{(1)}(\vec{r}_2, t_2, \vec{r}_2, t_2)\right]$$

$$+ \frac{1}{2}\,\mathrm{Re}\left[G^{(1)}(\vec{r}_1, t_1, \vec{r}_2, t_2)\right]$$

$$= \frac{1}{4}\left[G^{(1)}(\vec{r}_1\, t_1, \vec{r}_1\, t_1) + G^{(1)}(\vec{r}_2\, t_2, \vec{r}_2\, t_2)\right]$$

$$+ \frac{1}{2}\,\left|G^{(1)}(\vec{r}_1\, t_1, \vec{r}_2\, t_2)\right| \cos\left(\phi(\vec{r}_1\, t_1, \vec{r}_2\, t_2)\right) \qquad (I\text{-}26)$$

où on a posé :

$$\phi(\vec{r}_1\, t_1, \vec{r}_2\, t_2) = \mathrm{Arg}\left[G^{(1)}(\vec{r}_1\, t_1, \vec{r}_2\, t_2)\right] \qquad (I\text{-}27)$$

Les deux premiers termes correspondent simplement aux intensités aux points $(\vec{r}_1, t_1)$ et $(\vec{r}_2, t_2)$ et sont indépendants de l'interféromètre. Au contraire, le troisième terme dépend de paramètres relatifs à l'interféromètre : c'est ce terme qui sera associé à l'apparition de franges d'interférences.

../..

Remarque : Dans la plupart des cas $\phi(\vec{r}_1\, t_1, \vec{r}_2\, t_2)$ est fonction du point $\vec{r}$ d'observation : les franges sont alors directement observables dans le champ d'interférences. Mais, il peut aussi arriver que ϕ dépende très peu de $\vec{r}$ (par exemple dans un interféromètre de Michelson réglé au voisinage de la teinte plate). On observe alors les interférences en faisant varier un paramètre de l'interféromètre (par exemple en translatant un miroir).

b) Cohérence spatiale et cohérence temporelle

On définit usuellement le contraste des franges d'interférences par la relation :

$$C = \frac{w^{(1)}_{Max} - w^{(1)}_{Min}}{w^{(1)}_{Max} + w^{(1)}_{Min}} = \frac{2\left|G^{(1)}(\vec{r}_1\, t_1, \vec{r}_2\, t_2)\right|}{G^{(1)}(\vec{r}_1\, t_1, \vec{r}_1\, t_1) + G^{(1)}(\vec{r}_2\, t_2, \vec{r}_2\, t_2)} \qquad (I\text{-}28)$$

L'inégalité $w^{(1)} \geqq 0$ entraine directement $0 \leqq C \leqq 1$. Le module de la fonction de cohérence du premier ordre caractérise donc la visibilité des franges d'interférences. Comme en optique ondulatoire classique, on distingue la cohérence spatiale, associée aux variations de $G^{(1)}$ avec $(\vec{r}_1 - \vec{r}_2)$, qui intervient par exemple dans l'expérience des trous d'Young, et la cohérence temporelle, associée aux variations de $G^{(1)}$ avec $(t_1 - t_2)$, qui intervient par exemple lorsqu'on utilise un interféromètre de Michelson réglé en anneaux à l'infini[23].

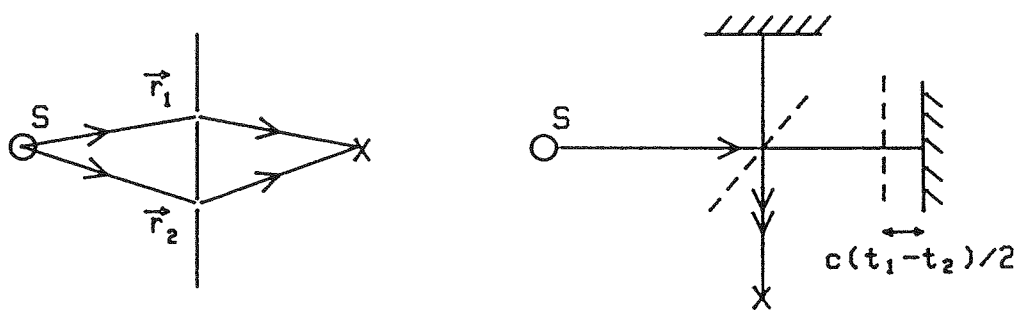


Figure I-2 : Cohérence spatiale et cohérence temporelle. L'expérience des fentes d'Young (a) est sensible aux corrélations entre les champs aux deux points $\vec{r}_1$ et $\vec{r}_2$, tandis que dans l'expérience de Michelson (b) on observe les corrélations entre les champs aux deux instants t_1 et t_2.

../..

La Figure I-2 illustre ces deux situations. En général, les corrélations entre les valeurs du champ en deux points différents, qui sont responsables de l'apparition d'interférences, existent dans une aire σ_c perpendiculaire à la direction de propagation (aire de cohérence), et sur une longueur $c\,\tau_c$ le long de la direction de propagation (longueur de cohérence). La grandeur $c\,\tau_c\,\sigma_c$ est appelée volume de cohérence. Il est à remarquer que toutes ces notions bien connues en optique ondulatoire classique, conservent tout leur sens dans la théorie quantique.

Nous allons voir dans le paragraphe suivant que les différences essentielles entre les théories classiques et quantiques vont apparaître lorsque l'on va s'intéresser aux fonctions de corrélation "d'intensité" $G^{(2)}(\vec{r}_1\ t_1, \vec{r}_2\ t_2, \vec{r}_2\ t_2\ \vec{r}_1\ t_1)$.

I-A-4 - Conflits entre les descriptions quantiques et semi-classiques du rayonnement

a) Dégroupement et anticorrélation

Le conflit entre les descriptions quantiques et semi-classiques peut être mis en évidence de façon particulièrement directe dans une expérience de "corrélation d'intensité", dans laquelle on mesure la probabilité $w^{(2)}(\vec{r}_1\ t_1\ \vec{r}_2\ t_2)\ dt_1\ dt_2$ d'avoir deux photodétections, se produisant respectivement entre t_1 et $t_1 + dt_1$ et entre t_2 et $t_2 + dt_2$. Les expressions de $w^{(2)}$ sont les suivantes :

$$w^{(2)}_{MQ}(\vec{r}_1\ t_1\ \vec{r}_2\ t_2) = s_o^{\,2} \langle E_D^-(\vec{r}_1\ t_1)\ E_D^-(\vec{r}_2\ t_2)\ E_D^+(\vec{r}_2\ t_2)\ E_D^+(\vec{r}_1\ t_1)\rangle \qquad (I\text{-}29\text{-}a)$$

où $E_D^{\pm}(\vec{r},t)$ sont les opérateurs champs définis dans le paragraphe précédent. Au contraire, l'expression semi-classique n'utilise que des champs classiques (c'est-à-dire des nombres) :

$$w^{(2)}_{Cl}(\vec{r}_1\ t_1\ \vec{r}_2\ t_2) = s_o^{\,2}\ \overline{E^*_{Cl}(\vec{r}_1 t_1)\ E^*_{Cl}(\vec{r}_2 t_2)\ E_{Cl}(\vec{r}_2 t_2)\ E_{Cl}(\vec{r}_1 t_1)} \qquad (I\text{-}29\text{-}b)$$

$$= s_o^{\,2}\ \overline{I_{Cl}(\vec{r}_1\ t_1)\ I_{Cl}(\vec{r}_2\ t_2)}$$

Considérons le cas $\vec{r}_1 = \vec{r}_2$, en supposant que le champ étudié est stationnaire ; $w^{(2)}$ ne dépend alors que de $\tau = (t_2 - t_1)$, et on obtient respectivement

../..

pour les deux descriptions :

$$w_{MQ}^{(2)}(\tau) = s_o^2 \langle E_D^-(t)\, E_D^-(t+\tau)\, E_D^+(t+\tau)\, E_D^+(t)\rangle \qquad \text{(I-30-a)}$$

$$w_{CI}^{(2)}(\tau) = s_o^2\, \overline{I_{CI}(t)\, I_{CI}(t+\tau)} \qquad \text{(I-30-b)}$$

où les dépendances spatiales ont été omises. On montre de façon très générale[13] que les équations I-30 a et b peuvent conduire à des prédictions incompatibles. Ceci résulte du fait que I-30-b impose à $w_{CI}^{(2)}(\tau)$ des restrictions, qui n'existent pas pour $w_{MQ}^{(2)}(\tau)$, comme nous allons le voir immédiatement.

Remarquons en effet, que l'on a pour tout μ réel :

$$\overline{(I_{CI}(t) + \mu\, I_{CI}(t+\tau))^2} \geq 0$$

On obtient alors l'inégalité de Cauchy-Schwarz :

$$\overline{I_{CI}^2} \geq \overline{I_{CI}(t)\, I_{CI}(t+\tau)}$$

qui s'écrit aussi :

$$\boxed{w_{CI}^{(2)}(0) \geq w_{CI}^{(2)}(\tau)} \qquad \text{(I-31)}$$

De même, l'inégalité :

$$\overline{(I_{CI}(t) - \bar{I}_{CI})^2} \geq 0$$

implique :

$$\overline{I_{CI}^2} \geq (\bar{I}_{CI})^2$$

../..

ou encore :

$$\boxed{w_{Cl}^{(2)}(0) \geq (w_{Cl}^{(1)})^2} \qquad (I-32)$$

Les démonstrations de ces deux inégalités utilisent explicitement le fait que la densité de probabilité, sous-entendue dans la notation de valeur moyenne, est définie positive ; $w_{QM}^{(2)}$ n'obéit alors pas nécessairement à (I-31) et (I-32).

La première de ces inégalités correspond au fait qu'une fonction d'autocorrélation classique est nécessairement maximale à l'origine ($\tau = 0$) ; la violation de cette inégalité par $w_{QM}^{(2)}$ est appellée "dégroupement"[14]. La seconde inégalité exprime le fait que la probabilité d'avoir *deux* détections entre t et t + dt est bornée inférieurement par le carré de la probabilité d'avoir *une* détection pendant le même intervalle de temps. La violation de cette inégalité, sur laquelle nous reviendrons en détail dans la suite de ce travail peut être qualifiée d'"anticorrélation" ; nous verrons plus loin que cet effet d'anticorrélation est étroitement associé à un comportement "corpusculaire" de la lumière.

La violation des deux inégalités I-31 et I-32, pour un champ lumineux stationnaire ou quasi-stationnaire, a été observée expérimentalement à la fin des années 70 dans des expériences de fluorescence de résonance[14,15]. Ces expériences ont fourni la première preuve concrète de l'existence de champ lumineux "non classiques", et confirmé la validité de la théorie quantique de la photodétection.

b) Fonctions de corrélation non-classiques et statistiques de comptage subpoissonniennes

Nous avons vu dans le paragraphe précédent que des effets quantiques peuvent se manifester directement sur le signal de corrélation $w^{(2)}(\tau)$, qui est une fonction statistique du second ordre de l'intensité lumineuse. Nous allons brièvement discuter ici de la relation entre la fonction de corrélation $w^{(2)}$ et les fluctuations du nombre de photodétections N se produisant pendant un temps déterminé. Ces fluctuations peuvent être caractérisées par la dispersion $\Delta N^2 = \overline{(N - \bar{N})^2}$, où la barre horizontale se réfère ici aux statistiques de comptages.

../..

On peut montrer[1] que le moment factoriel d'ordre deux $\overline{N(N-1)}$ est relié à $w^{(2)}$ par la relation :

$$\overline{N(N-1)} = \iint_S d^3\vec{r}_1\, d^3\vec{r}_2 \iint_0^T dt_1\, dt_2\, w^{(2)}(\vec{r}_1, t_1, \vec{r}_2, t_2) \qquad (I-29)$$

où S est l'aire du photodétecteur, et T le temps de comptage. On obtient alors :

$$\Delta N^2 = \bar{N} + \iint_S d^3\vec{r}_1\, d^3\vec{r}_2 \iint_0^T dt_1\, dt_2 \left[w^{(2)}(\vec{r}_1\, t_1, \vec{r}_2\, t_2) - w^{(1)}(\vec{r}_1\, t_1)\right.$$

$$\left. w^{(1)}(\vec{r}_2\, t_2)\right] = \bar{N}(1+Q) \qquad (I-33)$$

où Q est indépendant de S et T lorsque la source est stationnaire, à condition que S et T soient respectivement supérieures à l'aire de cohérence et au temps de cohérence du champ incident. Dans le cadre de la théorie semi-classique, on peut montrer que l'on a toujours $Q \geq 0$: ΔN^2 est donc toujours supérieur ou égal à la valeur $\bar{N}$ (distribution "poissonnienne" ou "super-poissonnienne"). Au contraire Q peut être compris entre 0 et (- 1) lorsque la fonction $P(\{\alpha_\lambda\})$ n'est pas définie positive : on obtiendra alors une distribution "sub-poissonnienne" spécifiquement quantique.

Il existe cependant une limitation technologique sévère à l'observation d'effets quantiques sur ΔN^2, qui n'intervient pas lorsqu'on mesure directement $w^{(2)}$. En effet, lorsque l'on compare $w^{(2)}(0)$ à $w^{(2)}(\tau)$ ou à $(w^{(1)})^2$, l'efficacité du photodétecteur est absorbée dans le facteur s_o^2 (eq. I-18) et ne joue pas de rôle. Au contraire, on peut montrer simplement que cette efficacité η modifie ΔN^2 de la façon suivante :

$$\Delta N^2 = \bar{N}(1 + \eta\, Q) \qquad (I-34)$$

Dans le cas fréquent où la source émet dans 4π stéradians, η doit prendre en compte le facteur de collection $\Omega_{coll}/4\pi$, et le rendement quantique du photomultiplicateur. On a alors typiquement $\eta \sim 10^{-3}$ ce qui signifie que même si la dispersion $\Delta N^2_{ém.}$ des photons <u>émis</u> est très inférieure à $\bar{N}_{ém.}$ ($Q \geq -1$), la

../..

dispersion $\Delta N^2_{det.}$ des photons détectés est très voisine de la valeur classique $\bar{N}_{det}$.

L'interprétation de cette disparition de la statistique subpoissonnienne est très simple : $\Delta N^2_{ém.} << \bar{N}_{ém.}$ correspond à l'apparition d'une certaine "régularité" lors des émissions successives ; lorsque le processus de détection sélectionne de façon nécessairement aléatoire une très petite fraction de la lumière émise, cette régularité disparait totalement après détection.

Ces effets de statistiques subpoissonniennes, aussi petits soient-ils, ont cependant été observés dans plusieurs situations expérimentales : fluorescence de résonance[16], expérience de Frank et Hertz[17], fluorescence paramétrique[18]. Leur étude est également reliée aux "états comprimés du rayonnement", dans lesquels des statistiques subpoissonniennes apparaissent sur un signal d'homodynage ou d'hétérodynage[19]. Nous n'étudierons pas de tels effets dans ce travail, puisque les effets spécifiquement quantiques qui nous intéresseront sont beaucoup plus facilement mis en évidence à partir des signaux de corrélation d'intensité. Signalons d'ailleurs que nous utiliserons la relation $\Delta N^2_{det} \cong \bar{N}_{det}$, qui est valable pour les faibles valeurs des rendements de détections qui interviendront dans nos expériences. Cette relation, qui nous sera utile pour estimer le rapport signal/bruit des mesures effectuées, pourra bien sûr être directement vérifiée par analyse statistique des données expérimentales.

Remarques :

- Il ressort de la discussion précédente que pour mettre en évidence directement des statistiques subpoissonniennes, on doit employer des détecteurs de rendement quantique voisin de un, par exemple des photodiodes. On étudie alors le "spectre de bruit" du courant de photodétection, dans un domaine de fréquences suffisamment élevées pour que les perturbations indésirables (vibrations, jitter des lasers,...) jouent un rôle négligeable. Les technologies à mettre en oeuvre (photodiodes et analyseur de spectre) sont donc différentes de celles employées dans ce travail (photomultiplicateurs et dispositifs de comptages rapides).

- Des statistiques subpoissonniennes ont également été observées, de façon indirecte, sur la distribution des vitesses transverses d'un jet atomique dévie par un faisceau laser[20]. Cette méthode permet d'observer des effets statistiques quantiques dans la fluorescence de résonance, en contournant la limitation due au faible rendement des photodétecteurs.

c) Un cas exemplaire : l'état à un seul photon

Revenons sur l'inégalité (I-32) établie précèdemment :

$$w_{Cl}^{(2)}(0) \geq (w_{Cl}^{(1)})^2$$

Cette inégalité, établie pour un champ stationnaire, impose une limite inférieure à la probabilité d'obtenir deux photodétections entre t et t + dt. Nous verrons dans le chapitre II qu'il n'est effectivement pas possible dans le cadre de la théorie semi-classique de déterminer des intervalles de temps pendant lesquels on pourrait "isoler" à coup sûr une photodétection unique. Au contraire, la théorie quantique autorise une telle situation, qui correspond à "état à un seul photon" ; nous allons en donner un exemple simple dans le paragraphe suivant, puis nous montrerons dans les deux dernières parties de ce chapitre qu'il est possible de réaliser concrètement un tel état, en utilisant une cascade radiative.

I-A-5 - Corrélations d'intensité et phénomènes d'interférences pour un état à un seul photon

a) Etat à un seul photon

Considérons un état du champ, dans lequel les seuls modes non vides correspondent à des ondes planes se propageant selon un axe Oz avec une polarisation déterminée. Cet état est défini par la relation :

$$|\psi\rangle = K \sum_k \frac{e^{i\omega t_o}}{\omega - \omega_o + i\,\Gamma/2} |k\rangle \qquad (I-35)$$

où la notation $|k\rangle$ signifie qu'un seul photon est présent dans le mode $k = \omega/c$; K, ω_o, t_o et Γ sont des constantes. Nous verrons dans le § I-B qu'un tel état peut être "préparé" en utilisant une cascade radiative atomique.

Cet état très simple va nous permettre d'illustrer quelques propriétés des fonctions $G^{(1)}$ et $G^{(2)}$. On peut tout d'abord calculer la probabilité $w^{(2)}$ de photodétection double. Le produit des deux opérateurs champs $E^+(\vec{r}, t)$ qui apparait dans l'expression de $G^{(2)}$ va faire intervenir des produits d'opérateurs d'annihilation $a_{\vec{k}\vec{\varepsilon}}\, a_{\vec{k}'\vec{\varepsilon}'}$; en utilisant l'identité :

$$a_{\vec{k}\vec{\varepsilon}}\, a_{\vec{k}'\vec{\varepsilon}'} |k\rangle = 0 \qquad (I-36)$$

../..

on montre que $w^{(2)}$ est identiquement nul, ce qui caractérise un état à un seul photon.

b) Interférences à un seul photon

Afin de déterminer la fonction $G^{(1)}$ qui va caractériser la visibilité des franges d'interférences, il est commode de calculer d'abord :

$$\langle 0 | E^{+}(r_1, t_1) | \psi \rangle = K \sum_k \xi(\omega) \frac{e^{-i\omega \tau_1}}{\omega - \omega_o + i \Gamma/2}$$

où $\tau_1 = (t_1 - t_0 - \frac{z_1}{c})$ joue le rôle d'un temps retardé.

En transformant la somme discrète en intégrale, (cette procédure sera détaillée dans le § I-B) on obtient en omettant la constante multiplicative :

$$\langle 0 | E^{+}(\tau_1) | \psi \rangle = H(\tau_1) \, e^{-(i\,\omega_o + \Gamma/2)\tau_1}$$

où l'argument $(\vec{r}_1, t_1)$ a été remplacé par τ_1, et $H(\tau_1)$ est la fonction de Heaviside. On en déduit :

$$G^{(1)}(\tau_1, \tau_2) = H(\tau_1)\, H(\tau_2)\, e^{i\omega_o(\tau_1 - \tau_2)}\, e^{-(\tau_1 + \tau_2)\Gamma/2} \qquad \text{(I-37-a)}$$

$$G^{(1)}(\tau_1, \tau_1) = H(\tau_1)\, e^{-\Gamma \tau_1} \qquad \text{(I-37-b)}$$

Ces fonctions décrivent un champ non stationnaire, le paramètre t_o jouant le rôle d'un instant d'émission. Nous verrons dans le § I-B comment préparer expérimentalement un tel état ; la valeur de t_o sera alors déterminée par la procédure expérimentale, et on pourra observer en particulier la décroissance exponentielle de la fonction $G^{(1)}(\tau_1, \tau_1)$.

c) Moyenne sur l'instant d'émission

Considérons maintenant la situation plus fréquente où l'instant t_o n'est pas déterminé par la méthode de préparation employée. On doit alors moyenner sur t_o, et on obtient une fonction de cohérence du premier ordre stationnaire,

ne dépendant que de la variable τ :

$$\tau = \tau_1 - \tau_2 = (t_1 - t_2) - (\frac{z_1 - z_2}{c}) \qquad (I-38)$$

On obtient ainsi, en omettant la constante multiplicative :

$$G_S^{(1)}(\tau) = \exp\left[i\omega_o \tau - \frac{\Gamma}{2} |\tau|\right] \qquad (I-39)$$

où l'indice S signifie stationnaire, et la dépendance en $|\tau|$ résulte de l'intégration de l'eq. I-37-a.

Le taux de comptage $w_s^{(1)}(\tau)$, mesuré à la sortie d'un interféromètre, est alors obtenu en reportant (I-39) dans (I-26) :

$$w_s^{(1)}(\tau) = \frac{1}{2} (1 + e^{-\Gamma |\tau|/2} \cos \omega_o \tau) \qquad (I-40)$$

Le contraste des franges $C = e^{-\Gamma |\tau|/2}$ diminue donc exponentiellement lorsque la différence de marche $\delta = c\tau$ augmente.

Ce résultat est associé dans une théorie semi-classique à l'image bien connue de "trains d'ondes" oscillants amortis exponentiellement ; cette image correspond en effet à la valeur de $G^{(1)}(\tau_1, \tau_1)$ trouvée précèdemment :

$$G^{(1)}(\tau_1, \tau_1) = H(\tau_1)\, e^{-\Gamma \tau_1} \qquad (I-41)$$

décrivant l'amortissement exponentiel d'une intensité lumineuse. Les difficultés apparaissent lorsqu'on veut utiliser ce modèle de trains d'ondes pour calculer le taux de comptage double $w^{(2)}$. Le raisonnement classique consiste à écrire que ce taux est proportionnel au produit des intensités lumineuses $G^{(1)}(\tau_1, \tau_1)\, G^{(1)}(\tau_2, \tau_2)$, moyenné sur l'instant d'émission t_o ; ce produit n'étant évidemment pas nul, il sera impossible de retrouver le résultat quantique $w^{(2)} = 0$.

Pour une même fonction de corrélation d'amplitude $G^{(1)}$, les théories classiques et quantiques prédisent donc des fonctions de corrélation d'intensité $G^{(2)}$ très différentes ; ce désaccord essentiel trouve évidemment son origine dans le caractère opératoriel des champs quantiques, et en particulier dans la relation (I-36).

../..

Remarques :

- On peut se demander à quoi correspond la notion de contraste des franges lorsqu'un seul photon est mis en jeu ; en fait, la mesure de C, comme celle de $w^{(1)}$, suppose que l'on répète un grand nombre d'expériences, en préparant chaque fois le champ dans le même état $|\psi\rangle$ défini par l'éq. (I-35).

- Nous avons étudié dans ce paragraphe un état non stationnaire $|\psi\rangle$, et un état stationnaire représenté par un mélange statistique correspondant à différentes valeurs du paramètre t_o. Dans les deux cas, C décroit exponentiellement avec $|\tau_1 - \tau_2|$, la constante de temps étant $2/\Gamma$. On peut donc attribuer aux états "multimodes" à un seul photon considérés ici un temps de cohérence $\tau_c \sim 2/\Gamma$.

- D'après l'eq. (I-37), la fonction de cohérence du 1er ordre dans l'état $|\psi\rangle$ vérifie la relation :

$$G^{(1)}(\tau_1, \tau_2) = \langle\psi| E^-(\tau_1) |0\rangle \langle 0| E^+(\tau_2) |\psi\rangle \qquad (I-42)$$

Une telle factorisation de $G^{(1)}$ correspond à la définition de la cohérence du premier ordre au sens de Glauber ; on trouve donc parfois dans la littérature l'affirmation selon laquelle un état pur à un seul photon est parfaitement cohérent[24]. En fait, l'éq. (I-42) est une condition nécessaire mais non suffisante pour que le contraste des interférences soit égal à un ; en particulier, pour l'état $|\psi\rangle$, $G^{(1)}(\tau_1, \tau_1)$ et $G^{(1)}(\tau_2, \tau_2)$ ne sont pas égaux dans l'éq. (I-33) et C diminue bien exponentiellement avec $(\tau_1 - \tau_2)$, ce qui permet de définir τ_c. Remarquons enfin que, pour le mélange statistique, $G_S^{(1)}(\tau_1, \tau_2)$ ne peut pas s'écrire sous la forme factorisée (I-42).

d) Etats à un seul photon et source multiatomique

La situation décrite par l'état $|\psi\rangle$ lorsque t_o est inconnu ne doit pas être confondue avec celle décrivant un ensemble d'atomes émettant à des instants aléatoires[29, 30]. Dans ce cas, le nombre de photons mis en jeu n'est pas limité à un, et le taux de comptage double $\bar{w}^{(2)}(0)$ va inclure des termes provenant de deux photons émis par deux atomes différents.

Dans l'hypothèse, très généralement vérifiée, de fluctuations poissonniennes du nombre d'atomes émetteurs autour d'une valeur moyenne $\bar{n}$, on peut montrer que l'on obtient[6] :

$$\bar{w}^{(2)}(0) \geq \left[\bar{w}^{(1)}(0)\right]^2 \qquad (I-43)$$

où $\bar{w}^{(1)}(0)$ correspond à la probabilité de détection simple pour la source multi-atomique.

Le taux de comptage double pour une source fluctuante obéit donc de nouveau à l'inégalité classique (I-32) : les contributions à plusieurs atomes ont fait totalement disparaitre le phénomène d'anticorrélation. Remarquons par contre, que le taux de comptage $\bar{w}^{(1)}(\tau)$ à la sortie d'un interféromètre est donné par (les atomes émetteurs sont supposés immobiles) :

$$\bar{w}^{(1)}(\tau) = \bar{n}\, w_s^{(1)}(\tau) \qquad (I-44)$$

où $w_s^{(1)}(\tau)$ est donné par la relation (I-40).

On peut donc constater sur cet exemple simple que les contributions à plusieurs atomes ont des effets très différents sur $\bar{w}^{(1)}$ et $\bar{w}^{(2)}$: alors que $\bar{w}^{(1)}$ n'est modifié que par une constante multiplicative n'affectant pas le contraste des franges, $\bar{w}^{(2)}$ perd les propriétés spécifiquement quantiques qui caractérisaient l'état "à un seul photon". Pour "préparer" un tel état, le point essentiel ne sera donc pas d'avoir peu d'atomes excités en moyenne (source atténuée), mais de pouvoir isoler l'émission d'un atome unique ; nous verrons qu'une cascade radiative fournit une telle possibilité.

e) Conclusion

En conclusion de cette discussion, on peut insister sur la grande analogie entre les descriptions classiques et quantiques des phénomènes d'interférences ; la théorie ondulatoire classique a en effet été conçue essentiellement pour rendre compte de ces phénomènes. Les insuffisances de cette théorie apparaissent lorsqu'on s'intéresse à d'autres propriétés de la lumière, qui sont des fonctions du second ordre de l'intensité lumineuse ; on peut citer les mesures de corrélations d'intensités, et les fluctuations statistiques dans les processus de photodétections.

../..

Nous avons introduit en particulier la notion d'anticorrélation, qui correspond à la possibilité purement quantique d'isoler un photon unique ; dans une source ordinaire, l'effet d'anticorrélation est masqué par les fluctuations du nombre d'atomes émetteurs, et le champ produit ne donne lieu à aucun effet entrant en conflit direct avec la théorie semi-classique.

Dans les paragraphes suivants, nous allons calculer les fonctions de corrélations correspondant à l'excitation d'une cascade radiative dans une source multiatomique ; nous verrons dans le Chapitre II qu'il sera alors possible d'observer expérimentalement l'effet d'anticorrélation, car la cascade va en fait nous fournir un moyen pour isoler les processus à un seul atome.

I-B - CALCUL DES FONCTIONS DE CORRELATIONS DU CHAMP EMIS PAR UNE CASCADE RADIATIVE

I-B-1 - Calcul du champ diffusé

a) Introduction et hypothèses

La configuration qui sera utilisée dans ce travail est représentée sur la Figure I-3 : une cascade radiative e → r → f est excitée par un processus à deux photons $\hbar\omega'$ et $\hbar\omega''$. Les longueurs d'ondes des deux photons émis $\hbar\omega_A$ et $\hbar\omega_B$ sont respectivement λ_A = 551.3 nm et λ_B = 422.7 nm, correspondant aux transitions $4p^2\ {}^1S_o \rightarrow 4s\ 4p\ {}^1P_1 \rightarrow 4s^2\ {}^1S_o$ du Calcium 40.

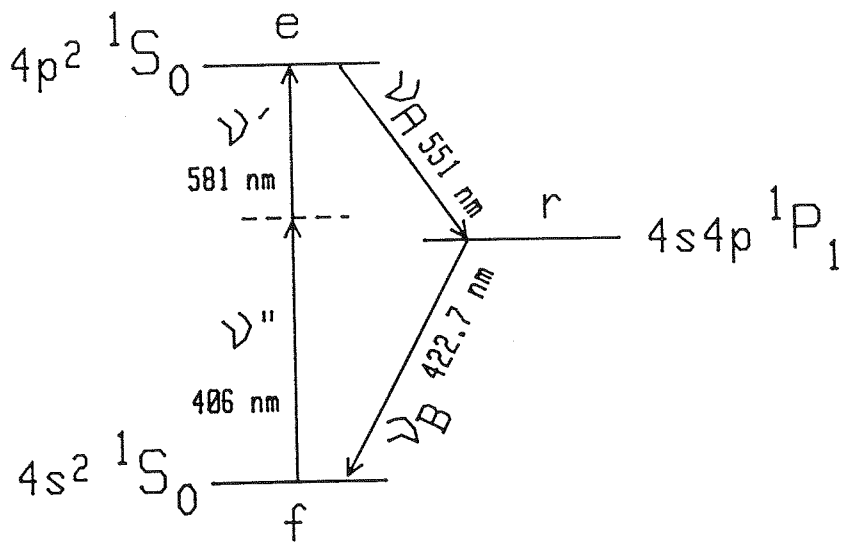


Figure I-3 : Cascade radiative du Calcium 40 utilisée dans ce travail. L'excitation à deux photons (ν', ν'') peuple le niveau $4p^2\ {}^1S_o$, qui se désexcite spontanément en émettant ν_A et ν_B.

Plusieurs méthodes peuvent être utilisées pour calculer le taux d'émission de la cascade et les fonctions de corrélations du champ émis ; dans ce paragraphe, nous utiliserons un développement perturbatif du champ diffusé par un atome, en ne conservant que les termes conduisant à l'apparition de la paire ($\hbar\omega_A$, $\hbar\omega_B$) à l'ordre le plus bas. Cette approche est justifiée pour une excitation faible de la cascade radiative ; en particulier, nous négligerons toute excitation directe

../..

du niveau r par un seul des deux lasers. Nous verrons plus loin que ces hypothèses sont très bien vérifiées dans l'expérience réelle.

Des calculs très similaires à celui présenté ici ont déjà été effectués dans les thèses de J. Dalibard[25] et A. Aspect[26] ; notre calcul est une généralisation de celui de la Réf. 26 au cas où la dégénérescence du niveau intermédiaire de la cascade est levée par un champ magnétique. De plus, nous calculerons à partir de la fonction d'ordre décrivant la lumière diffusée, la fonction de corrélation du *champ* diffusé, qui nous sera utile pour décrire une expérience d'interférences utilisant la lumière émise par la cascade (Chapitre III). Des justifications plus détaillées du formalisme et des références à la théorie des collisions pourront être trouvées dans la Réf. 25.

b) Principe du calcul

L'état initial du système atome plus champs lasers est décrit par le vecteur d'état :

$$|\psi\rangle = |f\rangle\ |N', \vec{k}', \vec{\varepsilon}'\rangle\ |N'', \vec{k}'', \vec{\varepsilon}''\rangle \qquad (I\text{-}45)$$

correspondant à l'atome dans son état fondamental, et à N' (resp. N") photons présents dans le mode laser ($\vec{k}'$, $\vec{\varepsilon}'$) (resp. $\vec{k}''$, $\vec{\varepsilon}''$).

Le couplage atome laser sera supposé nul au temps $t = -\infty$, puis branché adiabatiquement sur une échelle de temps T très lente à l'échelle des temps atomiques, et enfin débranché adiabatiquement de $t = 0$ à $t = +\infty$ sur la même échelle de temps T. Ce branchement et débranchement adiabatique simule le "passage" des paquets d'ondes laser sur l'atome, et permet de se ramener à un état final où l'atome est retombé dans son état fondamental, que nous supposerons non dégénéré. On peut ainsi calculer le vecteur d'état du champ après la "collision" sous forme d'un développement perturbatif :

$$|\psi_{diff}\rangle = |\psi^{(0)}_{inc}\rangle + |\psi^{(1)}\rangle + |\psi^{(2)}\rangle \qquad (I\text{-}46)$$

Le premier terme du développement correspond à l'état initial du champ. Le second terme (ordre 1) correspond à des processus où un seul photon laser est

../..

diffusé ; la conservation de l'énergie impose alors que le photon diffusé ait la même longueur d'onde que le laser (diffusion Rayleigh). En plaçant devant les détecteurs des filtres aux longueurs d'ondes atomiques λ_A et λ_B, on élimine toute contribution de ce terme aux signaux observés. Le troisième terme (ordre 2) contient des termes de double diffusion Rayleigh qui seront éliminés par les filtres, des termes où deux photons lasers à chacune des fréquences ω' et ω'' sont diffusés, et enfin le terme qui va nous intéresser :

$$|\psi^{(2)}_{\text{inél.}}> = \sum_{\lambda_a \lambda_b} S_2(\lambda_a, \lambda_b) \; |(N' - 1)\, \lambda', (N'' - 1)\, \lambda'', \lambda_a, \lambda_b> \qquad (I-47)$$

où λ_a, λ_b, λ' et λ'' sont les notations abrégées pour les modes $(\vec{k}_a\ \vec{\varepsilon}_a)$, $(\vec{k}_b, \vec{\varepsilon}_b)$, $(\vec{k}', \vec{\varepsilon}')$ et $(\vec{k}'', \vec{\varepsilon}'')$.

Remarque : La diffusion inélastique de deux photons lasers de fréquence ω'' conduit à l'apparition de paires $(2\omega'' - \omega_B, \omega_B)$[27]. Nous montrerons plus loin que ces termes sont négligeables devant le processus considéré ici si $(\omega'' - \omega_B)$ est très supérieur au désaccord $(\omega' + \omega'' - \omega_A - \omega_B)$, et aux largeurs naturelles des niveaux mis en jeu.

Finalement, nous sommes ramenés au calcul de l'amplitude de diffusion $S_2(\lambda_a, \lambda_b)$, dont toutes les quantités qui nous intéressent pourront être extraites.

c) Calcul de $S_2(\lambda_a, \lambda_b)$

$S_2(\lambda_a, \lambda_b)$ peut être calculé comme une somme de diagrammes représentant les différents "chemins" de diffusion, pour lesquels les états initial et final de l'atome sont tous deux l'état fondamental $|f>$ non dégénéré. Le calcul est particulièrement simple lorsque l'état excité $|e>$ est également non dégénéré, ce qui est le cas dans notre expérience ($|e>$ et $|f>$ sont deux niveaux ^1S_o). Nous nous restreindrons désormais à cette situation ; remarquons par contre, que le niveau intermédiaire $|r>$ correspondra à plusieurs sous niveaux $|r_i>$ voisins (en pratique, les trois sous-niveaux Zeeman $m = 0, \pm 1$ d'un niveau $^1P_1$).

Dans ce cas, 36 diagrammes doivent être considérés, obtenus à partir de celui de la Figure I-4 en permutant λ' et λ'', λ_a et λ_b, et en utilisant les trois valeurs possibles des indices m et m'.

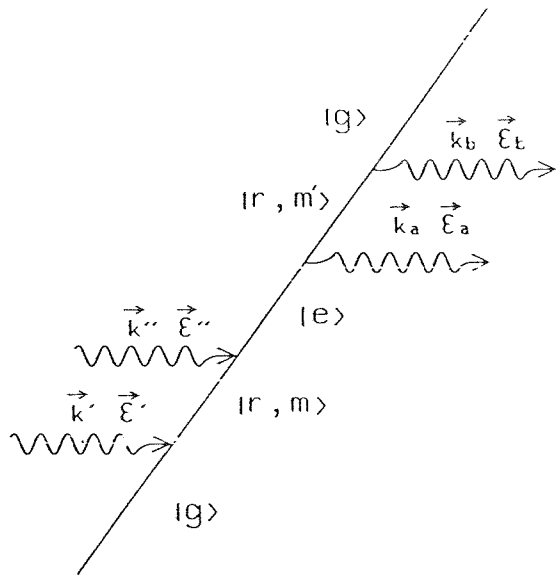


Figure I-4 : Diagramme représentant la diffusion inélastique de deux photons lasers, via les niveaux intermédiaires $|r,m\rangle$, $|e\rangle$ et $|r,m'\rangle$.

Remarques : D'autres diagrammes possibles ont été négligés ou omis ; en particulier, l'absorption non-résonante de deux photons ω' ou ω'' conduisant au voisinage du niveau $|e\rangle$, ou encore processus "virtuels" conduisant à l'apparition de déplacement lumineux ("light-shift").

Dans l'expression de $S_2(\lambda_a, \lambda_b)$ apparaissent les éléments de matrice du couplage atome-champ, correspondant aux différents "vertex" du diagramme de la Fig. I-4. Il suffit ici de considérer un hamiltonien de couplage dipolaire électrique :

$$V = - \vec{D} \cdot \vec{E}$$

où $\vec{D}$ est l'opérateur dipôle atomique et $\vec{E}$ l'opérateur champ électrique au point où se trouve l'atome.

Les éléments de matrice de V vont s'exprimer en fonction des éléments de matrice atomiques $\langle e | \vec{D} | r_i \rangle$ et $\langle r_j | \vec{D} | f \rangle$; on peut introduire les composantes standards de l'opération $\vec{D}$ et de la polarisation $\vec{\varepsilon}$:

$$D^{+1} = - \frac{1}{\sqrt{2}} (D_x + i D_y) \qquad D^0 = D_z \qquad D^{-1} = \frac{1}{\sqrt{2}} (D_x - i D_y) \qquad \text{(I-48-a)}$$

$$\varepsilon^{+1} = - \frac{1}{\sqrt{2}} (\varepsilon_x + i \varepsilon_y) \qquad \varepsilon^0 = \varepsilon_z \qquad \varepsilon^{-1} = \frac{1}{\sqrt{2}} (\varepsilon_x - i \varepsilon_y) \qquad \text{(I-48-b)}$$

../..

et on a :

$$\vec{\varepsilon} \cdot \vec{D} = \sum_q (-1)^q \varepsilon^q D^{-q} = \sum_q \varepsilon^q (D^q)^* \qquad (I\text{-}48\text{-}c)$$

En utilisant le théorème de Wigner-Eckart, on obtient alors :

$$\langle e | \vec{D} \cdot \vec{\varepsilon}' | r, m \rangle \langle r, m | \vec{D} \cdot \vec{\varepsilon}'' | f \rangle = \left(\frac{d_A \, \varepsilon'^m}{\sqrt{3}}\right) \cdot \left(\frac{d_B \, \varepsilon''^m}{\sqrt{3}}\right)^* \qquad (I\text{-}49)$$

où $d_A = \langle e | | D | | r \rangle$ et $d_B = \langle f | | D | | r \rangle$ sont les éléments de matrice réduits du dipôle.

Les éléments de matrice du champ s'écrivent simplement :

$$\langle (N-1)\lambda \; | \vec{E}^+ | N \; \lambda \rangle = i \sqrt{N} \; \xi(\omega) \; \vec{\varepsilon} \qquad (I\text{-}50)$$

où N est le nombre de photons dans le mode λ et $\xi(\omega) = (\hbar\omega/2\varepsilon_o V)^{1/2}$ (notations introduites dans le paragraphe I-A).

Nous noterons ω_{Am} et ω_{Bm} les fréquences angulaires correspondant respectivement aux transitions $|e\rangle \rightarrow |r_m\rangle$ et $|r_m\rangle \rightarrow |f\rangle$. Remarquons que $\omega_{Am} + \omega_{Bm} = \omega_A + \omega_B$ est indépendant de m. Enfin, nous poserons $\Gamma_e = 1/\tau_e$ et $\Gamma_r = 1/\tau_r$, où τ_e et τ_r sont les durées de vie des niveaux $|e\rangle$ et $|r_m\rangle$. L'amplitude de diffusion s'écrit alors :

$$S_2(\lambda_a, \lambda_b) = 2i\Pi \frac{\delta(\hbar(\omega_a + \omega_b - \omega' - \omega''))}{\hbar(\omega' + \omega'' - \omega_A - \omega_B) + i\hbar\Gamma_e/2}$$

$$\times \sqrt{N'} \sqrt{N''} \, \xi(\omega') \, \xi(\omega'') \, \xi(\omega_a) \, \xi(\omega_b) \, \frac{|d_A|^2}{3} \, \frac{|d_B|^2}{3}$$

$$\times \sum_m \left\{ \frac{\varepsilon'^m \cdot (\varepsilon''^m)^*}{\hbar(\omega'' - \omega_{Bm}) + i\hbar\Gamma_r/2} + \frac{(\varepsilon'^m)^* \cdot \varepsilon''^m}{\hbar(\omega' - \omega_{Bm}) + i\hbar\Gamma_r/2} \right\}$$

$$\times \sum_k \left\{ \frac{\varepsilon_a^k \cdot (\varepsilon_b^k)^*}{\hbar(\omega_a - \omega_{Bk}) + i\hbar\Gamma_r/2} + \frac{(\varepsilon_a^k)^* \cdot \varepsilon_b^k}{\hbar(\omega_b - \omega_{Bk}) + i\hbar\Gamma_r/2} \right\} \qquad (I\text{-}51)$$

../..

où les ε^k sont les composantes standards de la polarisation $\vec{\varepsilon}$ des modes considérés. On vérifie que l'on a bien 6 x 6 = 36 termes dans le développement.

Bien que cette expression soit relativement lourde, sa structure est extrêmement simple. La première ligne comporte une fonction de Dirac traduisant la conservation de l'énergie, et un dénominateur décrivant le profil Lorentzien de l'excitation à deux photons. Les facteurs de la seconde ligne proviennent des éléments de matrice du couplage. Les troisième et quatrième termes correspondent respectivement aux processus d'excitation et d'émission, qui apparaissent complétement séparés grâce à la non-dégénérescence du niveau $|e\rangle$.

En utilisant le fait que $\Delta_L = |\omega'' - \omega_B|$ est grand devant Γ_r et petit devant $|\omega' - \omega_B|$, et en définissant les fréquences de Rabi Ω' et Ω'' par la relation :

$$\frac{\hbar\Omega}{2} = \sqrt{N}\ \xi(\omega)\ \frac{|d|}{\sqrt{3}} \qquad (I-52)$$

l'expression de l'amplitude de diffusion se simplifie :

$$S_2(\lambda_a, \lambda_b) = \frac{2i\Pi}{\hbar^2}\ \frac{\delta(\omega_a + \omega_b - \omega' - \omega'')}{(\omega' + \omega'' - \omega_A - \omega_B) + i\,\Gamma_e/2}$$

$$\times\ \frac{\Omega'\Omega''}{\Delta_L}\ \frac{\vec{\varepsilon}' \cdot \vec{\varepsilon}''}{4}\ \xi(\omega_a)\ \xi(\omega_b)\ \frac{|d_A| \cdot |d_B|}{3}$$

$$\times \sum_m \left\{ \frac{\varepsilon_a^m \cdot (\varepsilon_b^m)^*}{(\omega_a - \omega_{Bm}) + i\,\Gamma_r/2} + \frac{(\varepsilon_a^m)^* \cdot \varepsilon_b^m}{(\omega_b - \omega_{Bm}) + i\,\Gamma_r/2} \right\} \qquad (I-53)$$

Nous allons utiliser cette expression pour calculer d'abord la probabilité d'excitation de la cascade par unité de temps, puis les fonctions de corrélations qui interviendront dans nos expériences.

d) Probabilité de diffusion

La probabilité pour qu'au temps t = + ∞, le champ soit dans un état correspondant à la diffusion de deux photons dans les modes λ_a et λ_b est donnée

par :

$$P_2(\lambda_a, \lambda_b) = |\langle (N'-1)\ \lambda', (N''-1)\ \lambda'', \lambda_a, \lambda_b\ |\psi\rangle|^2$$

$$= |S_2\ (\lambda_a, \lambda_b)\ |^2 \qquad (I-54)$$

Le carré de la fonction de Dirac apparaissant dans cette expression est éliminé en introduisant une pseudo-distribution de largeur $2\Pi/T$ et de hauteur $T/2\Pi$; on a alors :

$$|\delta(\omega)|^2 = \frac{T}{2\Pi}\ \delta(\omega) \qquad (I-55)$$

et la quantité $(P_2(\lambda_a, \lambda_b)/T)$ est la probabilité par unité de temps de diffusion de la paire (λ_a, λ_b).

Pour obtenir la probabilité totale de diffusion, on doit sommer cette quantité sur tous les états finals accessibles, c'est à dire sur tous les modes du champ tels que $\omega_a + \omega_b = \omega' + \omega''$.

On obtient finalement après des calculs un peu longs la probabilité d'excitation de la cascade :

$$p_2 = \frac{\Gamma_e}{4}\ (\vec{\varepsilon}' \cdot \vec{\varepsilon}'')^2\ \left(\frac{\Omega'\ \Omega''}{\Gamma_e\ \Delta_L}\right)^2\ \frac{(\Gamma_e/2)^2}{(\Gamma_e/2)^2 + (\omega_A + \omega_B - \omega' - \omega'')^2} \qquad (I-56)$$

Les deux premiers facteurs représentent la probabilité d'excitation au maximum du profil Lorentzien représenté par le troisième facteur ; ce maximum est évidemment atteint lorsque la somme des énergies des photons lasers est égale à l'écart d'énergie entre les niveaux $|e\rangle$ et $|f\rangle$, la largeur de la résonance étant égale à Γ_e.

Remarque :

On peut comparer cette probabilité à la probabilité d'émission d'une paire $(2\omega'' - \omega_B, \omega_B)$ qui est [25,27] :

$$p_R = \Gamma_r\ \left(\frac{\Omega''}{2\Delta_L}\right)^4$$

../..

Si l'on suppose les puissances laser telles que $\Omega' \sim \Omega''$, on aura pour $\omega' + \omega'' = \omega_A + \omega_B$:

$$\frac{p_R}{p_2} \sim \frac{\Gamma_e \, \Gamma_r}{(\Delta_L)^2} \ll 1$$

ce qui confirme bien le fait que l'émission de deux photons (ω_A, ω_B) est le processus dominant dans notre configuration.

- Dans l'expérience réelle, les atomes d'un jet atomique coupent à angle droit les faisceaux lasers excitateurs. Divers processus vont alors contribuer à élargir le profil d'excitation en diminuant la valeur au maximum (l'intégrale du profil d'excitation restant inchangée[26]) :

- *. temps de transit des atomes dans les faisceaux lasers (élargissement homogène).*
- *. effet Doppler résiduel, dû au fait que lorsque $\omega' \neq \omega''$ la vitesse transverse des atomes dans le jet joue un rôle non négligeable.*
- *. jitter des lasers, conduisant à des variations de $(\omega' + \omega'')$ qui peuvent être supérieures à Γ_e dans une gamme de fréquence de l'ordre du kHz.*

En pratique, la largeur observée est de l'ordre de 4 à 5 fois celle de la Lorentzienne, et le taux d'excitation est diminué du même facteur.

I-B-2 - Calcul des fonctions de corrélations

a) Principe

Le signal de corrélation à deux temps correspondant à la détection de ν_A au point $\vec{r}_A$ entre t et t + dt, et à la détection de ν_B en $\vec{r}_B$ entre t' et t' + dt' est donnée par les formules introduites au § I-A :

$$d^2 P_{AB} = P_{AB}(t, t') \, dt \, dt' \qquad \text{(I-57-a)}$$

$$P_{AB}(t, t') = C \langle \psi | E^-_A(\vec{r}_A, t) \, E_B^-(\vec{r}_B, t') \, E_B^+(\vec{r}_B, t') \, E_A^+(\vec{r}_A, t) \, |\psi\rangle \qquad \text{(I-57-b)}$$

où C est une constante multiplicative, et $|\psi\rangle$, le vecteur d'état du champ diffusé.

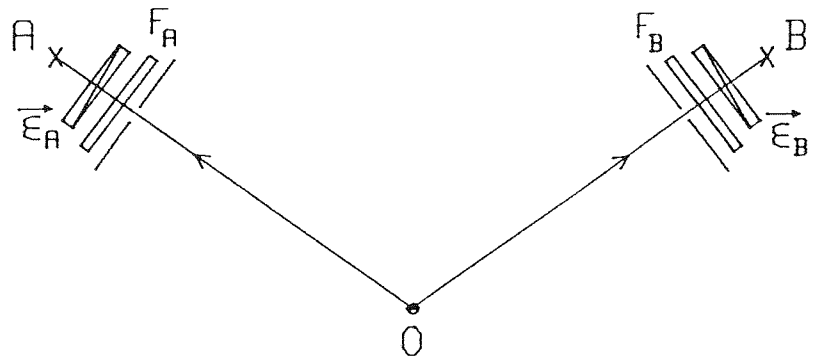


Figure I-5 : Les photons diffusés en 0 sont filtrés en direction, en fréquence (F_A et F_B) et en polarisation ($\vec{\varepsilon}_A$ et $\vec{\varepsilon}_B$) avant d'être détectés aux points $\vec{r}_A$ et $\vec{r}_B$.

Nous supposerons dans la suite des calculs que l'atome diffuseur est situé à l'origine 0 des coordonnées, et que des diaphragmes isolent des angles solides de détections infinitésimaux autour des directions ($\vec{r}_A$, $\vec{r}_B$). De plus les polariseurs dirigés suivant $\vec{\varepsilon}_A$, $\vec{\varepsilon}_B$ et des filtres centrés sur ν_A, ν_B seront placés devant les détecteurs (Fig. I-5). Dans ces conditions, l'opérateur champ E_A^+ intervenant dans l'éq. (I-57) prend la forme suivante :

$$E_A^+(\vec{r}_A, t) = i \sum_{\lambda} \xi(\omega)\ \vec{\varepsilon} \cdot \vec{\varepsilon}_A\ g_A(\vec{k})\ e^{i(\vec{k}.\vec{r}_A - \omega t)}\ a_\lambda \qquad (I-58)$$

où λ désigne le mode ($\vec{k}$. $\vec{\varepsilon}$). Le produit scalaire $\vec{\varepsilon} \cdot \vec{\varepsilon}_A$ est la fonction $g_A(\vec{k})$ correspondent à des fonctions de filtrage en polarisation, en direction, et en fréquence ; nous noterons $g_A(\omega)$ la fonction de filtrage en fréquence. L'opérateur $E_B^+(\vec{r}, t)$ est donné par une expression équivalente, faisant intervenir $\vec{\varepsilon}_B$ et $g_B(\vec{k})$.

Nous avons vu que le seul terme de $|\psi\rangle$ contribuant au signal observé est donné par :

$$|\psi^{(2)}_{inél}\rangle = \sum_{\lambda_a}\sum_{\lambda_b} S_2(\lambda_a, \lambda_b)\ |(N' - 1)\ \lambda', (N'' - 1)\lambda'', \lambda_a, \lambda_b\rangle|$$

../..

En remarquant que :

$$a_{\lambda a}\, a_{\lambda b}\, |\psi^{(2)}_{inél.}\rangle = S_2(\lambda_a, \lambda_b)\, |(N' - 1)\, \lambda', (N'' - 1)\, \lambda''\rangle \qquad (I\text{-}59)$$

on obtient :

$$P_{AB}(t, t') = |\alpha_{AB}(t, t')|^2 \qquad (I\text{-}60\text{-}a)$$

avec la définition :

$$\alpha_{AB}(t, t') = \sum_{\lambda_a\, \lambda_b} S_2(\lambda_a\, \lambda_b)\, \xi(\omega_a)\, \xi(\omega_b)\, g_A(\omega_a)\, g_B(\omega_b)$$

$$(\vec{\varepsilon}_a \cdot \vec{\varepsilon}_A)(\vec{\varepsilon}_b \cdot \vec{\varepsilon}_B)\, e^{i(\vec{k}_a \vec{r}_A - \omega_a t)}\, e^{i(\vec{k}_b \vec{r}_B - \omega_b t')} \qquad (I\text{-}60\text{-}b)$$

Avant de calculer cette expression, nous allons introduire une autre fonction de corrélation, qui correspond à la situation expérimentale où l'on place un interféromètre à division d'amplitude (Michelson ou Mach-Zehnder) avant le photodétecteur à la fréquence ν_B.

Considérons en effet le schéma de la Figure I-6, qui généralise celui de la Figure I-5 en introduisant un interféromètre sur le faisceau B. La probabilité de détection au point $\vec{r}_B$ s'écrit :

$$P_{AB}(t, t''') = C\, \langle\psi\, |E_A^-(\vec{r}_A, t)\, E_C^-(\vec{r}_B, t''')\, E_C^+(\vec{r}_B, t''')\, E_A^+(\vec{r}_A, t)\, |\psi\rangle$$

où on a posé :

$$E_C^+(r_B, t''') = \frac{1}{2}\left[E_B^+(r_B, t') + E_B^+(r_B, t'')\right]$$

Le champ E_C^+ représente une superposition de deux valeurs du champ incident E_B^+, pris à des temps correspondant aux retards introduits par la propagation

dans l'interféromètre (cf. eq. I-25). Par analogie avec le calcul effectué dans le § I-A-3, on introduit alors la fonction de corrélation :

$$R_{AB}(t, t', t'') = C \langle\psi| E_A^-(\vec{r}_A, t)\, E_B^-(\vec{r}_B, t'')\, E_B^+(\vec{r}_B, t')\, E_A^+(\vec{r}_A, t) |\psi\rangle \quad (I-61)$$

Cette fonction est une généralisation de la fonction de cohérence du premier ordre de la lumière émise à la fréquence ν_B, à une situation expérimentale où les détections des photons ν_B en sortie de l'interféromètre sont effectuées en coïncidence avec celles des photons ν_A (Figure I-6). Nous reviendrons plus loin en détail sur cette situation.

En utilisant les eq. (I-60-b) et (I-61), on obtient :

$$R_{AB}(t, t', t'') = \alpha(t, t')\, \alpha^*(t, t'') \quad (I-62)$$

et le calcul de $\alpha_{AB}(t, t')$ nous donnera à la fois $P_{AB}(t, t')$ et $R_{AB}(t, t', t'')$.

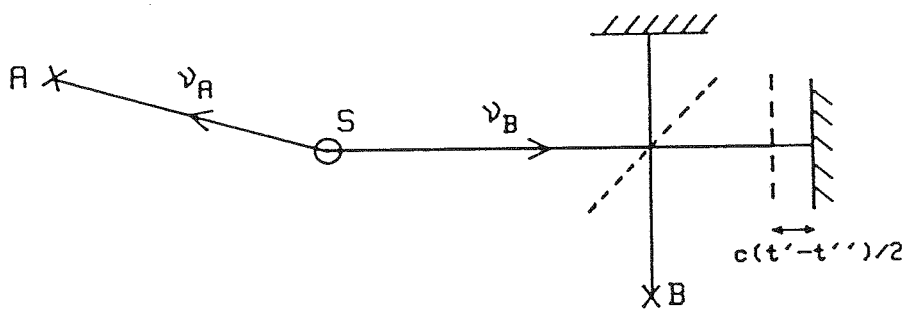


Figure I-6 : Lorsqu'on place sur le trajet du photon ν_B un interféromètre dont la différence de marche est $c(t' - t'')$, la fonction de corrélation caractérisant les interférences observées est $R_{AB}(t, t', t'')$.

b) Calcul de $\alpha_{AB}(t, t')$

Pour effectuer l'intégration sur λ_a, λ_b intervenant dans l'expression de α_{AB}, nous considérerons la situation suivante : l'atome est placé à l'origine 0 des coordonnées, et des diaphragmes isolent des angles de détection infinitésimaux autour des directions $\vec{r}_A$, $\vec{r}_B$ (Fig. I-6) ; on a alors :

$$\omega_a t - \vec{k}_a . \vec{r}_A = \omega_a (t - \frac{r_A}{c}) = \omega_a \tau_A \quad (I-63-a)$$

$$\omega_b t' - \vec{k}_b . \vec{r}_B = \omega_b (t' - \frac{r_B}{c}) = \omega_b \tau'_B \quad (I-63-b)$$

Nous supposerons les lasers accordés exactement à résonance, c'est-à-dire, tels que $\omega' + \omega'' = \omega_A + \omega_B$.

La sommation discrète sur les modes (λ_a, λ_b) est remplacée par une intégration, en utilisant la transformation usuelle :

$$\sum_{\vec{k}} \rightarrow \frac{V}{8\Pi^3} \iiint d^3 \vec{k}$$

Les fonctions de filtrages en direction que nous avons introduites permettent d'éviter l'intégration angulaire à ce stade ; on effectuera donc seulement l'intégration sur ω, l'élément différentiel étant $(\omega^2/c^3)\, d\omega$.

En tenant compte du fait que $\xi(\omega)$ et $g(\omega)$ varient lentement sur une largeur Γ_r, on obtient en omettant une constante multiplicative :

$$\alpha_{AB} = \sum_{\vec{\varepsilon}_a} \sum_{\vec{\varepsilon}_b} \iint d\omega_a\, d\omega_b\, \delta(\omega_a + \omega_b - \omega_A - \omega_B)\, (\vec{\varepsilon}_A . \vec{\varepsilon}_a)\, (\vec{\varepsilon}_B . \vec{\varepsilon}_b)$$

$$\times \sum_m \frac{(\varepsilon_a^m)^* .\, \varepsilon_b^m}{(\omega_b - \omega_{Bm}) + i\, \Gamma_r/2}\, e^{-i\, \omega_a\, \tau_A - i\, \omega_b\, \tau'_B}$$

où nous n'avons conservé que les termes résonants non éliminés par les filtres.

La sommation sur les polarisations s'effectue en choisissant pour $\vec{\varepsilon}_a$ (resp. $\vec{\varepsilon}_b$) deux polarisations respectivement parallèles et perpendiculaires à $\vec{\varepsilon}_A$ (resp. $\vec{\varepsilon}_B$). On obtient ainsi :

$$\alpha_{AB} = \iint d\omega_a\, d\omega_b\, \delta(\omega_a + \omega_b - \omega_A - \omega_B)$$

$$\times \sum_m \left\{ \frac{(\varepsilon_A^m)^* .\, \varepsilon_B^m}{(\omega_b - \omega_{Bm}) + i\, \Gamma r/2} \right\} e^{-i\, \omega_a\, \tau_A - i\, \omega_b\, \tau'_B}$$

Enfin, la sommation sur les fréquences s'effectue par un calcul d'intégrales par résidus, et fait apparaitre la fonction de Heaviside $H(\tau)$, où $\tau = \tau'_B - \tau_A$. Il est commode de poser :

$$\omega_{Bm} = \omega_B + m\, \omega_Z \qquad (I\text{-}64)$$

../..

où m = 0, ± 1, et où ω_Z est l'intervalle de fréquence entre sous-niveaux Zeeman du niveau J = 1. On obtient :

$$\alpha_{AB} = \left(\sum_m (\varepsilon_A^m)^* \cdot \varepsilon_B^m e^{-i m\omega_Z \tau}\right) e^{-i \omega_A \tau_A} e^{-i \omega_B \tau'_B} H(\tau) e^{-\Gamma_r \tau/2} \qquad (I\text{-}65)$$

Remarquons qu'en l'absence du champ magnétique, on obtient simplement :

$$\alpha^0_{AB} = (\vec{\varepsilon}_A \cdot \vec{\varepsilon}_B)\, e^{-i \omega_A \tau_A} e^{-i \omega_B \tau'_B} H(\tau)\, e^{-\Gamma_r \tau/2} \qquad (I\text{-}66)$$

c) Expression des fonctions de corrélation

En reportant l'équation (I-65) dans l'équation (I-60), et en utilisant l'intervalle de temps retardés τ plutôt que t et t', on obtient :

$$P_{AB}(\tau) = \left|(\varepsilon_{xA}\, \varepsilon_{xB} + \varepsilon_{yA}\, \varepsilon_{yB}) \cos \omega_Z \tau\right.$$

$$\left. + (\varepsilon_{xA}\, \varepsilon_{yB} - \varepsilon_{yA}\, \varepsilon_{xB}) \sin \omega_Z \tau + \varepsilon_{zA}\, \varepsilon_{zB}\right|^2 H(\tau)\, e^{-\Gamma_r \tau} \qquad (I\text{-}67)$$

où $(\varepsilon_x, \varepsilon_y, \varepsilon_z)$ sont les composantes des polarisations $\vec{\varepsilon}$, l'axe Oz étant par convention parallèle au champ magnétique.

Cette expression sera utilisée dans le Chapitre IV. Remarquons simplement ici que le signal de corrélation entre les photons ν_A et ν_B sera modulé à la fréquence ω_Z, à cause d'un effet d'interférence discuté dans le paragraphe suivant.

La fonction de corrélation $R_{AB}(t, t', t'')$ sera calculée dans le cas $\vec{B} = \vec{0}$, qui correspond à l'expérience qui sera décrite au chapitre III. En utilisant les temps retardés définis par les eq. (I-63), on obtient :

$$R_{AB}(\tau_A, \tau'_B, \tau''_B) = (\vec{\varepsilon}_A \cdot \vec{\varepsilon}_B)^2\, e^{-i\omega_B(\tau'_B - \tau''_B)}\, H(\tau'_B - \tau_A)\, H(\tau''_B - \tau_A)$$

$$\times \exp\left\{-\Gamma_r \left(\frac{\tau'_B + \tau''_B}{2} - \tau_A\right)\right\} \qquad (I\text{-}68)$$

Le produit de deux fonctions de Heaviside indique que les interférences ne peuvent apparaitre que lorsque les intervalles de temps retardés sont positifs pour

../..

les deux voies de l'interféromètre ; il est commode de définir :

$$\tau_B = \text{Inf}(\tau'_B, \tau''_B) \qquad \tau = \tau_B - \tau_A$$

$$\delta_B = c(\tau''_B - \tau'_B) \qquad (\delta_B \text{ est une différence de marche})$$

On obtient alors :

$$R_{AB} = (\vec{\varepsilon}_A \cdot \vec{\varepsilon}_B)^2 \, H(\tau) \, e^{-\Gamma_r \tau} \exp\left\{ i\omega_B \frac{\delta_B}{c} - \frac{\Gamma_r}{2} \left| \frac{\delta_B}{c} \right| \right\} \qquad (I\text{-}69)$$

Cette expression est à rapprocher de la fonction de cohérence du premier ordre d'un atome émetteur unique, souvent citée dans la littérature[6], et de la fonction correspondant à un "état à un seul photon" calculée dans le § I-A-5 :

$$g^{(1)}\left(\frac{\delta}{c}\right) = \exp\left\{ i\,\omega_o \frac{\delta}{c} - \frac{\Gamma}{2} \left| \frac{\delta}{c} \right| \right\} \qquad (I\text{-}70)$$

où les notations sont évidentes.

Cette expression de $g^{(1)}(\delta/c)$ est quelque peu ambigüe, car l'émission d'un atome unique n'est évidemment pas un phénomène stationnaire, et $g^{(1)}(\delta/c)$ doit également dépendre de l'instant de "préparation" de l'atome excité[28]. L'expérience de corrélation utilisant la cascade fournit un tel mode de "préparation" d'un atome unique dans un état excité. La non-stationnarité du processus d'émission apparait alors dans la fonction de Heaviside et le facteur $\exp(-\Gamma_r \tau)$ qui interviennent dans l'expression (I-69).

Nous utiliserons ces résultats pour calculer le contraste des phénomènes d'interférences dans le paragraphe I-C, en prenant en compte les contributions de tous les atomes de la source. Auparavant, nous allons donner quelques précisions sur la nature de l'état du champ "préparé" par la détection du premier photon de la cascade.

I-B-3 - Discussion : état du champ après la 1ère détection

a) Etats à un seul photon

Ce paragraphe est consacré à une interprétation du signal de corrélation P_{AB} à partir de l'état du champ "préparé" par la détection du premier photon.

Considérons en effet le signal de corrélation :

$$P_{AB} = \langle \psi \, | E_A^- \, E_B^- \, E_B^+ \, E_A^+ | \, \psi \rangle$$

où les dépendances spatio-temporelles $(\vec{r}_A, t)$ et $(\vec{r}_B, t')$ sont sous-entendues, et où on a :

$$|\psi\rangle = \sum_{\lambda_a \, \lambda_b} S_2(\lambda_a, \lambda_b) \, |\lambda_a, \lambda_b\rangle$$

On peut écrire :

$$P_{AB} = \langle \psi' | \, E_B^- \, E_B^+ \, |\psi'\rangle \qquad (I-71-a)$$

où on a posé :

$$|\psi'\rangle = E_A^+ \, |\psi\rangle \qquad (I-71-b)$$

L'équation (I-71-a) est identique à celle correspondant à la mesure de l'intensité à la fréquence ν_B, lorsque l'état du système est $|\psi'\rangle$. L'opérateur E_A^+ détruisant les photons des modes λ_a, $|\psi'\rangle$ sera un état multimode ne comportant qu'un seul photon dans chaque mode λ_b. Plus précisément, on obtient en utilisant toujours la configuration de détection de la Figure I-5 :

$$|\psi'\rangle = \kappa' \sum_{\lambda_b} \sum_{m} \frac{e^{-i(\omega_A + \omega_B - \omega_b)\,\tau_A}}{(\omega_b - \omega_B - m\omega_Z) + i\,\Gamma r/2} \, (\varepsilon_A^m)^* . \, \varepsilon_b^m \, |\lambda_b\rangle \qquad (I-72)$$

où $\tau_A = t - r_A/c$, et où les fonctions lentement variables de ω_b ont été incorporées à la constante κ'.

Cet état du champ est très proche de l'état (I-35) dont nous avons discuté les propriétés dans le paragraphe I-A-5, mais le paramètre t_o est remplacé par τ_A correspondant à l'émission du photon ν_A. La cascade radiative fournit donc un moyen concret pour préparer un état à un seul photon. Nous allons transposer la discussion du I-A-4 à la situation concrète considérée ici, en considérant d'abord la possibilité d'interférences à un seul photon, puis en généralisant cette notion pour

décrire un phénomène de battements quantiques dans la cascade radiative. Nous discuterons ensuite les propriétés spécifiquement quantiques de l'état $|\psi'\rangle$.

b) Interférences à un seul photon

En l'absence de champ magnétique, on obtient :

$$|\psi'\rangle = \kappa' \sum_{\lambda_b} \frac{e^{-i(\omega_A + \omega_B - \omega_b)\tau_A}}{\omega_b - \omega_B + i\,\Gamma_r/2} \vec{\varepsilon}_A \cdot \vec{\varepsilon}_b \, |\lambda_b\rangle \qquad (I-73)$$

La fonction R_{AB} définie dans le paragraphe précédent caractérise la cohérence du premier ordre du champ diffusée à la fréquence ν_B, conditionnée par la détection du photon ν_A. On peut donc considérer que cette fonction caractérise la cohérence du premier ordre dans l'état $|\psi'\rangle$, et joue le rôle de la fonction $G^{(1)}$ du § I-A-5. Il sera donc possible de réaliser une expérience d'interférences à un seul photon, en disposant en sortie d'un interféromètre un photodétecteur pour ν_B "déclenché" par la détection du photon ν_A (voir Figure I-6). Nous reviendrons en détail sur ce point dans les chapitres II et III.

L'interprétation la plus directe de ces interférences dans le cadre de la théorie quantique consiste à parler d'interférences entre les amplitudes de probabilités associées aux trajets dans chacun des "bras" de l'interféromètre[7]. Les opérateurs champs se propageant de façon analogue aux champs classiques[21], le déphasage entre les deux amplitudes sera relié à la différence de chemin optique par les mêmes relations qu'en optique ondulatoire classique.

c) Battements quantiques

Cette notion d'interférences entre chemins est bien sûr extrêmement générale, puisqu'elle constitue une des bases de la théorie quantique. En particulier, l'expression de α_{AB} (eq. I-65) peut être interprétée comme une somme d'amplitudes de probabilités[5], associées à la diffusion de deux photons lasers ω' et ω'' et à leur détection pour deux atomes détecteurs A et B ; l'état initial et l'état final de ce processus sont respectivement $|f, N'\lambda', N''\lambda'', f_A, f_B\rangle$ et $|f, (N'-1)\lambda', (N''-1)\lambda'', e_A, e_B\rangle$ ou e et f désignent les étas excité et fondamental des atomes.

../..

L'interférence entre les différents "chemins" (associés aux sous-niveaux Zeeman du niveau intermédiaire) apparaitra alors sous forme d'une modulation de $P_{AB}(\tau) = |\alpha_{AB}|^2$ en fonction de τ, à la fréquence angulaire ω_Z ; cette modulation est explicite dans l'eq. I-67.

Cette dépendance temporelle apparait également si l'on considère une mesure, résolue en temps, de la probabilité de détection dans l'état $|\psi'\rangle$ (eq. I-72) ; les différents chemins correspondant aux sous-niveaux Zeeman $|r, m\rangle$ interviennent alors dans le coefficient dont est affecté l'état $|\lambda_b\rangle$. Cette formulation est évidemmùent équivalente à la précédente sur le plan mathématique, mais l'effet d'interférence apparait alors directement dans la structure de l'état $|\psi'\rangle$. Cette situation présente de fortes analogies avec une expérience de battements quantiques , dans laquelle une impulsion laser "crée" une superposition cohérente dont on analyse l'évolution temporelle. Ici, l'impulsion laser est remplacée par la détection du premier photon de la cascade, qui "prépare" l'état $|\psi'\rangle$; on a donc dans ce cas, comme dans le § b) ci-dessus, un effet d'interférence mettant en jeu un état à un seul photon.

Remarque : Les caractéristiques précises du phénomène d'interférence sont fixées par le choix de l'orientation $\vec{\varepsilon}_A$ du polariseur lors de la détection de ν_A (voir Ch. IV). Le fait que ce choix puisse être effectué longtemps après l'émission des deux photons est liée à la non séparabilité quantique des deux photons ν_A et ν_B [26, 41] *; remarquons d'ailleurs que la "préparation" dont nous parlons ici est associée à une "réduction du paquet d'onde" non locale. Ces difficultés conceptuelles bien connues peuvent faire préférer l'interprétation en termes d'interférences de chemins, où aucune "réduction du paquet d'onde" n'apparait explicitement.*

d) Corrélations d'ordre supérieur

Supposons que l'on introduise une lame semi-réfléchissante sur le trajet de photon ν_B et que l'on mesure la probabilité de détection triple $W^{(3)}_{AB_1B_2}$ pour que la détection de ν_A soit suivie de deux détections de part et d'autre de la lame ; on aura évidemment :

$$W^{(3)}_{AB_1B_2} = 0 \qquad \text{(I-74)}$$

puisqu'un seul photon ν_B est produit par le processus de diffusion, et ne peut être détecté qu'une seule fois.

../..

I-C - CALCUL DES FONCTIONS DE CORRELATION DU CHAMP EMIS PAR LA SOURCE REELLE (MULTIATOMIQUE)

I-C-1 - Prise en compte des effets à plusieurs atomes

a) Introduction

Dans l'expérience que nous décrirons dans le chapitre II, la lumière étudiée est émise par une zone source, dont la géométrie est déterminée par l'intersection d'un jet atomique et des deux faisceaux lasers qui excitent la cascade. Cette zone source, de dimensions 0.5 mm (largeur du jet atomique) sur 0.1 mm (diamètre des faisceaux lasers focalisés), contient environ 10^5 atomes, ce qui correspond à une densité voisine de 0.02 atomes/μm^3.

Dans ces conditions, on peut faire les hypothèses suivantes, qui simplifient beaucoup le calcul du champ émis :

- les atomes sont supposés indépendants, ce qui est justifié pour des densités très inférieures à 1 atome/λ^3 ;

- la source est supposée optiquement mince, c'est à dire que le champ émis par un atome n'est pas réabsorbé par les atomes voisins.

On peut alors décrire le champ total comme une somme de contribution indépendantes des différents atomes émetteurs. En négligeant en première approximation les variations d'intensité des lasers au niveau de la source, ces contributions ne diffèreront que par des facteurs de phases reliés aux positions des atomes.

Il est commode d'écrire le champ total sous la forme suivante :

$$E^+(\vec{r}, t) = \sum_i E_i^+(\vec{r}, t) \qquad (I-75)$$

où $E_i^+(\vec{r}, t)$ désigne la contribution d'un atome repéré par l'indice i.

../..

Nous montrerons dans le Chapitre II que cette propriété est pour le champ émis par la cascade radiative, l'équivalent de $w^{(2)} = 0$ pour un état à un seul photon ; il s'agit en effet, dans les deux cas de propriétés spécifiquement quantiques, incompatibles avec le formalisme semi-classique. Remarquons que nous n'avons considéré jusqu'à présent que la diffusion par un atome unique. L'avantage de la cascade va apparaître plus clairement lorsque l'on envisagera une source comportant un grand nombre d'atomes : contrairement au cas élémentaire du § I-A-5, les propriétés quantiques de $w^{(3)}_{AB_1 \quad B_2}$ ne seront pas détruites par les effets à plusieurs atomes. Plus précisément, en utilisant le mode de détection "déclenchée" dont nous avons déjà parlé, il sera possible de faire apparaitre des signaux spécifiquement quantiques, en isolant temporellement la contribution d'un atome unique dans le champ émis par une source multiatomique. Afin de démontrer plus précisément cette possibilité, nous allons d'abord calculer les fonctions de corrélations du champ lorsqu'un grand nombre d'atomes contribuent au signal observé.

Nous allons calculer les fonctions de corrélation du champ, en effectuant à la fois une moyenne quantique sur l'état du champ émis par chaque atome, et une moyenne statistique sur les positions des atomes. Les phases relatives des différents E_i^+ étant distribuées aléatoirement, les contributions des "termes rectangles", dans lesquels les opérateurs champs ne sont pas appariés sous la forme $E_i^- E_i^+$, doivent être considérées soigneusement : ces termes sont en effet plus nombreux que les "termes carrés" $E_i^- E_i^+$, mais sont affectés de facteurs de phase oscillant rapidement.

Dans notre expérience, les termes rectangles ne contribueront pas aux signaux observés ; en effet, ces termes mettent en jeu des conditions très restrictives sur la cohérence spatiale du champ émis. Lorsque ces conditions ne sont pas satisfaites, les termes dans lesquels les opérateurs E^- et E^+ ne sont pas appariés disparaissent, ce qui sera le cas dans notre situation expérimentale. Nous ignorerons donc ces termes dans la suite de ce paragraphe.

Remarque :

Dans le Chapitre V, nous effectuerons, dans un autre contexte expérimental, un calcul de ces termes croisés ; nous verrons alors apparaître explicitement le rôle de la cohérence spatiale de la source (effet Hanbury- Brown et Twiss). Remarquons par ailleurs que nous avons pu observer récemment des effets spécifiquement quantiques liés à la cohérence spatiale, dans la fluorescence de résonance d'une source multiatomique[11]*. Ce sujet ne sera pas abordé dans ce mémoire.*

b) Expression des fonctions de corrélations

En désignant les opérateurs $E_A^+(\vec{r}_A, t)$ et $E_B^+(\vec{r}_B, t')$ par les notations abrégées E_A^+ et E_B^+, et en utilisant un indice i correspondant à l'atome émetteur, les taux de comptages simples s'écrivent :

$$\vec{W}_A^{(1)} = \sum_i \langle E_{Ai}^- \; E_{Ai}^+ \rangle \qquad \text{(I-76-a)}$$

$$\vec{W}_B^{(1)} = \sum_i \langle E_{Bi}^- \; E_{Bi}^+ \rangle \qquad \text{(I-76-b)}$$

Dans ce cas, la somme des termes rectangles est nulle en valeur moyenne. Les taux simples $\bar{W}_A^{(1)}$ et $\bar{W}_A^{(2)}$ sont donc simplement égaux à la somme des contributions indépendantes de tous les atomes de la source.

Le taux de comptage double $\bar{W}_{AB}^{(2)}$ a pour expression :

$$\bar{W}_{AB}^{(2)} = \sum_i \langle E_{Ai}^- E_{Bi}^- E_{Bi}^+ E_{Ai}^+ \rangle + \sum_{i \neq j} \sum \langle E_{Ai}^- E_{Ai}^+ \rangle \langle E_{Bj}^- E_{Bj}^+ \rangle \qquad (I-76-c)$$

Le premier terme de cette expression correspond à la somme des contributions à un atome, et est proportionnel au nombre N d'atomes émetteurs ; le second terme représente les détections conjointes d'un photon ν_A émis par l'atome i, et d'un photon ν_B émis par un atome j différent de i. Ces émissions n'étant pas corrélés temporellement, ce terme (proportionnel à N^2) est qualifié usuellement de "terme de coïncidences fortuites" ; par opposition, le premier terme sera appelé "terme de coïncidences vraies".

Enfin, le taux de coïncidences triples $W_{AB_1B_2}^{(3)}$, correspondant à la probabilité pour que la photodétection de ν_A soit suivie par deux photodétections en B_1 et B_2, est donné par :

$$W_{AB_1B_2}^{(3)} = \sum_i \langle E_{Ai}^- E_{B2i}^- E_{B1i}^- E_{B1i}^+ E_{B2i}^+ E_{Ai}^+ \rangle$$

$$+ \sum_i \sum_{i \neq j} \langle E_{Ai}^- E_{B1i}^- E_{B1i}^+ E_{Ai}^+ \rangle \langle E_{B2j}^- E_{B2j}^+ \rangle + 1 \text{—} 2$$

$$+ \sum_i \sum_{i \neq j} \sum_{i \neq j \neq m} \langle E_{Am}^- E_{Am}^+ \rangle \langle E_{B1i}^- E_{B1j}^+ \rangle \langle E_{B2i}^- E_{B2j}^+ \rangle \qquad (I-77)$$

Le premier terme de l'éq. (I-77) est à remarquer plus particulièrement dans le cadre de cette discussion : ce terme représente les contributions à un seul atome au taux de coïncidences triples, et il est identiquement nul d'après les calculs du paragraphe précédent. Le taux de comptage effectivement observé se réduit donc aux termes suivants :

$$\bar{W}^{(3)}_{AB_1B_2} = \sum_i \sum_j \langle E^-_{Ai}\, E^-_{B1i}\, E^+_{B1i}\, E^+_{Ai}\rangle \langle E^-_{B2j}\, E^+_{B2j}\rangle$$

$$+ 1 \rightleftarrows 2$$

$$+ \sum_{i\neq j\neq k} \sum \sum \langle E^-_{Ai}\, E^+_{Ai}\rangle \langle E^-_{B1j}\, E^+_{B1j}\rangle \langle E^-_{B2k}\, E^+_{B2k}\rangle \qquad (I\text{-}78)$$

Bien que ce taux de détection triple ne soit pas rigoureusement nul pour la source réelle, à cause des contributions à deux et trois atomes, la disparition du premier terme de l'éq. I-77 va être responsable de l'effet d'anticorrélation que nous observerons dans le Chapitre II : la probabilité d'observer deux détections en B1 et B2, après une détection du photon ν_A, sera très inférieure au minimum autorisé par la théorie semi-classique de la photodétection.

Afin d'obtenir des expressions plus directement utilisables pour démontrer cette possibilité, nous allons maintenant exprimer les différents taux de comptage en fonction des paramètres expérimentaux d'excitation et de détection.

c) Taux de comptage expérimentaux

D'après l'équation I-76, les taux de comptages simples sont proportionnels au nombre d'atomes émetteurs, et à la probabilité d'excitation par unité de temps de la cascade. Il est commode de définir le taux d'émission totale $\mathcal{N}$, représentant le nombre total de cascades émises par seconde. $\mathcal{N}$ sera relié aux taux de comptages par les rendements de collection, notés κ_A et κ_B (voir § II-B) :

$$\bar{W}^{(1)}_A = \kappa_A \mathcal{N} \qquad \bar{W}^{(1)}_B = \kappa_B \mathcal{N} \qquad (I\text{-}79\text{-a})$$

Le taux de comptage double, correspondant à des détections séparés d'un intervalle de temps τ, s'obtient alors en reportant (I-79-a) dans le système d'équation (I-76) :

$$\bar{W}^{(2)}_{AB}(\tau) = \kappa_A\, \kappa_B\, (\mathcal{N} G_{AB}(\tau) + \mathcal{N}^2) \qquad (I\text{-}79\text{-b})$$

La fonction $G_{AB}(\tau)$ décrit les effets de corrélations temporelles, de corrélation angulaire et de corrélation de polarisation entre les photons ν_A et ν_B émis par

chaque cascade ; le calcul de ces corrélations doit prendre en compte la valeur des angles solides de collection. Les calculs sont effectués dans l'Annexe II. Dans le cas le plus simple où le champ magnétique est nul et où il n'y a pas de polariseurs sur les faisceaux, on obtient :

$$G_{AB}(\tau) = C_{AB}\, H(\tau)\, \Gamma_r\, e^{-\Gamma_r \tau} \qquad (I\text{-}80)$$

où $C_{AB} = 1.31$ dans notre configuration expérimentale (voir Annexe II).

Enfin, le taux triple correspondant à une détection en A à l'instant t, suivie d'une détection en B_1 à l'instant $(t + \tau_1)$ et d'une détection en B_2 à l'instant $(t + \tau_2)$, pourra s'écrire en utilisant les eq. (I-78) et I-79) :

$$\overline{W}^{(3)}_{AB_1B_2}(\tau_1, \tau_2) = \kappa_A\, \kappa_{B_1}\, \kappa_{B_2} \left\{ \mathcal{N}^2 (G_{AB}(\tau_1) + G_{AB}(\tau_2)) + \mathcal{N}^3 \right\} \qquad (I\text{-}81)$$

d) Effets non-classiques pour la source multiatomique

Dans l'expérience qui sera décrite dans le Chapitre II, les photons ν_B seront détectés dans une "fenêtre" temporelle correspondant à des valeurs de τ comprises entre 0 et w ; on peut alors intégrer $W^{(2)}$ et $W^{(3)}$ sur τ, τ_1 et τ_2 et on obtient les taux de comptage (en s^{-1}) :

$$N_{AB1} = \kappa_A\, \kappa_{B1}\, (\mathcal{N}\xi + w\mathcal{N}^2) \qquad (I\text{-}82\text{-}a)$$

$$N_{AB2} = \kappa_A\, \kappa_{B2}\, (\mathcal{N}\xi + w\mathcal{N}^2) \qquad (I\text{-}82\text{-}b)$$

$$N_{AB1\,B2} = \kappa_A\, \kappa_{B1}\, \kappa_{B2}\, (2\mathcal{N}^2\, \xi\, w + w^2 \mathcal{N}^3) \qquad (I\text{-}82\text{-}c)$$

où $\xi = C_{AB}(1 - \exp(-\Gamma_r w)$

../..

Ces expressions permettent de discuter le rôle de la cascade dans l'apparition de propriétés non-classiques dans une source multiatomique. Par référence à la Figure 1 de l'Introduction, les probabilités p_1, p_2 et p_c seront ici données par :

$$p_1 = N_{AB1}/\kappa_A \mathcal{N} = \kappa_{B1}(\xi + w\mathcal{N})$$

$$p_2 = N_{AB2}/\kappa_A \mathcal{N} = \kappa_{B2}(\xi + w\mathcal{N})$$

$$p_c = N_{AB1\,B2}/\kappa_A \mathcal{N} = \kappa_{B1}\,\kappa_{B2}(2\,\xi\,w\mathcal{N} + w^2\,\mathcal{N}^2)$$

où ξ est un paramètre sans dimension, de l'ordre de l'unité, correspondant à la contribution du second photon de la cascade à p_1 et p_2 ; remarquons par contre le terme ξ^2 n'apparait pas dans l'expression de p_c. Ceci s'interprète directement en observant que ξ représente la contribution des "états à un seul photon" à p_1 et p_2 : cette contribution est évidemment absente de p_c.

L'effet "non-classique" correspondant ($p_c < p_1\,p_2$) sera important si ξ est nettement plus grand que $w\mathcal{N}$; nous discuterons cette condition en détail dans le Chapitre II.

Remarquons enfin qu'en l'absence des termes en ξ, on aurait $p_c = p_1\,p_2$: cette situation correspondrait en effet à une source multiatomique ordinaire faiblement excitée, dans laquelle les contributions à plusieurs atomes font disparaitre le phénomène d'anticorrélation (§ I-A-5-d).

I-C-2 - Effets d'interférence

a) Interférences à un seul photon

Supposons que l'on dispose un interféromètre à partage d'amplitude (Michelson ou Mach-Zehnder) dans la voie de détection des photons ν_B. Deux types de mesures

du contraste des franges d'interférences pourront être effectuées ; une mesure directe sur les taux de détection en sortie de l'interféromètre, ou une mesure portant uniquement sur les photodétections de ν_B se produisant dans un intervalle de temps w après une photodétection de ν_A. La première de ces mesures correspond à une expérience d'interférométrie "ordinaire", utilisant une source faiblement excitée. Nous montrerons dans le chapitre II que la seconde mesure peut être décrite comme une expérience "d'interférences à un seul photon". Afin de tester l'existence de ces interférences dans la situation conceptuellement la plus simple possible (voir Chapitre III), nous nous intéresserons en particulier au cas où l'interféromètre est réglé au voisinage de la teinte plate (différence de marche δ très faible). Dans ce cas, les fonctions décrivant la cohérence du premier ordre pour les deux expériences considérées sont très proche de un, et les taux de comptage des photons ν_B sont donnés par :

$$N_B = \kappa_B \left(1 + \cos\left(\frac{2\pi\delta}{\lambda}\right)\right) \mathcal{N} \qquad (I\text{-}83\text{-}a)$$

$$N_{AB} = \kappa_A \kappa_B \left(1 + \cos\left(\frac{2\pi\delta}{\lambda}\right)\right) (\mathcal{N}\xi + w\mathcal{N}^2) \qquad (I\text{-}83\text{-}b)$$

On attend donc un contraste des franges d'interférences égal à un dans les deux cas, pourvu que l'interféromètre soit correctement conçu et réglé. Ces deux situations peuvent se résumer en définissant un rendement de détection du photon ν_B dépendant de la différence de marche :

$$\kappa_B(\delta) = \kappa_B\left(1 + \cos\frac{2\pi\delta}{\lambda}\right) \qquad (I\text{-}84)$$

La validité de ces relations sera testée en détail dans le chapitre III.

Remarque : Dans l'expérience que nous décrirons dans le Chapitre III, les angles solides de collection des photons émis par la cascade radiative sont importants ; le temps de cohérence de la lumière émise est alors limité essentiellement par l'effet Doppler "vu" par les voies de détections (plus précisément, le temps de cohérence est de l'ordre de l'inverse de la largeur de cette distribution Doppler). Pour les faibles valeurs de la différence de marche que nous utiliserons ($\delta/c\ \tau_c \sim 10^{-4}$), cette variation de τ_c n'aura aucun effet observable.

../..

b) Battements quantiques

Pour une source multiatomique, on a obtenu la relation :

$$\bar{W}^{(2)}_{AB}(\tau) = \kappa_A \kappa_B (\mathcal{N} G_{AB}(\tau) + \mathcal{N}^2)$$

Le signal de battements quantiques $G_{AB}(\tau)$ apparaitra donc superposé sur le fond plat des "coïncidences fortuites". Remarquons que le contraste des battements est cette fois indépendant de l'effet Doppler : en effet, la fonction $G_{AB}(\tau)$ est par essence liée à un phénomène de cascade interne à chaque atome émetteur. Nous reviendrons sur ce point dans le Chapitre IV.

I-C-3 - Conclusions

a) Corrélations de photons dans une cascade radiative

La méthode de calcul des corrélations temporelles entre ν_A et ν_B par la théorie de la diffusion, que nous avons exposée ici, permet de rendre parfaitement compte de nos observations (voir Chapitre IV). Des détails plus fins des spectre-temps, obtenus par des calculs plus complexes[32, 33], seraient dans notre situation expérimentale entièrement masqués par les effets à plusieurs atomes. Remarquons cependant que des modifications très importantes des corrélations temporelles apparaitraient si l'on saturait la transition à deux photons[33], ce qui est loin d'être le cas dans notre expérience.

b) Effet d'anticorrélation dans une cascade radiative

Le résultat essentiel que nous avons obtenu sera en fait développé dans le Chapitre II : il s'agit du fait que la valeur de la fonction de corrélation $W^{(3)}_{AB_1B_2}$ est incompatible avec la théorie semi-classique, même si la source comporte un très grand nombre d'atomes. Nous avons vu que l'interprétation la plus directe de ces propriétés spécifiquement quantiques repose sur la notion d'état à un seul photon, que nous avons introduite dans les § I-A-5 et I-B-3. Cet état "non-classique" sera ensuite utilisé pour réaliser une expérience "d'interférences à un seul photon", que nous décrirons dans le Chapitre III.

Chapitre 2

EFFET D'ANTICORRELATION DE PHOTONS DANS UNE CASCADE RADIATIVE

Le terme de "dégroupement" ("antibunching") a été introduit par Kimble, Dagenais et Mandel à propos de l'interprétation des corrélations temporelles entre les photons de fluorescence émis par un atome irradié par une onde laser résonnante[14]. On observe, en effet, que la distribution $C(\tau)$ des intervalles de temps τ séparant deux détections est une fonction croissante de τ au voisinage de $\tau = 0$. L'interprétation la plus directe de cet effet est la suivante : immédiatement après l'émission d'un photon, l'atome est dans son état fondamental ; il faut donc attendre pour détecter un second photon que cet atome ait été réexcité par l'onde laser.

On peut donc dire que les photons de fluorescence sont "dégroupés" ; le point essentiel est que cette situation n'a aucun analogue classique. En effet, toute théorie classique du rayonnement conduit à considérer $C(\tau)$ comme l'autocorrélation de l'intensité émise par la source ; une fonction d'autocorrélation étant nécessairement maximale à l'origine, le phénomène observé ne peut être décrit en termes classiques.

Nous allons considérer dans ce chapitre une situation peut-être encore plus "exemplaire", dans laquelle, durant un intervalle de temps à préciser, une photodétection et une seule pourra être observée. Dans un dispositif conventionnel de mesure de corrélations d'intensité, où une lame semi-réfléchissante est suivie de deux photomultiplicateurs PMT et PMR placés respectivement sur les voies transmises et réfléchies, cette photodétection pourra se produire soit en PMT, soit en PMR, mais jamais en PMT et PMR pendant l'intervalle de temps considéré. Nous avons introduit dans le Chapitre I le terme d'"anticorrélation" pour qualifier ce comportement spécifiquement quantique.

En électrodynamique quantique une telle situation est typique d'un état du champ "à un seul photon", qui n'a pas d'équivalent en électromagnétisme classique puisqu'il rend compte des propriétés "corpusculaires" du rayonnement : contrairement à une onde, un photon unique "ne se partage pas" sur une lame semi-réfléchissante.

Ces considérations imagées sont bien sûr à prendre avec toutes les précautions d'usage, et le fait qu'un objet quantique puisse exhiber un caractère tantôt

../..

"corpusculaire" et tantôt "ondulatoire" sera illustré par l'expérience d'interférences du chapitre suivant.

Le plan du présent chapitre est le suivant : Dans un premier paragraphe, nous établirons plusieurs inégalités applicables à notre situation expérimentale, déduites du fait qu'une description classique du rayonnement prédit toujours une "corrélation" entre les détections de part et d'autre d'une lame semi-réfléchissante. Le deuxième paragraphe est consacré au calcul du signal réel attendu, et à une discussion du rapport signal sur bruit permettant d'obtenir une violation maximale des inégalités précédentes. Nous décrirons ensuite la réalisation pratique de l'expérience, et en particulier du système de comptage rapide. Enfin, le quatrième paragraphe sera consacré à l'analyse des résultats obtenus.

II-A - INEGALITES SEMI-CLASSIQUES

II-A-1 - Remarques préliminaires

Nous avons défini dans le chapître précédent les "théories classiques" (du rayonnement) appelées aussi "théories semi-classiques" comme étant des modèles dans lesquels l'atome est décrit par la mécanique quantique, et le champ électromagnétique par les équations de MAXWELL non quantifiées. Ce type de modèle apparait insuffisant pour décrire un phénomène physique fondamental, qui est l'émission spontanée[34]. On considère en effet, que l'émission spontanée est due au couplage entre un atome ("excité" à l'instant initial) et le champ électromagnétique. Les théories semi-classiques ne peuvent pas expliquer qu'un atome dans un état excité $|e\rangle$, distinct du fondamental $|f\rangle$ (et non dans une combinaison $\alpha\,|e\rangle + \beta\,|f\rangle$) puisse rayonner, et que simultanément le niveau fondamental lui-même soit stable. En effet, la stabilité du niveau fondamental d'un atome est intimement liée aux relations de commutations atomiques $[x, p] = i\hbar$ (voir par exemple, Ref. 7, p. 120 ou Ref. 12). Celles-ci ne peuvent être conservées au cours de l'évolution du système atome plus champ que si le champ satisfait de son côté aux relations quantiques $[a, a^+] = 1$. De façon générale, lorsque deux systèmes isolés interagissent, le fait de traiter l'un classiquement et l'autre quantiquement conduit à des incohérences[35].

On pourrait donc penser le problème réglé, la nécessité du traitement quantique étant démontrée. Cependant, les expressions semi-classiques présentées dans le Chapitre I sont très largement utilisées en pratique. On peut trouver une raison simple, à la fois pratique et théorique à cette situation. En effet, on dispose généralement en optique de sources lumineuses, comportant le plus souvent un grand nombre d'atomes, pour lesquelles la densité de quasi-probabilité $P(\{\alpha\})$ définie dans le Chapitre I se comporte comme une densité de probabilité : ceci revient à dire que les propriétés de cohérence spatio-temporelles de ces sources peuvent être décrites par des "ondes" classiques, éventuellement fluctuantes, comme cela se pratique en optique classique[36]. Remarquons de plus, qu'il existe de nombreux modèles théoriques présentant des tentatives pour éviter la quantification du champ[37, 38, 39].

La mise en cause du formalisme semi-classique, non sur des bases purement théoriques mais sur la base d'expériences, nous semble donc importante. Rappelons

également que l'observation de fonctions de corrélations non classiques peut être rapprochée de la recherche de propriétés statistiques non-classiques (par exemple, statistiques subpoissonniennes ou "états comprimés"), domaine actuellement très actif (voir discussion dans le chapitre I).

II-A-2 - Principe de l'expérience

Le schéma de principe de l'expérience est représenté sur la Figure II-1. La source S est constituée d'atomes excités sélectivement dans le niveau supérieur d'une cascade e → r → f, selon le processus décrit dans le Chapitre I ; S émet donc des paires de photons ν_A, ν_B en cascade.

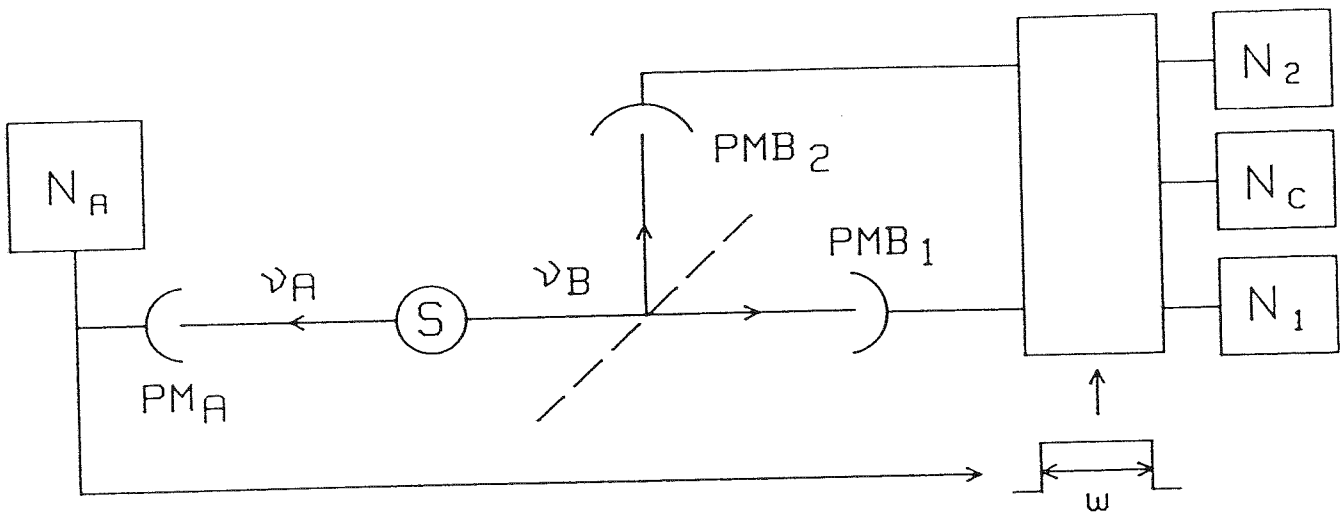


Figure II-1 : Principe de l'expérience d'anticorrélation. Les photons ν_A et ν_B sont émis par paires. Les taux N_2, N_c et N_1 correspondent à des détections pendant les "portes" w, déclenchées par une détection en PMA.

Une détection par le photomultiplicateur PMA va provoquer l'ouverture d'une "porte" de durée w, de l'ordre de la durée de vie du niveau intermédiaire r de la cascade. Cette porte commandera à son tour l'ouverture des photomultiplicateurs PMB1 et PMB2, disposés de part et d'autre d'une lame semi-réfléchissante placée sur le faisceau B.

On mesure le taux de comptage N_A (en PMA), et les taux de comptages pendant les portes w : N_1 (en PMB1), N_2 (en PMB2), et N_c (coïncidences entre

../..

PMB1 et PMB2). On obtient donc directement les probabilités de détection pendant une porte :

$$P_1 = \frac{N_1}{N_A} \qquad P_2 = \frac{N_2}{N_A} \qquad P_c = \frac{N_c}{N_A} \tag{II-1}$$

Pour introduire simplement l'idée physique qui sous-tend les inégalités que nous voulons démontrer, supposons que pendant chaque porte (c'est-à-dire, après chaque détection en PMA), l'intensité lumineuse émise par la source dans la voie B soit caractérisée par une fonction $I_B(t)$, fluctuant éventuellement d'une porte à l'autre (on notera par une barre horizontale la valeur moyenne sur un grand nombre de portes).

Le flux lumineux $I_B(t)$ se partageant sur la lame réfléchissante, on aura d'après le formalisme semi-classique introduit dans le § I-A :

$$P_1 = S_T \overline{\int_0^w d\tau_1 \, I_B(t + \tau_1)} \tag{II-2-a}$$

$$P_2 = S_R \overline{\int_0^w d\tau_2 \, I_B(t + \tau_2)} \tag{II-2-b}$$

$$P_c = S_R S_T \overline{\int_0^w \int_0^w d\tau_1 \, d\tau_2 \, I_B(t + \tau_1) \, I_B(t + \tau_2)} \tag{II-2-c}$$

où S_R et S_T prennent en compte le partage par la lame et les rendements de détection de PMB1 et PMB2. On peut alors définir la variable aléatoire :

$$\Omega = \int_0^w d\tau \, I_B(t + \tau) \tag{II-3}$$

et il vient :

$$P_1 = S_T \, \overline{\Omega} \qquad P_2 = S_R \, \overline{\Omega} \qquad P_c = S_T \, S_R \, \overline{\Omega^2} \tag{II-4}$$

../..

De l'inégalité $\overline{(\Omega - \overline{\Omega})^2} \geq 0$, on en déduit $\overline{\Omega^2} \geq (\overline{\Omega})^2$, et on obtient finalement :

$$S_T\, S_R\, \overline{\Omega^2} \geq (S_T\, \overline{\Omega})\, (S_R\, \overline{\Omega})$$

$$P_c \geq P_1\, P_2 \qquad (II\text{-}5\text{-}a)$$

$$N_c \geq \frac{N_1\, N_2}{N_A} \qquad (II\text{-}5\text{-}b)$$

Cette dernière inégalité relie quatre taux de comptage mesurés, et est donc susceptible d'un test expérimental direct. Elle traduit dans notre cas le fait que le modèle semi-classique conduit nécessairement à une limite inférieure pour N_c, dûe au fait qu'un signal de corrélation d'intensité est un signal non linéaire en I et que $\overline{I^2} \geq (\overline{I})^2$. Remarquons que le produit $P_1\, P_2$ intervenant dans II-5-a sera égal à P_c en l'absence de corrélations entre les photodétections en PMB1 et PMB2 ; en effet, la valeur $P_c = P_1\, P_2$ correspond à des évènements indépendants (non corrélés) au sens des probabilités. L'inégalité (II-5-a) indique donc qu'un modèle semi-classique prédit toujours un excès (ou, au minimum, une absence) de corrélations. Il semble ainsi justifié de parler "d'anticorrélation" en cas de violation de II-5-a. Un tel comportement correspond à une alternative exclusive entre les voies réfléchies et transmises de la lame semi-réfléchissante ; en physique classique on l'associerait à un corpuscule, et non à une onde.

Remarque : Les moyennes utilisées dans ce paragraphe et notées par une barre horizontale peuvent être définies de manière "opérationnelle" de la façon suivante. On définit d'abord l'intensité moyenne pendant la porte numéro n dans une expérience donnée :

$$i_n = \frac{1}{w} \int_0^w d\tau\, I_B(t + \tau) \qquad (II\text{-}6\text{-}a)$$

puis la moyenne sur i_n :

$$\overline{i_n} = \frac{1}{N_A T} \sum_{n=1}^{N_A T} i_n \qquad (II\text{-}6\text{-}b)$$

..I..

où $N_A T$ est le nombre total de portes correspondant à une expérience de durée T. On a alors évidemment :

$$\overline{\Omega} = w(\overline{i_n}) \qquad \overline{\Omega^2} = w^2\,\overline{(i_n^2)} \qquad (II-7)$$

Pour une source stationnaire, nous admettons que cette définition correspond également à une moyenne statistique sur les différentes "réalisations" du champ.

II-A-3 - Autre démonstration d'inégalités semi-classiques

a) Position du problème

La démonstration précédente, qui introduit simplement les idées essentielles, n'est cependant pas totalement satisfaisante. En effet, on ne considère que l'intensité incidente sur la lame semi-réfléchissante (photodétections en PMB) en ignorant les photodétections en PMA qui définissent le départ de chaque porte. Il serait plus satisfaisant de considérer la fonction de corrélation $\overline{I_A(t)\ I_B(t+\tau)}$ entre ces photodétections, traduisant la probabilité d'avoir deux détections séparées par un retard τ ; les détections de part et d'autre de la lame seraient alors associées à un signal de corrélation à trois temps $\overline{I_A(t)\ I_B(t+\tau_1)\ I_B(t+\tau_2)}$. Ce paragraphe présente cette démonstration plus complète ; nous allons retrouver pour l'essentiel les résultats précédents, mais nous pourrons en plus prendre en compte le temps de résolution de l'électronique dans les mesures de N_1, N_2 et N_c.

b) Notations

On est donc amené à définir les taux de comptages différentiels :

$$n_1(\tau_1) = \frac{dN_1}{d\tau_1} = s_A\, s_1\, \overline{I_A(t)\ I_B(t+\tau_1)} \qquad (II-8\text{-a})$$

$$n_2(\tau_2) = \frac{dN_2}{d\tau_2} = s_A\, s_2\, \overline{I_A(t)\ I_B(t+\tau_2)} \qquad (II-8\text{-b})$$

$$\frac{d^2N_c}{d\tau_1\, d\tau_2} = s_A\, s_1\, s_2\, \overline{I_A(t)\ I_B(t+\tau_1)\ I_B(t+\tau_2)} \qquad (II-9)$$

../..

où s_A, s_1 et s_2 sont des constantes prenant en compte les conditions de détection.

Les taux $n_1(\tau_1)$ et $n_2(\tau_2)$ sont directement mesurés dans l'expérience ; on retrouve N_1 et N_2 par intégration (τ_1 ou τ_2 variant de 0 à w).

Le taux $d^2 N_c/d\tau_1\, d\tau_2$, fonction de deux variables τ_1 et τ_2, n'est pas mesuré directement, mais on détermine le taux de coïncidence $n_c(\tau)$ pour un retard $\tau = \tau_2 - \tau_1$ donné, à l'intérieur de la porte w (c'est-à-dire, avec $0 \leq \tau_1 \leq w$, $0 \leq \tau_2 \leq w$). On a donc :

$$n_c(\tau) = s_A\, s_1\, s_2 \int_{\text{porte}} d\tau'\, \overline{I_A(t)\, I_B(t+\tau')\, I_B(t+\tau+\tau')} \qquad (II\text{-}10)$$

où τ' varie entre 0 et $(w - \tau)$ si τ est positif et entre $|\tau|$ et w si τ est négatif. L'expression de $n_c(\tau)$ se simplifie en $\tau = 0$:

$$n_c(0) = s_A\, s_1\, s_2 \int_0^w d\tau'\, \overline{I_A(t)\, I_B{}^2\,(t+\tau')} \qquad (II\text{-}11)$$

Enfin, le taux de comptage en PMA, qui nous sera utile dans le paragraphe suivant, est donné par :

$$N_A = s_A\, \overline{I_A(t)} \qquad (II\text{-}12)$$

c) Deuxième inégalité

Cette démonstration est analogue à celle d'une inégalité de SCHWARZ. On considère le binôme en λ, toujours positif :

$$\int_0^w d\tau\, \overline{I_A(t)\, (I_B\,(t+\tau) + \lambda)^2} \geq 0$$

soit en développant :

$$\lambda^2\, \overline{I_A(t)}\, .\, w + 2\lambda \int_0^w d\tau\, \overline{I_A(t)\, I_B(t+\tau)} + \int_0^w d\tau\, \overline{I_A(t)\, I_B{}^2(t+\tau)} \geq 0$$

Le discriminant du binôme est donc négatif ou nul :

$$\left[\int_0^w d\tau \overline{I_A(t)\, I_B(t+\tau)}\right]^2 \leq w\, \overline{I_A(t)} \cdot \int_0^w d\tau\, \overline{I_A(t)\, I_B{}^2(t+\tau)}$$

En multipliant les deux membres par $s_A{}^2\, s_1\, s_2$ et en utilisant les définitions précédentes, on obtient :

$$N_1\, N_2 \leq w\, N_A\, n_c(0)$$

ou encore :

$$w\, n_c(0) \geq \frac{N_1\, N_2}{N_A} \qquad \text{(II-13)}$$

Comme II-5-b, cette inégalité contraint des taux de comptages mesurés expérimentalement. Afin de comparer les inégalités (II-5) et (II-13), considérons la quantité toujours positive :

$$\int_0^w d\tau_1 \int_0^w d\tau_2\, \overline{I_A(I_B(t+\tau_1) - I_B(t+\tau_2))^2} \geq 0$$

Après développement et intégration, on obtient :

$$w \cdot \int_0^w d\tau\, \overline{I_A(t)\, I_B{}^2(t+\tau)} \geq \int_0^w d\tau_1 \int_0^w d\tau_2\, \overline{I_A(t)\, I_B(t+\tau_1)\, I_B(t+\tau_2)}$$

d'où :

$$w\, n_c(0) \geq N_c \qquad \text{(II-14)}$$

L'inégalité (II-5) portant sur les taux de comptages intégrés est en pratique plus facilement utilisable que l'inégalité différentielle (II-13) (voir § suivant). Or, en vertu de (II-14), (II-5) ne peut être déduite de (II-13). Nous allons donc maintenant démontrer directement (II-5) dans le formalisme utilisé dans ce paragraphe ;

../..

cette démonstration nous sera également utile pour discuter l'influence d'un temps de résolution fini de l'électronique.

d) Généralisation

Considérons le binôme en λ :

$$F(\lambda) = \int_0^w d\tau_1 \int_0^w \overline{I_A(t)\,(I_B(t+\tau_1)+\lambda)\,(I_B(t+\tau_2)+\lambda)}\,d\tau_2$$

En considérant la moyenne représentée par une barre horizontale comme une opération de la forme :

$$\frac{1}{N} \sum_{n=0}^{N} f(t_n)$$

ou :

$$\frac{1}{2T} \int_{t'-T}^{t'+T} dt'\, f(t')$$

prise à la limite où N ou T sont très grands, on peut en interchangeant les signes d'intégration écrite $F(\lambda)$ sous la forme :

$$F(\lambda) = \overline{I_A(t)\left[\int_0^w d\tau\,(I_B(t+\tau)+\lambda)\right]^2}$$

On a donc $F(\lambda) \geq 0$ quelque soit λ. En développant $F(\lambda)$ et en utilisant un raisonnement analogue à celui du paragraphe précédent, on obtient :

$$\left[\int_0^w d\tau\,\overline{I_A(t)\,I_B(t+\tau)}\right]^2 \leq \overline{I_A(t)} \cdot \int_0^w d\tau_1 \int_0^w d\tau_2\,\overline{I_A(t)\,I_B(t+\tau_1)\,I_B(t+\tau_2)}$$

d'où on déduit l'inégalité recherchée :

$$N_1 \cdot N_2 \leq N_A \cdot N_C \qquad \text{(II-15)}$$

../..

Remarque : Pour un faisceau lumineux quelconque, d'intensité $I(t)$ fluctuante, on définit la fonction de corrélation normalisée du second ordre :

$$g^{(2)}(t+\tau_1,\ t+\tau_2) = \frac{\overline{I(t+\tau_1)\ I(t+\tau_2)}}{\overline{I(t+\tau_1)}.\ \overline{I(t+\tau_2)}} \qquad (II-16)$$

Pour un champ stationnaire, $g^{(2)}(0) \geq 1$, en utilisant une fois encore la propriété $\overline{I^2} \geq (\overline{I})^2$.

Que se passe-t-il si $g^{(2)}$ est mesuré avec une résolution temporelle insuffisante pour "suivre" les fluctuations de $I(t)$? Il faut définir une fonction "lissée" dont la valeur en zéro sera :

$$g^{(2)}_L(0) = \frac{\int_0^w d\tau_1 \int_0^w d\tau_2\ \overline{I(t+\tau_1)\ I(t+\tau_2)}}{w^2\ .\ (\overline{I(t)})^2} \qquad (II-17)$$

Le raisonnement permettant de montrer que $g^{(2)}_L(0) \geq 1$ est alors exactement le même que celui utilisé dans ce paragraphe, en utilisant le binôme en λ :

$$G(\lambda) = \int_0^w d\tau_1 \int_0^w d\tau_2\ \overline{(I(t+\tau_1)+\lambda)\ (I(t+\tau_2)+\lambda)}$$

De même, en utilisant l'inégalité :

$$\int_0^w d\tau_1 \int_0^w d\tau_2\ \overline{(I(t+\tau_1) - I(t+\tau_2))^2} \geq 0$$

on montre que :

$$w^2\ \overline{I^2(t)} \geq \int_0^w d\tau_1 \int_0^w d\tau_2\ \overline{I(t+\tau_1)\ I(t+\tau_2)}$$

$$g^{(2)}(0) \geq g^{(2)}_L(0) \qquad (II-18)$$

qui est dans ce cas l'analogue de l'inégalité $w.n_c(0) \geq N_c$ démontrée précèdemment.

../..

e) Relation entre les deux inégalités

En conclusion de cette discussion, on peut donc considérer l'inégalité $N_c \cdot N_A \geq N_1 \cdot N_2$ comme la forme "lissée" de l'inégalité $w \cdot n_c(0) \cdot N_A \geq N_1 N_2$. Nous verrons dans le paragraphe suivant que des considérations de rapport signal sur bruit conduisent à utiliser la première de ces inégalités ; nous avons montré ici que ceci n'est pas gênant, le sens physique des deux inégalités restant le même : les coïncidences entre les voies T et R de la lame semi-réfléchissantes sont associées à un signal de corrélation, fonction non linéaire de l'intensité incidente ; une inégalité du type $\overline{I^2} \geq (\overline{I})^2$ conduit à ce que, dans une théorie semi-classique, le nombre de telles coïncidences a une limite inférieure dépendant du nombre de coups "simples" sur chaque voie. En termes imagés, une "onde" se partageant sur la lame ne peut décrire un comportement "corpusculaire" d'alternative exclusive entre les deux voies.

f) Rôle de la polarisation

Nous avons ignoré dans l'analyse précédente toute propriété de polarisation de l'onde incidente, ce qui correspond à la description d'une onde polarisée linéairement parallèlement ou perpendiculairement au plan d'incidence sur la lame séparatrice.

Dans notre configuration expérimentale, la lumière incidente sur la lame séparatrice est non polarisée, ce qui correspond à un mélange statistique à poids égaux des deux composantes parallèles et perpendiculaires. Les résultats précédents resterons valables si la lame n'effectue pas de "tri" des composantes de polarisations, c'est-à-dire, a des coefficients de réflexion et de transmission indépendants de la polarisation. Cette hypothèse est évidemment d'autant mieux vérifié que l'incidence sur la lame est plus faible ; en pratique, l'angle d'incidence utilisé sera de l'ordre de 15°. Il a été vérifié[26] que la dépolarisation sur des miroirs à couche diélectrique reste très faible (inférieure à 1 %) tant que l'incidence ne dépasse pas 20°.

Remarque : Si la lame était un séparateur de polarisation ($T^{//} \cong R^{\perp} \cong 1$, $T^{\perp} \cong R^{//} \cong 0$), les probabilités de photodétections seraient proportionnelles à deux fonctions à priori indépendantes $I_{//}$ et $I_{\perp}$. Il serait alors facile d'imaginer des modèles de sources en contradiction avec (II-5) (par exemple, source mettant des "flashes" polarisés alternativement // ou ⊥). Pour éliminer cette difficulté, il suffit de choisir des coefficients R et T indépendants de la polarisation.

../..

II-B - L'EXPERIENCE D'ANTICORRELATION : CALCULS QUANTIQUES DES TAUX DE COMPTAGE ET DU RAPPORT SIGNAL SUR BRUIT

II-B-1 - Calcul du signal attendu

a) Principe

Le calcul quantique des taux de coïncidences utilisés dans le paragraphe précédent a été effectué dans le § I-C ; nous rappelerons ici brièvement des notations et résultats essentiels.

Soit $\mathcal{N}(t)$ le taux d'émission de la source : entre t et t + dt, $\mathcal{N}(t)$ dt paires de photons sont émises (en moyenne). La dépendance en t de $\mathcal{N}$ prend en compte la possibilité de fluctuations du taux d'excitation, que nous supposerons très lentes à l'échelle des temps atomiques. Les taux de comptages simples des photomultiplicateurs PMA, PMB 1 et PMB 2 sont alors :

$$N_A = \kappa_A \mathcal{N}(t) \qquad \text{(II-19-a)}$$

$$N_T = \kappa_1 \mathcal{N}(t) \qquad \text{(II-19-b)}$$

$$N_R = \kappa_2 \mathcal{N}(t) \qquad \text{(II-19-c)}$$

où les κ_i prennent en compte les facteurs de collection géométriques (angle solide Ω_i), la transmission T_i des éléments optiques (incluant la lame séparatrice et les rendements quantiques η_i des photomultiplicateurs :

$$\kappa_i = \frac{\Omega_i}{4\Pi} T_i \eta_i \qquad \text{(II-20)}$$

Les grandeurs intéressantes sont en fait les taux de comptages "commandés" N_1 et N_2, en PMB1 et PMB2, c'est-à-dire, les taux de comptages correspondant à une détection pendant la porte w déclenchée par une détection en PMA. Comme nous l'avons vu au Chapitre I, ces taux sont la somme d'un terme de "coïncidences

../..

vraies" (détection du photon ν_B émis par l'atome ayant déclenché la porte) et d'un terme de "coïncidences fortuites" (détection d'un photon ν_B émis par un autre atome) :

$$N_1 = \kappa_A \kappa_1 (\xi \mathcal{N}(t) + w \mathcal{N}^2(t)) \qquad (II-21-a)$$

$$N_2 = \kappa_A \kappa_2 (\xi \mathcal{N}(t) + w \mathcal{N}^2(t)) \qquad (II-21-b)$$

où ξ est le produit d'un facteur C_{AB} correspondant à la corrélation angulaire entre ν_A et ν_B (voir Annexe II), et d'un facteur exponentiel traduisant la probabilité pour que le photon ν_B soit émis pendant la porte de durée w :

$$\xi = C_{AB} (1 - \exp(-w/\tau_r)) \qquad (II-21-c)$$

Enfin, le taux de doubles coïncidences pendant les portes w est donné par l'expression :

$$N_c = \kappa_A \kappa_1 \kappa_2 (2 \xi w \mathcal{N}^2(t) + w^2 \mathcal{N}^3(t)) \qquad (II-22)$$

Ces expressions montrent clairement que la stabilité de la source va jouer un rôle critique dans l'expérience ; en effet, les valeurs moyennes des diverses puissances de $\mathcal{N}(t)$ ne seront pas reliées simplement si $\mathcal{N}(t)$ fluctue pendant le temps de comptage T.

Plus précisément, le nombre de détections simples ou en coïncidences pendant le temps de comptage T dépendra à la fois des fluctuations de la source et des fluctuations dues au processus de comptage lui-même, et obéira donc à une loi de Poisson composée. Il est commode de poser :

$$\mathcal{N}(t) = \bar{\mathcal{N}} (1 + f(t)) \qquad (II-23)$$

où f(t) est une fonction aléatoire, de valeur moyenne nulle, traduisant les fluctuations lentes du taux d'émission de la source.

../..

Les valeurs moyennes des différents taux de comptages seront alors :

$$\bar{N}_A = \kappa_A \bar{\mathcal{N}} \qquad \text{(II-24-a)}$$

$$\bar{N}_1 = \kappa_A \kappa_1 (\xi \bar{\mathcal{N}} + w \bar{\mathcal{N}}^2 (1 + \overline{f^2})) \qquad \text{(II-24-b)}$$

$$\bar{N}_2 = \kappa_A \kappa_2 (\xi \bar{\mathcal{N}} + w \bar{\mathcal{N}}^2 (1 + \overline{f^2})) \qquad \text{(II-24-c)}$$

$$\bar{N}_c = \kappa_A \kappa_1 \kappa_2 \left[2w \xi \bar{\mathcal{N}}^2 (1 + \overline{f^2}) + w^2 \bar{\mathcal{N}}^3 (1 + 3\overline{f^2} + \overline{f^3})\right] \qquad \text{(II-24-d)}$$

et on a évidemment :

$$1 + \overline{f^2} \geq 1 \qquad \text{(II-25-a)}$$

$$1 + 3\overline{f^2} + \overline{f^3} \geq (1 + \overline{f^2})^2 \qquad \text{(II-25-b)}$$

(la deuxième inégalité résulte de $\overline{\mathcal{N}} \cdot \overline{\mathcal{N}^3} \geq (\overline{\mathcal{N}^2})^2$, inégalité de Schwarz associée à $\mathcal{N}(\mathcal{N} + \lambda)^2 \geq 0$).

Les fluctuations de la source augmentent donc le rapport $\overline{N_c} \cdot \overline{N_A} / \overline{N_1} \cdot \overline{N_2}$, ce qui est très défavorable à l'expérience que nous voulons réaliser. Nous décrirons plus loin les méthodes employées pour réduire ces fluctuations ; remarquons simplement ici, qu'il semble raisonnable d'exiger $\overline{f^2} < 0,01$; c'est-à-dire, des fluctuations R.M.S. ne dépassant pas 10 %. Cette tolérance semble peu sévère, mais notons qu'elle doit être satisfaite pour toutes les échelles de temps inférieures au temps de comptage : les principales difficultés apparaitront aux fréquences acoustiques, à cause du jitter des lasers excitateurs.

b) Paramètre d'anticorrélation

Nous supposons dans ce paragraphe les problèmes de stabilité résolus ; tous les taux de comptage s'expriment alors en fonction du taux d'excitation $\bar{\mathcal{N}}$, sous la

../..

forme :

$$\bar{N}_A = \kappa_A \, \overline{\mathcal{N}} \qquad \text{(II-26-a)}$$

$$\bar{N}_1 = \bar{N}_A \, \kappa_1 \, (\xi + w \, \overline{\mathcal{N}}) \qquad \text{(II-26-b)}$$

$$\bar{N}_2 = \bar{N}_A \, \kappa_2 \, (\xi + w \, \overline{\mathcal{N}}) \qquad \text{(II-26-c)}$$

$$\bar{N}_c = \bar{N}_A \, \kappa_1 \, \kappa_2 \, (2 \, \xi \, w \, \overline{\mathcal{N}} + w^2 \, \overline{\mathcal{N}^2}) \qquad \text{(II-26-d)}$$

Il est commode de définir à partir de ces quatre taux mesurés un paramètre, que nous noterons α, caractérisant l'effet d'anticorrélation :

$$\alpha = \frac{\bar{N}_c \cdot \bar{N}_A}{\bar{N}_1 \cdot \bar{N}_2} \qquad \text{(II-27)}$$

Les relations (II-26 permettent alors d'écrire :

$$\alpha = \frac{x(x+2)}{(x+1)^2} \qquad \text{avec} \qquad x = \frac{w \, \overline{\mathcal{N}}}{\xi} \qquad \text{(II-28)}$$

L'inégalité semi-classique établie dans le paragraphe précédent s'écrit simplement :

$$\alpha_{Class} \geq 1 \qquad \text{(pas d'anticorrélation)} \qquad \text{(II-29)}$$

Au contraire, la valeur de α donnée par l'expression ci-dessus est toujours inférieure à 1 (voir Figure II-2). L'effet d'anticorrélation sera particulièrement apparent pour $x \ll 1$, puisqu'on aura alors $\alpha \cong 2x \ll 1$.

Le paramètre $x = w \, \overline{\mathcal{N}} \, / \xi$ joue donc un rôle crucial dans l'expérience. Lorsque ξ (paramètre sans dimension) est de l'ordre de l'unité, ce qui sera le cas dans l'expérience réelle, x correspond simplement au nombre moyen de cascades

../..

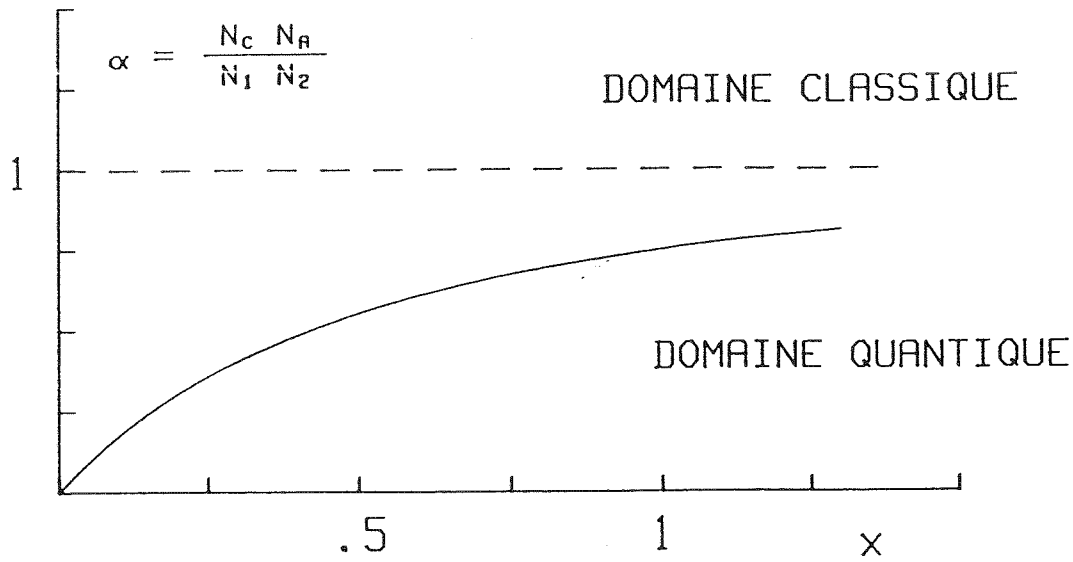


Figure II-2 : Valeur théorique du paramètre d'anticorrélation α *, en fonction du rapport* $x = w\,\mathcal{N}/\xi$ *caractérisant le taux d'excitation de la source. Les domaines "classique" et "quantique" se réfèrent à l'inégalité semi-classique* $\alpha_{Class} \geq 1$.

émises dans la durée de la porte w. Il est évident intuitivement que si ce nombre est petit devant 1, il sera facile d'isoler pendant le temps w l'émission d'un atome unique, qui est justement celui qui a déclenché la porte. Il faut cependant se garder d'en tirer la conclusion erronée que w doit être le plus court possible : le facteur ξ dépend en fait de w, et n'est plus égal à 1 lorsque w devient très inférieur à la durée de vie τ_r du niveau excité. Le paragraphe suivant est consacré à une discussion détaillée du rapport signal sur bruit, conduisant à un choix optimum pour w.

II-B-2 - Etude du rapport signal sur bruit

a) Définition d'un facteur de mérite

Nous avons vu dans le paragraphe précédent que pour une excitation sans fluctuations, le paramètre d'anticorrélation théorique est toujours inférieur à 1. Cependant, la mesure de α fait intervenir quatre taux de comptages, et sera donc entachée d'une erreur $\Delta\alpha$ due aux fluctuations des processus de comptages, et

../..

fonction de la durée de l'expérience. Le taux N_c étant par trois ordres de grandeur le plus faible des quatre, on aura (T étant le temps de comptage) :

$$\frac{\Delta\alpha}{\alpha} \cong \frac{\Delta(N_c\,T)}{N_c T} \cong \frac{1}{\sqrt{N_c T}} \qquad (II\text{-}30)$$

L'expérience devra être conçue de manière à ce que la violation de l'inégalité $\alpha_{class} \geq 1$, comptée en nombre d'écarts-type $\Delta\alpha$, soit la plus grande possible. On est donc amené à définir la quantité :

$$Q = \frac{1-\alpha}{\Delta\alpha} = \sqrt{N_c T}\ \left(\frac{1-\alpha}{\alpha}\right) \qquad (II\text{-}31)$$

Q augmente comme $\sqrt{T}$, ce qui est normal ; la quantité $Q/\sqrt{T}$ peut être considérée comme un facteur de mérite, indépendant du temps du comptage, et caractérisant l'aptitude du système à fournir des "photons uniques". Nous allons calculer ce facteur et en déduire les exigences imposées à la source.

b) Contraintes sur la source

En utilisant les relations II-26 et II-27, on obtient :

$$\frac{Q}{\sqrt{T}} = \left[\frac{\kappa_A\,\kappa_1\,\kappa_2}{2\,\tau_r}\right]^{1/2} \left[\frac{\tau_r\,\xi^3}{w}\right]^{1/2} \left[1 + \frac{w\,\overline{\mathcal{N}}}{2\xi}\right]^{-1/2} \qquad (II\text{-}32)$$

Le premier facteur correspond à la géométrie du montage et au choix de la cascade utilisée : il faut s'employer à obtenir les meilleurs rendements de collection possibles, et utiliser une cascade ayant un τ_r très court[26].

Le produit des deuxième et troisième facteurs est sans dimension, et permet de déterminer les valeurs optimales de w et $\overline{\mathcal{N}}$ lorsque τ_r est donné. Il est commode d'introduire les rapports sans dimension :

$$u = \frac{w}{\tau_r} \qquad \gamma = \frac{\overline{\mathcal{N}}\,\tau_r}{2\,C_{AB}} \qquad (II\text{-}33)$$

Le carré du produit des deux derniers facteurs s'écrit alors :

$$g(u,\,\gamma) = \frac{(1-e^{-u})^4}{u(1-e^{-u}) + \gamma u} \qquad (II\text{-}34)$$

../..

Il est clair sur cette formule que γ doit être le plus faible possible ; lorsque $\gamma \ll 1$, $g(u, \gamma)$ se réduit à :

$$h(u) = g(u, 0) = \frac{1}{u} (1 - e^{-u})^3$$

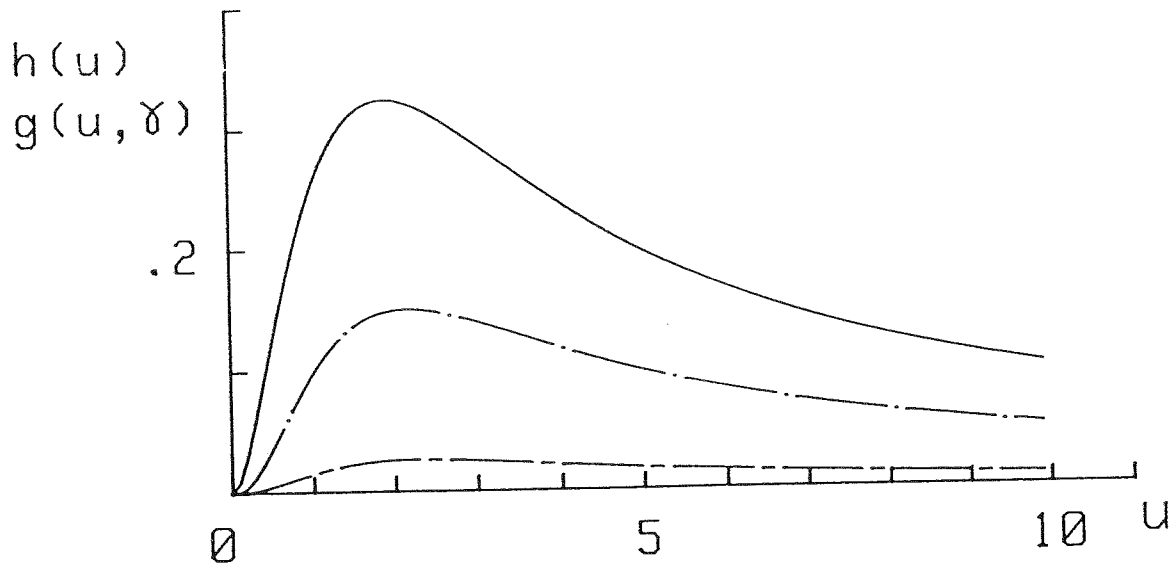


Figure II-3 : Fonctions $h(u) = g(u, 0)$ (traits pleins), et $g(u, \gamma)$ pour $\gamma = 1$ (points) et $\gamma = 10$ (tirets). La valeur de u correspondant au maximum de ces fonctions dépend peu de $\gamma = \mathcal{N} \tau_r / 2 C_{AB}$. La situation la plus favorable est obtenue pour $\mathcal{N}$ faible, c'est-à-dire $\gamma \ll 1$.

Ces fonctions sont représentées sur la figure II-3 ; le maximum de h(u) est atteint pour $u \cong 1.9$, et vaut $h_{Max} \cong 0.324$. En supposant la condition $\gamma \ll 1$ satisfaite, on obtient alors :

$$\left(\frac{\tau_r \xi^3}{w}\right)^{1/2} = (0.324\ C_{AB}^3)^{1/2} \cong 0.57\ (C_{AB})^{3/2}$$

Le troisième facteur étant voisin de un lorsque $\gamma \ll 1$, on obtient finalement :

$$\frac{Q}{\sqrt{T}} \cong 0.4 \left[\frac{K_A K_1 K_2 C_{AB}^3}{\tau_r}\right]^{1/2} \qquad (II-35)$$

../..

Remarques :

- Pour déterminer un optimum réaliste pour $\overline{\mathcal{N}}$, il faut prendre en compte, les coups d'obscurité des photomultiplicateurs. On a alors :

$$\overline{N'_A} = \kappa_A \overline{\mathcal{N}} + b_A$$

$$\overline{N'_T} = \kappa_1 \overline{\mathcal{N}} + b_1$$

$$\overline{N'_R} = \kappa_2 \overline{\mathcal{N}} + b_2$$

et il vient au 1er ordre en $b_i/\kappa_i \overline{\mathcal{N}}$:

$$\frac{Q'}{\sqrt{T}} = \left[\frac{\kappa_A \kappa_1 \kappa_2}{2 \tau_r}\right]^{1/2} \left[\frac{\tau_r \xi^3}{w}\right]^{1/2} \frac{1}{(1 + \beta_o/x + x/2)^{1/2}} \qquad (II\text{-}36\text{-}a)$$

où :

$$x = w \overline{\mathcal{N}}/\xi$$

$$\beta_o = \frac{w}{\xi} \left[\frac{1}{2}\left(\frac{b_1}{\kappa_1} + \frac{b_2}{\kappa_2}\right) + \frac{2b_A}{\kappa_A}\right] \qquad (II\text{-}36\text{-}b)$$

Le maximum du 3ème facteur est obtenu pour :

$$-\frac{\beta_o}{x^2} + \frac{1}{2} = 0 \qquad \text{soit} \qquad x_{opt} = \sqrt{2\beta_o} \qquad (II\text{-}37\text{-}a)$$

On a alors :

$$\left(\frac{Q'}{\sqrt{T}}\right)_{Opt} = \left(\frac{Q}{\sqrt{T}}\right)_{Opt} \frac{1}{(1 + \sqrt{2\beta_o})^{1/2}} \,. \qquad (II\text{-}37\text{-}b)$$

..I..

Le paramètre β_o correspond aux coups d'obscurités, ramenés à la source (facteurs $1/\varepsilon_i$) et "émis pendant le temps w" ; ces coups ne sont évidemment pas "anticorrélés", et doivent être maintenus à un niveau négligeable.

- Les conditions optimales que nous avons obtenues diffèrent sensiblement des conditions optimales de rapport signal/bruit dans les expériences de tests des inégalités de Bell[26] : dans la présente expérience, le taux d'excitation doit être sensiblement plus faible (d'un facteur 2 environ), et la fenêtre de comptage optimale est 1.9 τ_r (au lieu de 2.5 τ_r). Par contre, on doit toujours avoir une valeur de τ_r la plus petite possible et des rendements de collection κ_i les plus grands possibles, à cause du terme en $(\kappa_A \kappa_1 \kappa_2/\tau_r)^{1/2}$. Les différences citées précèdemment sont dues au fait que les "coïncidences fortuites" sont beaucoup plus gênantes dans la présente expérience que lors du test des inégalités de Bell ; les réductions de w et de $\mathcal{N}$ vont bien dans le sens d'une diminution des contributons fortuites. Il existe cependant des limites à cette réduction : lorsque w devient très inférieur à τ_r, le paramètre α ne diminue plus et se fixe à une valeur correspondant à $x = \tau_r \mathcal{N}/C_{AB}$. Le facteur de mérite (Eq. II-31) diminue alors rapidement, ce qui apparaît clairement sur la Figure II-3. Par ailleurs, la valeur minimum de $\mathcal{N}$ est déterminée par les coups d'obscurités (Eq. II-37).

c) Conclusion

Indiquons pour terminer quelques ordres de grandeur, correspondant d'une part au taux maximum d'excitation de la source, et d'autre part, au taux optimum calculé dans le paragraphe précédent.

En adoptant les valeurs $w = 1.9\ \tau_r$ et $\tau_r = 4.7$ ns, on obtient :

$$x = 0.9\ w\bar{\mathcal{N}} \cong 8\ 10^{-9}\bar{\mathcal{N}} \qquad \text{(II-38)}$$

La valeur optimale de x donnée par l'équation (II-37-a) est de l'ordre de 0.1, et correspond à $\bar{\mathcal{N}}_{opt} \cong 1.25\ 10^7\ s^{-1}$; par ailleurs, on peut obtenir sans difficulté $x \cong 1$, correspondant à $\bar{\mathcal{N}} = 1{,}25\ 10^8\ s^{-1}$.

Les valeurs des différents taux de comptages sont alors indiqués sur le Tableau II-1, en supposant les rendements de collection κ_i égaux à $0.7\ 10^{-3}$.

../..

x	N_A	N_1	N_2	N_c	α	$Q/\sqrt{T}$
0.1	8750	7.4	7.4	0.001	0.17	0.16
1	87500	135	135	0.15	0.75	0.13

Tableau II-1

Valeurs des différents taux de comptages (en s^{-1}) pour deux valeurs $x = 0.1$ et $x = 1$ du paramètre d'excitation. On a également indiqué les valeurs du paramètre d'anticorrélation α (sans dimension) et du facteur de mérite $Q/\sqrt{T}$ (en $s^{-1/2}$).

Le temps de comptage pour obtenir $Q \geq 10$ (violation de l'inégalité semi-classique d'au moins 10 écarts-type) sera donc de plusieurs heures ; remarquons que $N_c = 0.001\ s^{-1}$ correspond à moins de 4 évènements par heure. Ces taux restent néanmoins parfaitement mesurables par les techniques que nous utilisons, dans la mesure où l'on peut respecter les conditions de stabilité de la source introduites dans le § II-B-1.

II-B-3 - Tests auxiliaires

Le paragraphe est consacré au calcul de différents signaux qui , bien que n'étant pas directement utilisés dans le calcul du paramètre d'anticorrélation α, seront très utiles pour le contrôle de l'expérience et l'analyse des résultats.

a) Taux de comptages différentiels

Les trois taux différentiels $n_1(\tau)$, $n_2(\tau)$ et $n_c(\tau)$ correspondent à la mesure détaillée des spectres-temps des détections PMA/PMB 1, PMA/PMB 2 et PMB 1/PMB 2. Les deux premiers taux correspondent à la mesure du spectre-temps des corrélations entre les photons ν_A et ν_B à l'intérieur de la porte w ; $n_1(\tau)$ et $n_2(\tau)$ sont donc

../..

nuls pour $\tau < 0$ ou $\tau > w$, et on a lorsque $0 \leq \tau \leq w$:

$$n_1(\tau) = \kappa_A \kappa_1 \left\{ \left(\frac{C_{AB}}{\tau_r} \exp\left(- \frac{\tau}{\tau_r} \right) \right) \overline{\mathcal{N}} + \overline{\mathcal{N}}^2 \right\} \qquad \text{(II-39-a)}$$

$$n_2(\tau) = \kappa_A \kappa_2 \left\{ \left(\frac{C_{AB}}{\tau_r} \exp\left(- \frac{\tau}{\tau_r} \right) \right) \overline{\mathcal{N}} + \overline{\mathcal{N}}^2 \right\} \qquad \text{(II-39-b)}$$

Le troisième taux différentiel $n_c(\tau)$ est nul pour $|\tau| > w$, et est donné, lorsque $- w \leq \tau \leq w$, par la relation :

$$n_c(\tau) = \kappa_A \kappa_1 \kappa_2 \left\{ C_{AB} \left(1 - e^{- w/\tau_r} + e^{- |\tau|/\tau_r} - e^{-w/\tau_r + |\tau|/\tau_r} \right) \overline{\mathcal{N}}^2 \right.$$

$$\left. + (w - |\tau|) \overline{\mathcal{N}}^3 \right\} \qquad \text{(II-39-c)}$$

Remarques :

- L'intervalle maximum entre les détections en PMB 1 et PMB 2 est égal à τ, mais l'ordre n'est évidemment pas imposé ; ceci explique que $n_c(\tau)$ est non nul entre $- w$ et $+ w$, le retard τ ayant une signification algébrique.

- Les trois taux différentiels sont exprimés en s^{-2} ; on obtient les taux de comptage correspondants en multipliant par la largeur temporelle d'un canal, supposée très inférieure à τ_r.

- On vérifie aisément les relations :

$$N_1 = \int_0^w d\tau \, n_1(\tau)$$

$$N_2 = \int_0^w d\tau \, n_2(\tau)$$

$$N_c = \int_0^w d\tau \, n_c(\tau)$$

../..

Lorsque le taux d'émission de la source est stable, les formules (II-39) peuvent s'exprimer directement en fonction du paramètre d'excitation x :

$$n_1(\tau) = \frac{K_A K_1 \overline{\mathcal{N}}}{\tau_r} \left\{ C_{AB} \exp\left(-\frac{\tau}{\tau_r}\right) + Kx \right\} \qquad \text{(II-40-a)}$$

$$n_2(\tau) = \frac{K_A K_2 \overline{\mathcal{N}}}{\tau_r} \left\{ C_{AB} \exp\left(-\frac{\tau}{\tau_r}\right) + Kx \right\} \qquad \text{(II-40-b)}$$

$$n_c(\tau) = \frac{K_A K_1 K_2 \overline{\mathcal{N}}}{\tau_r} \left\{ Kx\, C_{AB} \left[1 - \exp\left(-\frac{w}{\tau_r}\right) + \exp\left(\frac{-|\tau|}{\tau_r}\right) - \exp\left(\frac{|\tau| - w}{\tau_r}\right) \right] \right.$$

$$\left. + (Kx)^2 \left[\frac{w - |\tau|}{\tau_r} \right] \right\} \qquad \text{(II-40-c)}$$

où $K = C_{AB} \frac{\tau_r}{w} \left\{ 1 - \exp\left(-\frac{w}{\tau_r}\right) \right\} \cong 0.58$ et $C_{AB} \cong 1.31$ (remarquons que le produit Kx est simplement égal à $\tau_r \overline{\mathcal{N}}$).

Les termes entre parenthèses intervenant dans ces expressions sont représentés en fonction de τ sur les figures II-4 (a) et (b), dans les deux cas, x = 0.1 et x = 1. Les contributions des coïncidences fortuites sont indiquées par des traits pointillés ; on observe bien sûr que ces contributions augmentent avec x, et détruisent l'effet d'anticorrélation.

b) Influence d'une dissymétrie

Nous considérons dans ce paragraphe l'influence d'une dissymétrie ou d'un décentrage des portes w commandant les photomultiplicateurs PMB 1 et PMB 2. En notant w_1, w_2, les valeurs des portes correspondant à chacune des voies, les taux de comptages commandés pour une source stable seront donnée par :

$$N_1 = N_A K_1 (\xi_1 + w_1 \overline{\mathcal{N}}) \qquad \text{(II-41-a)}$$

$$N_2 = N_A K_2 (\xi_2 + w_2 \overline{\mathcal{N}}) \qquad \text{(II-41-b)}$$

../..

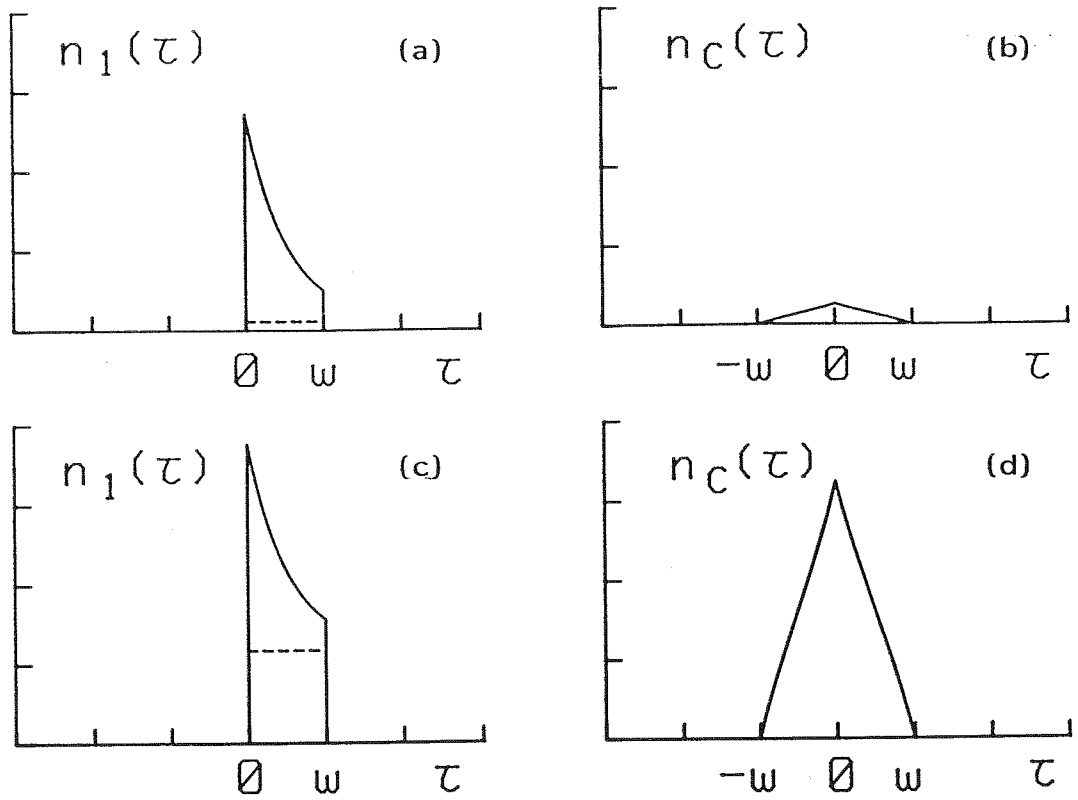


Figure II-4 : Les coïncidences fortuites, indiquées par des pointillés sur les figures (a) et (c), détruisent l'effet d'anticorrélation en provoquant une augmentation rapide de $n_c(\tau)$. Les figures (a) et (b) correspondent à x = 0.1, (c) et (d) à x = 1.

$$N_c = N_A \kappa_1 \kappa_2 \xi_1 \xi_2 \left\{ \left(\frac{w_1}{\xi_1} + \frac{w_2}{\xi_2}\right) \overline{\mathcal{N}} + \left(\frac{w_1}{\xi_1} \cdot \frac{w_2}{\xi_2}\right) \overline{\mathcal{N}}^2 \right\} \qquad \text{(II-41-c)}$$

Le paramètre d'anticorrélation s'écrit alors :

$$\alpha = \frac{N_1 N_A}{N_1 N_2} = \frac{\left(\frac{w_1}{\xi_1} + \frac{w_2}{\xi_2}\right) \overline{\mathcal{N}} + \left(\frac{w_1}{\xi_1} \cdot \frac{w_2}{\xi_2}\right) \overline{\mathcal{N}}^2}{1 + \left(\frac{w_1}{\xi_1} + \frac{w_2}{\xi_2}\right) \overline{\mathcal{N}} + \left(\frac{w_1}{\xi_1} \cdot \frac{w_2}{\xi_2}\right) \overline{\mathcal{N}}^2} \qquad \text{(II-42)}$$

../..

On peut alors définir le paramètre x par :

$$x = \frac{1}{2}\left(\frac{w_1}{\xi_1} + \frac{w_2}{\xi_2}\right)\overline{\mathcal{N}} \qquad (II-43)$$

La différence entre deux rapports w_1/ξ_1 et w_2/ξ_2 sera en pratique de quelques pour cents ; on peut alors négliger la différence entre la moyenne quadratique $\left(\frac{w_1}{\xi_1} \cdot \frac{w_2}{\xi_2}\right)^{1/2}$ et la moyenne arithmétique $\frac{1}{2}\left(\frac{w_1}{\xi_1} + \frac{w_2}{\xi_2}\right)$. L'expression de α en fonction de x s'écrit donc toujours (cf. eq. II-28) :

$$\alpha \cong \frac{2x + x^2}{(1+x)^2}$$

où x est maintenant donné par l'éq. II-43.

Remarque :

Au delà du point purement technique considéré ici, on peut s'interroger sur la signification des inégalités semi-classiques (II-5) ou (II-13) lorsque les portes w_1 et w_2 sont inégales ou décentrées. Supposons en effet, que les fractions β_1, β_2 et β_c des taux N_1, N_2 et N_c correspondent à des comptages dans des zones non communes à w_1 et w_2. L'inégalité (II-5) ne se rapportant qu'aux zones où w_1 et w_2 sont superposées, on aura :

$$\frac{N_A\, N_c\, (1-\beta_c)}{N_1(1-\beta_1)\, N_2(1-\beta_2)} \geqq 1$$

ou encore :

$$\alpha_{Class} = \frac{N_A\, N_c}{N_1\, N_2} \geqq \frac{(1-\beta_1)\,(1-\beta_2)}{(1-\beta_c)} \geqq (1-\beta_1)\,(1-\beta_2) \qquad (II-44)$$

Les fractions β_1 et β_2 peuvent être estimées grâce aux spectre-temps (voir § précédent), et seront en pratique du même ordre que l'inégalité des fenêtres, soit quelques pour cents. Il est important de remarquer que α ne diminuerait en fait que pour des modèles de source assez artificiels, émettant de façon particulière pendant les intervalles de temps où w_1 et w_2 ne sont pas superposées. Nous continuerons donc dans la suite à employer l'inégalité $\alpha_{Class} \geqq 1$, alors qu'en toute rigueur on aura seulement $\alpha_{Class} \geqq (1-\beta_1)\,(1-\beta_2)$.

../..

c) Mesure des rendements de collection

Nous avons vu que le paramètre d'anticorrélation s'exprimait dans tous les cas en fonction du paramètre normalisé x ; le lien entre x, le taux d'excitation et le taux d'impulsions de déclenchement $\bar{N}_A$, fait intervenir le rapport w/ξ et le rendement de collection κ_A. Il est donc important de disposer de moyens de mesure et de contrôles de ces quantités, qui seront décrits dans ce paragraphe.

Les rendements de collections κ_A, κ_1, κ_2 peuvent être obtenus directement par des mesures de coïncidences[40]. Nous utilisons dans ce cas des circuits à coïncidences à recouvrement (voir § I-C), dont les taux de comptages sont donnés par :

$$C_1 = \kappa_A \kappa_1 \xi_f \overline{\mathcal{N}} + f \kappa_A \kappa_1 \overline{\mathcal{N}}^2 \qquad \text{(II-45-a)}$$

$$C_2 = \kappa_A \kappa_2 \xi_f \overline{\mathcal{N}} + f \kappa_A \kappa_2 \overline{\mathcal{N}}^2 \qquad \text{(II-45-b)}$$

où f est la largeur temporelle de la fenêtre de coïncidence ($f \cong 4\,\tau_r$), et :

$$\xi_f = C_{AB}\left(1 - \exp\left(-\frac{f}{\tau_r}\right)\right) \cong C_{AB}$$

En utilisant des circuits à coïncidences "retardés", décalés de 100 ns par rapport au pic de corrélation, on obtient les taux de coïncidences fortuites :

$$F_1 = f \kappa_A \kappa_1 \overline{\mathcal{N}}^2 \qquad \text{(II-46-a)}$$

$$F_2 = f \kappa_A \kappa_2 \overline{\mathcal{N}}^2 \qquad \text{(II-46-b)}$$

Par ailleurs, rappelons que l'on a :

$$N_A = \kappa_A \overline{\mathcal{N}} \qquad N_T = \kappa_1 \overline{\mathcal{N}} \qquad N_R = \kappa_2 \overline{\mathcal{N}} \qquad \text{(II-47)}$$

../..

Les rendements de collection s'écrivent alors :

$$\kappa_1 = \frac{1}{C_{AB}} \frac{(C_1 - F_1)}{N_A} \qquad \kappa_2 = \frac{1}{C_{AB}} \frac{(C_2 - F_2)}{N_A} \qquad \text{(II-48-a)}$$

$$\kappa_A = \frac{1}{C_{AB}} \frac{(C_1 - F_1)}{N_T} = \frac{1}{C_{AB}} \frac{(C_2 - F_2)}{N_R} \qquad \text{(II-48-b)}$$

Le taux d'excitation $\overline{\mathcal{N}}$ peut être déduit des mesures des taux de comptages lorsque les κ_i sont connus (eq. II-47).

Une autre méthode de mesure des κ_i, qui nous sera utile en tant que test de la cohérence de nos mesures, est obtenue en écrivant les eq. (II-41) sous la forme :

$$N_1/N_T = \kappa_A \xi_1 + w_1 N_A \qquad \text{(II-49-a)}$$

$$N_2/N_R = \kappa_A \xi_2 + w_2 N_A \qquad \text{(II-49-c)}$$

Ces deux rapports doivent donc varier linéairement en fonction de N_A, avec des pentes correspondant aux durées des portes et des ordonnées à l'origine reliées à κ_A. Ces égalités fournissent un moyen commode de vérification de l'égalité de w_1 et w_2.

Nous disposons donc d'un ensemble de tests permettant l'analyse systématique des résultats expérimentaux. Ces tests se révèlent très utiles lors du traitement informatisé d'un grand nombre de mesures, en permettant un contrôle "a posteriori" de leur cohérence globale. Afin de pouvoir utiliser ces contrôles, il sera préférable d'effectuer des séries de comptages courts (quelques minutes), susceptibles d'un traitement statistique, plutôt qu'une longue accumulation qui excluerait tout contrôle "a posteriori".

II-C - L'EXPERIENCE D'ANTICORRELATION : REALISATION PRATIQUE

II-C-1 - La source

a) Présentation générale

Les paires de photons ν_A, ν_B utilisés dans notre expérience sont émises dans la cascade radiative $4p^2\ {}^1S_o \rightarrow 4s\ 4p\ {}^1P_1 \rightarrow 4s^2\ {}^1S_o$ du calcium 40. Les atomes sont excités sélectivement dans l'état supérieur par un processus à deux photons, utilisant un laser à Krypton ionisé à 406 nm et un laser à colorant (Rhodamine 6 G) accordé à résonance (Figure II-5).

Les faisceaux laser sont focalisés sur un jet atomique, perpendiculairement à celui-ci, et la lumière de fluorescence est collectée par des lentilles de grande ouverture dans la troisième direction orthogonale (Figure II-6).

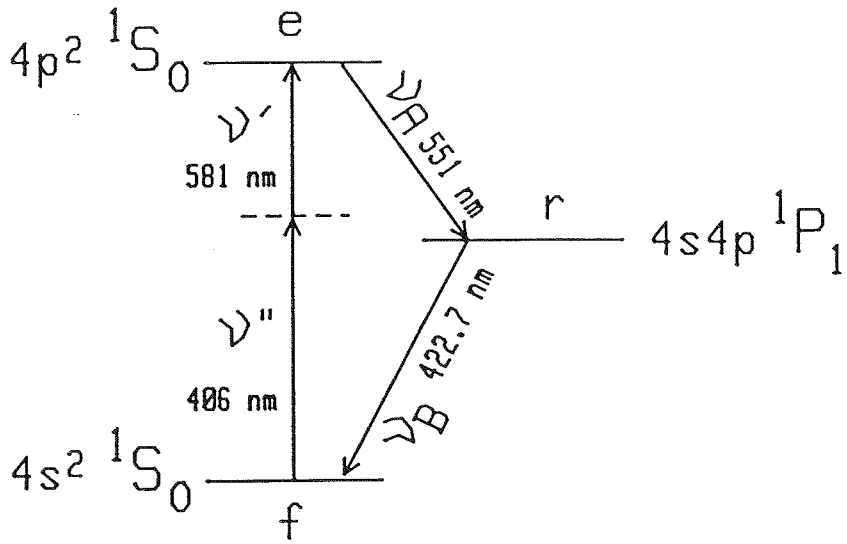


Figure II-5 : Cascade radiative du Calcium 40 utilisée dans ce travail. L'excitation à deux photons (ν', ν'') peuple le niveau $4p^2\ {}^1S_o$, qui se désexcite spontanément en émettant ν_A et ν_B.

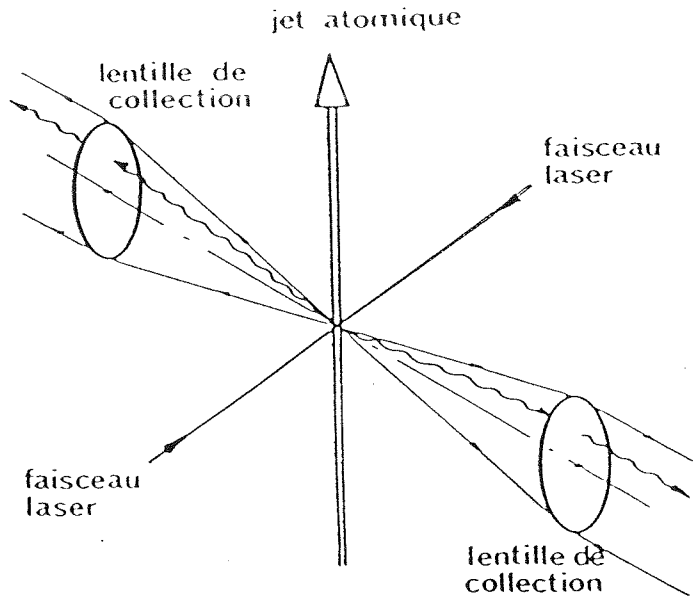


Figure II-6 : Géométrie de la zone source. Les deux faisceaux laser sont focalisés sur le jet atomique, et la lumière de fluorescence est collectée par des lentilles de grande ouverture.

Cette source a été initialement conçue et réalisée afin de mener à bien une série de tests expérimentaux des inégalités de Bell[26, 41]. Elle est décrite très en détail dans la Réf. 26. Nous ne reprendrons pas ici cette description, les impératifs liés à la source elle-même étant pour l'essentiel inchangés (voir § précédent). Les paramètres précis correspondant aux expériences réalisées (puissances lasers, densités atomiques) seront précisés dans la partie consacrée aux résultats expérimentaux.

Nous avons vu cependant que les tolérances sur les fluctuations de la source sont plus strictes dans notre expérience, puisque nous considérons des coïncidences du troisième ordre dans le taux d'émission $\mathcal{N}$. Ceci exige une amélioration des asservissements des lasers excitateurs, décrite dans les paragraphes suivants.

b) Stabilisation de la source

Dans sa version initiale, la source comprend deux asservissements imbriqués. Le premier asservissement contrôle la longueur d'onde du laser à colorant, qui est verrouillée au maximum du signal de fluorescence. Le principe en est classique : on impose une petite modulation à la fréquence du laser accordable, d'amplitude inférieure à la largeur de raie, et on détecte en phase la modulation induite sur le signal

../..

de fluorescence. Le signal correspondant est intégré, puis amplifié pour fournir un signal d'erreur.

Le second asservissement contrôle le taux d'excitation de la source, en commandant un cristal électro-optique qui modifie la polarisation d'un des faisceaux laser : le taux d'excitation est en effet proportionnel à $(\vec{E}_K . \vec{E}_D)^2$, où $\vec{E}_K$ et $\vec{E}_D$ sont les champs électriques des lasers. Cet asservissement, qui comprend également un intégrateur, fonctionne sur la base d'un point de consigne.

En cas de disparition brutale du signal de fluorescence, due par exemple à un saut de mode du laser Krypton, les deux boucles s'ouvrent automatiquement et le système lance un balayage du laser accordable dans la gamme accessible. Si le signal est retrouvé dans cette gamme, le verrouillage est automatique ; dans le cas contraire, le système informe l'ordinateur central.

Le bon fonctionnement du dispositif n'est en fait possible que si les deux asservissements ont des constantes de temps assez différentes ; en pratique, l'asservissement de longueur d'onde répond en moins de 0.1 s, et l'asservissement de puissance en une fraction de seconde ($\sim$ 0.5 s). Si ce dernier temps est réduit, les fluctuations statistiques du processus de comptage entrent en jeu, et créent un "faux" signal d'erreur.

Dans ces conditions, la stabilité des comptages sur des périodes de l'ordre de 10 s est de l'ordre de 0.5 %[26, 37], ce qui semble excellent. Cependant, les asservissements sont totalement inopérants sur les fluctuations de la source aux fréquences acoustiques (kilohertz), domaine où les fluctuations de fréquence du laser Krypton ("jitter") sont très importantes pouvant atteindre 50 MHz crête à crête. Ce jitter doit être comparé à la largeur de raie, qui présente une composante homogène (largeur naturelle et temps de transit des atomes dans les faisceaux laser), et une composante inhomogène (effet Doppler résiduel dû à la différence entre les deux fréquences d'excitation) ; la largeur totale est d'environ 30 MHz.

Il faut donc s'attendre à des variations importantes du taux d'excitation de la source dans une gamme de fréquences acoustiques, dues à l'"exploration" du profil de raie par la fréquence du laser Krypton. Ces variations ne sont pas observables directement, car le nombre de photons comptés en 1 ms, de l'ordre de quelques dizaines, présente des fluctuations statistiques beaucoup trop grandes. Par contre, comme nous l'avons vu, des mesures de coïncidences sont très sensibles à

ces variations. Considérons en effet, le nombre de "coïncidences fortuites" dans une "fenêtre" de durée W ; pour une source stable, on doit avoir :

$$N_f = W \; N_{S1} \; N_{S2} \qquad (II-50)$$

où N_{S1} et N_{S2} sont les taux de comptage simples sur les deux entrées du circuit à coïncidences. Au contraire, pour une source fluctuante :

$$N_f \geqq W \; N_{S1} \; N_{S2}$$

ou encore :

$$\frac{N_f}{W \; N_{S1} \; N_{S2}} = 1 + \overline{f^2} \qquad (II-51)$$

où $\overline{f^2}$ caractérise les fluctuations de la source (voir § II-B-1).

Les valeurs de $\overline{f^2}$ obtenues expérimentalement sont de l'ordre de 0.1 lorsqu'aucune précaution particulière n'est prise ; on ne peut donc dans ces conditions espérer vérifier quantativement les expressions des taux de comptages calculées au § II-2. La solution adoptée consiste à réduire le jitter du laser Krypton en utilisant une technique standard d'asservissement sur un interféromètre de Fabry-Pérot, décrite dans le paragraphe suivant.

c) Asservissement du laser Krypton

Le jitter de ce type de lasers est essentiellement dû aux vibrations (audibles) provoquées par la circulation d'eau de refroidissement. Il peut atteindre 50 MHz crête-crête (mesure effectuée sur le côté du pic de transmission d'un interféromètre de Fabry-Pérot confocal de finesse inférieure à 10 et d'intervalle spectral libre 750 MHz).

Une solution efficace pour réduire ce jitter est d'isoler mécaniquement la monture des miroirs du tube lui-même, en reconstruisant la cavité laser sur un marbre ou un banc optique [42] ; on gagne ainsi en principe environ un ordre de grandeur. Nous avons cependant préféré la solution plus légère consistant à

../..

asservir directement le laser, en montant le miroir plan (R Max) sur une céramique piezoélectrique (Figure II-7). Le signal d'erreur est obtenu par différence entre un signal de référence et le signal obtenu à mi-hauteur du pic de transmission d'un interféromètre de Fabry-Pérot confocal (Figure II-8). La bande passante d'un tel système est assez rapidement limitée par les résonances mécaniques de l'ensemble miroir-céramique ; on obtient néanmoins facilement une réduction du jitter à moins de 5 MHz crête-crête, l'essentiel des vibrations étant à une fréquence inférieure à 2 kHz.

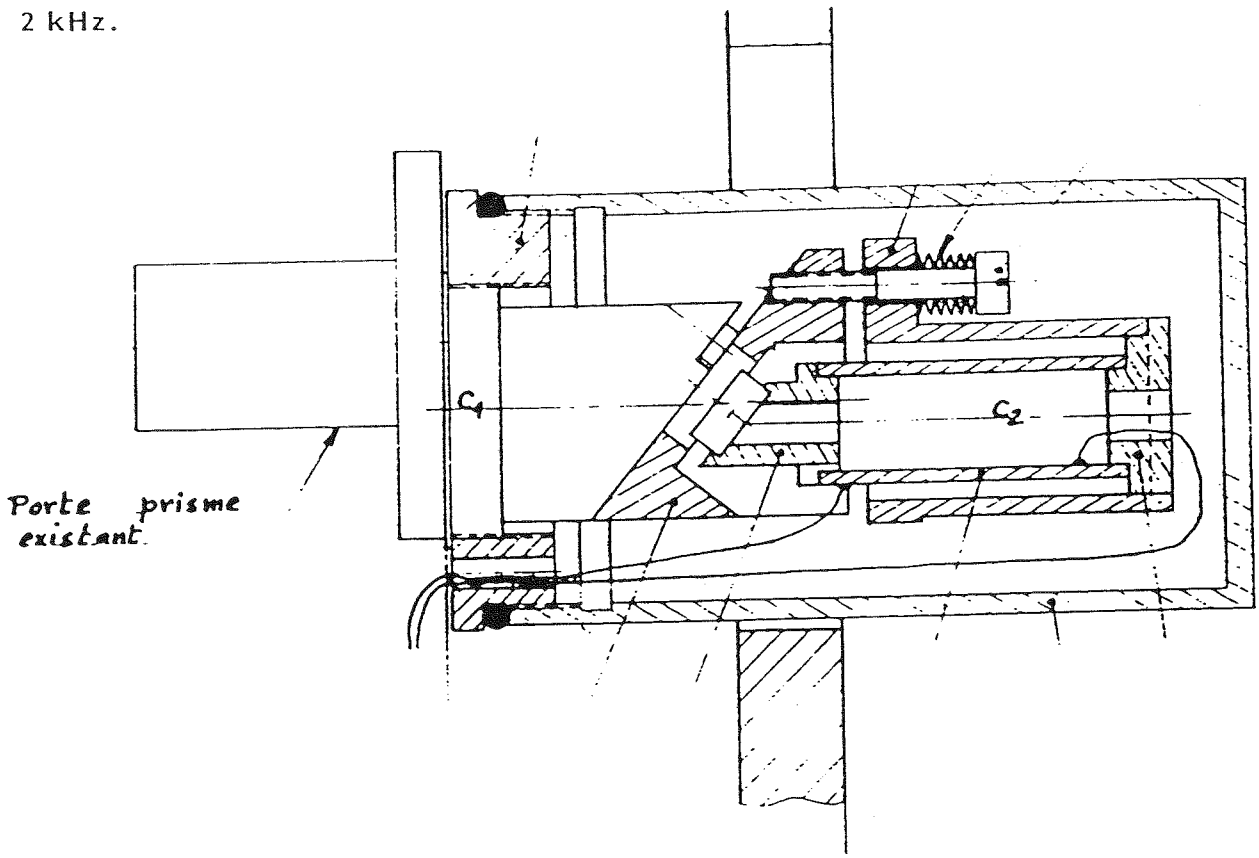


Figure II-7 : Montage du miroir arrière d'un laser Spectra-Physics 171-01 sur une céramique piézoélectrique (les fils d'alimentation permettent de repérer la céramique).

Ces performances relativement modestes ont néanmoins un effet considérable sur les comptages en coïncidences, puisque le jitter résiduel devient très inférieur à la largeur de raie. Le facteur $\overline{f^2}$ (eq. II-51) est en effet réduit de 0.1 à moins de 0.02.

Le bon fonctionnement de l'asservissement peut être contrôlé en cours d'expérience par des comptages de coïncidences fortuites, qui sont comparées aux taux de détection simples (eq. II-51) ; nous avons appliqué systématiquement de telles procédures de contrôle dans la version la plus élaborée de l'expérience (§ II-D)

../..

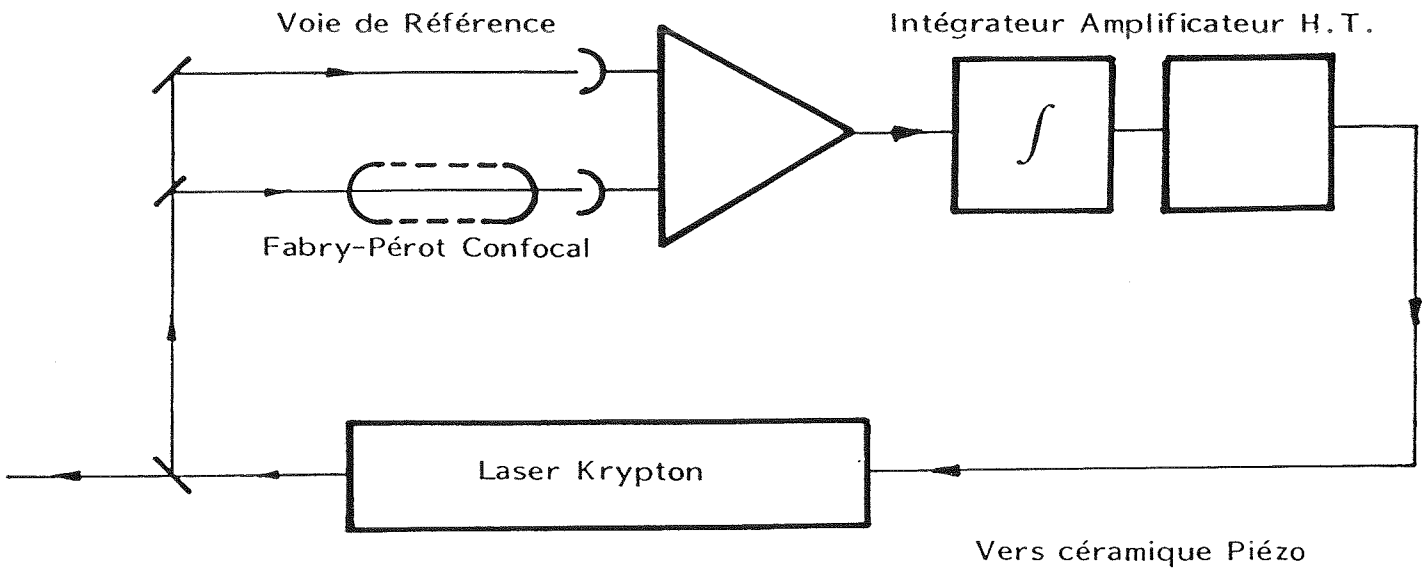


Figure II-8 : Principe de l'asservissement. Le signal d'erreur est obtenu par différence entre une voie de référence et une voie comportant un Fabry-Pérot confocal, dont la différence de marche est ajustée pour être à mi-hauteur d'un pic de transmission.

II-C-2 - L'électronique de comptage

a) Introduction

L'ensemble du dispositif est basé sur l'utilisation de modules analogiques ou logiques au standard N.I.M. (Nuclear Instrument Module), interfacés avec deux microordinateurs :

- un PDP 11/23 (MINC 11, Digital Equipment) destiné à la gestion de l'expérience et au stockage des données.

- un 8080 (MICRAL S) programmé en assembleur, comportant une carte "d'acquisition rapide incrémentale à accès direct mémoire" (ARIAM).

Il s'agit en fait d'une carte logique cablée fonctionnant en analyseur multi-canal : à chaque présentation d'une valeur numérisée sur 12 bits, le contenu de l'adresse correspondante est incrémenté d'une unité. La fonction du 8080 est de gérer l'affichage et le transfert des données contenues dans la carte ARIAM.

../..

Nous décrirons brièvement le principe des divers modules NIM utilisés ; puis l'organisation de ces modules pour remplir la fonction nécessaire à notre expérience : ouverture d'une porte de durée contrôlée, déclenchée par une détection en PMA, et analyse temporelle des détections en PMB 1 et PMB 2 pendant cette porte.

b) Discriminateurs

La fonction de ces circuits est la mise en forme des impulsions anodiques issues des photomultiplicateurs ; ces impulsions, de l'ordre de quelques dizaines de mV sur 50 Ω, peuvent éventuellement être amplifiées avant discrimination.

Dans le modèle le plus courant de discriminateur, l'information "instant d'arrivée" correspond au franchissement d'un seuil ajustable (Figure II-9) ; le front de départ de l'impulsion mise en forme (0,- 0.8 V), auquels sont sensibles les éléments ultérieurs, a un retard constant par rapport au franchissement du seuil. Dans cette configuration, le seuil a un double rôle de prise d'information temporelle et de sélection des impulsions (les impulsions trop faibles ne sont pas prises en compte).

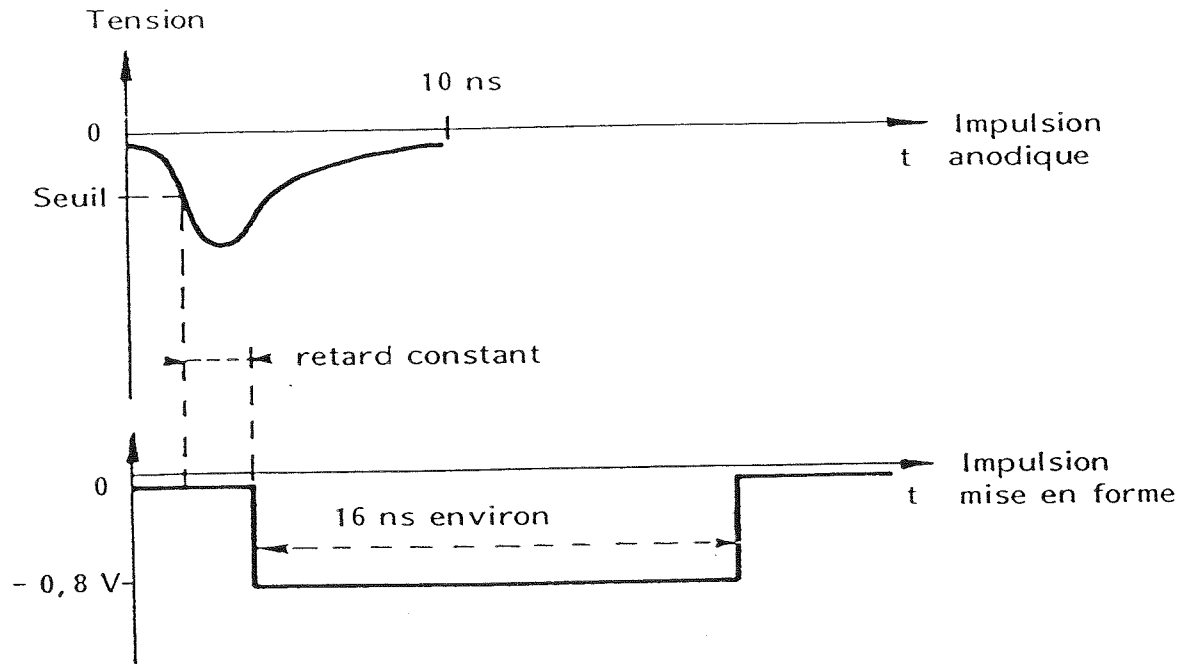


Figure II-9 : Mise en forme d'une impulsion anodique par un discriminateur NIM.

../..

Les problèmes liés au choix du seuil du discriminateur et de la haute-tension des photomultiplicateurs sont discutés en détail dans la référence[26]. Nous avons dans la présente expérience choisi un seuil plutôt élevé, ce qui revient à donner la priorité à la stabilité des taux de comptages et à la reproductibilité des résultats plutôt qu'aux rendements globaux de détection.

Le type de discriminateur que nous venons de décrire est suffisant pour des photomultiplicateurs conventionnels utilisés en comptage de photoélectrons uniques, c'est-à-dire, dans des conditions telles que l'impulsion anodique correspond à un seul électron arraché à la photocathode. Dans ces conditions, la résolution temporelle est essentiellement limitée par la "fluctuation de temps de transit" ou TTS ("transit-time spread"), correspondant à la dispersion des "temps de vol" de l'impulsion dans le tube. La largeur totale à mi-hauteur correspondante ne peut guère être meilleure que 0.6 ns, et la valeur typique est plutôt supérieure à 1 ns.

Lorsqu'une meilleure résolution temporelle est nécessaire, d'autres technologies doivent être utilisées (discriminateurs à fraction constante et photomultiplicateur à galettes de microcanaux, voir chapitre V).

c) Convertisseur Temps-Amplitude

Le CTA est un circuit Marche-Arrêt (START/STOP) délivrant une impulsion analogique de hauteur proportionnelle à l'intervalle de temps séparant le START du STOP. La hauteur de cette impulsion est ensuite numérisée et le mot binaire résultant est appliquée à l'entrée de l'analyseur multicanal (carte ARIAM). La résolution temporelle peut atteindre quelques dizaines de ps.

Après l'arrivée d'une impulsion déclenchant le "START", le CTA attend une impulsion "STOP" pendant un certain temps ("gamme"), de l'ordre de 100 ns. Si aucun STOP n'arrive pendant la gamme, la réinitialisation du circuit peut prendre un temps assez long(de l'ordre de la microseconde), ce qui est très gênant lorsque le taux de START est élevé.

Ce problème est résolu au moyen d'un module logique dont le fonctionnement, schématisé sur la figure I-10, peut être résumé en disant que le START ne passe que s'il est suivi d'un STOP (le paradoxe apparent de cet énoncé est résolu par des retards judicieusement choisis, et la remarque que l'on peut inverser START et STOP).

../..

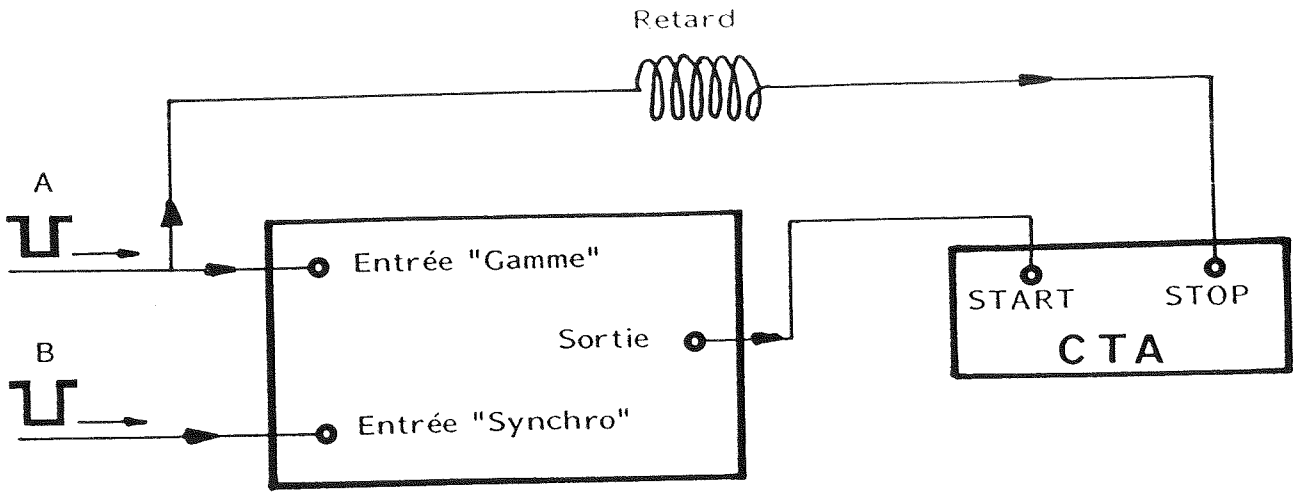


Figure II-10 : L'impulsion A déclenche une "gamme" d'environ 100 ns, pendant laquelle une impulsion B se présentant sur l'entrée "synchro" est reproduite sur la sortie. Le CTA reçoit alors une impulsion START, et l'impulsion A retardée est utilisée comme STOP. En l'absence d'impulsion B suivant une impulsion A le CTA reste inactif. L'inversion du Start et du Stop donne une symétrie sur le spectre-temps.

Une utilisation particulière du CTA est celle de "sélecteur monocanal". Dans ce cas, l'impulsion analogique n'est pas numérisée, mais envoyée dans un double discriminateur possédant deux seuils ajustables. On peut ainsi sélectionner une gamme d'intervalles temporels entre le START et le STOP de manière très précise (typiquement avec une résolution meilleure que 0.1 ns). La partie logique du sélecteur monocanal fait appel à un module appelé "fonction priorité". Cette fonction est déclenchée lorsqu'une paire valide START/STOP est détectée ; le franchissement du premier seuil correspond à une "autorisation", et celui du second à une "interdiction", et on obtient un signal en sortie si et seulement si la hauteur de l'impulsion analogique est dans la gamme prescrite. Le principe de l'ensemble du sélecteur, qui nous sera utile pour la suite, est résumé sur la figure II-11.

d) Modules logiques

L'utilisation de monostables délivrant des impulsions de longueurs variables, normales (0, - 0.8 V) ou complémentées (- 0.8 V repos, 0 V actif), et de circuits OU et ET permet de réaliser différentes fonctions de tri ou d'identification d'impulsions.

../..

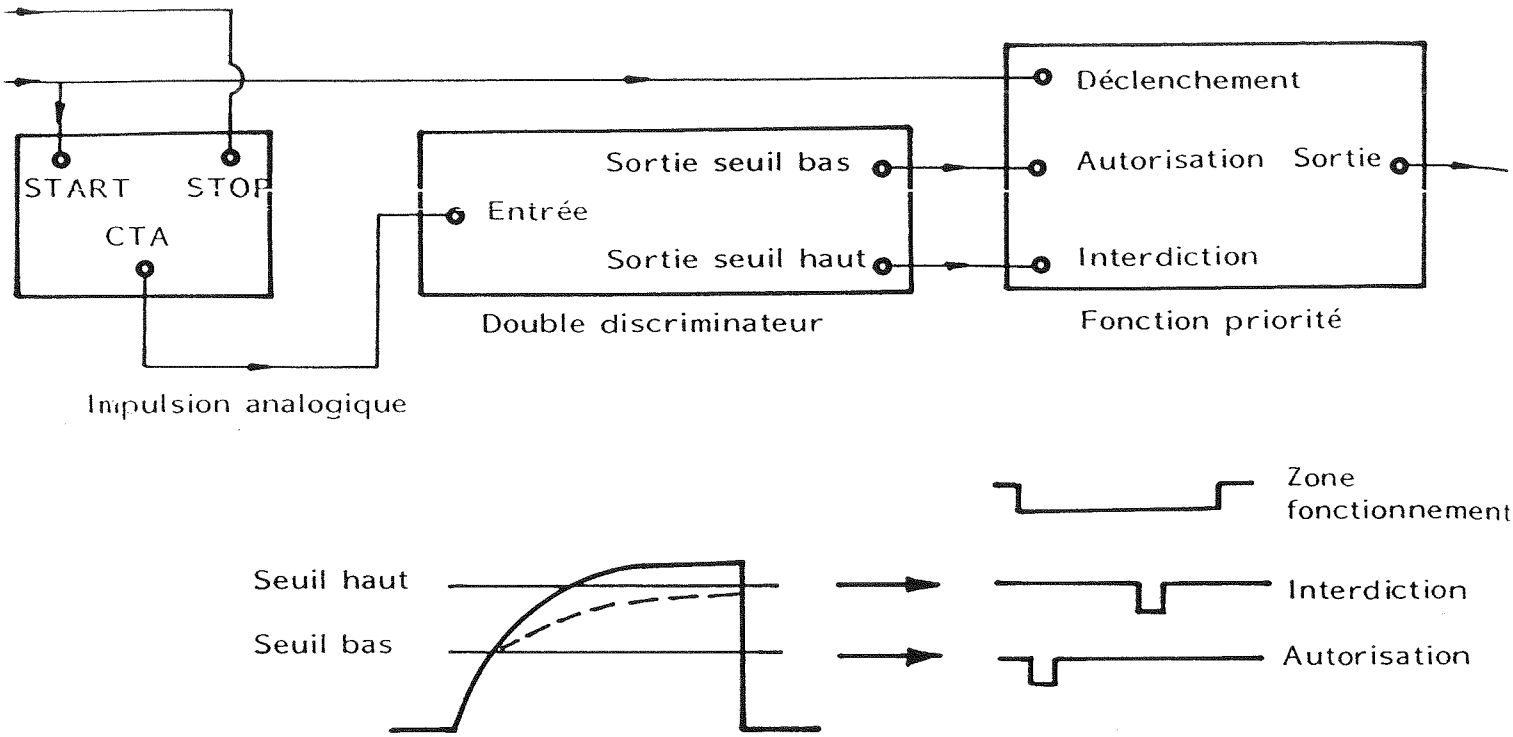


Figure II-11 : Principe d'un sélecteur monocanal. L'impulsion analogique issue du CTA (représentée dans la partie inférieure de la figure) provoque l'apparition d'impulsions d'autorisation et d'interdiction lorsque son amplitude dépasse les seuils respectivement bas et haut du discriminateur. La "fonction priorité" réagit aux impulsions présentes pendant sa "zone de fonctionnement", qui est déclenchée par l'impulsion START. On sélectionne ainsi des paires Start/Stop dont l'intervalle de temps est compris dans des limites précises.

Nous disposons également de circuits à coïncidences à recouvrement. Il s'agit en fait de circuits ET suivis d'un étage de mise en forme, délivrant une impulsion de sortie si les deux impulsions d'entrées se chevauchent pendant une durée supérieure à un minimum déterminé.

Ces circuits ne sont pas utilisables pour fabriquer des portes précises de l'ordre de 9 ns, dont nous avons besoin pour l'expérience elle-même. Par contre, nous les avons utilisés systématiquement en vue de contrôles du bon fonctionnement de la source, la "fenêtre de coïncidence " étant alors de l'ordre de 18 ns (voir § II-B-3-c).

../..

Comme nous l'avons déjà dit, la fonction à réaliser par le montage est l'ouverture des deux portes de durée environ 9 ns, déclenchées par une détection en PMA, pendant lesquelles on vient observer les détections en PMB 1 et PMB 2. Ces deux portes doivent dans la mesure du possible être parfaitement égales et superposables (non décalées dans le temps).

Diverses tentatives utilisant des circuits ET ou des circuits à recouvrement se son révélées peu concluantes : les portes obtenues n'avaient pas de bords francs, à cause d'aléas de déclenchements des circuits, et leur durée ne pouvait être controlée à mieux qu'une nanoseconde. D'après la discussion du § II-B-3-b, une telle situation doit être évitée pour que le test de l'inégalité $\alpha_{Class} \geqq 1$, puisse être considéré comme probant.

e) La solution adoptée

Elle repose sur l'utilisation de deux sélecteurs monocanal, qui valident PMB 1 et PMB 2, suivant le principe décrit en c). L'ajustement et la superposition des fenêtres se fait grâce aux réglages de seuils des discriminateurs, et atteint une précision d'environ 0.1 ns. Deux compteurs mesurent alors N_1 et N_2, et un circuit ET supplémentaire permet d'obtenir N_c.

Nous obtenons ainsi les quatre taux N_A, N_1, N_2 et N_c nécessaires à la mesure du paramètre d'anticorrélation α.

Nous avons cependant cherché à obtenir une information plus "fine" sur le spectre temporel des photodétections, correspondant à la mesure des taux de comptage différentiels $n_1(\tau)$, $n_2(\tau)$ et $n_c(\tau)$ calculés dans le § II-B-3-a. En utilisant un troisième convertisseur temps-amplitude, il est en effet possible de mesurer les intervalles de temps :

- entre une détection en PMA et une détection en PMB 1 (resp. PMB 2) en l'absence de détection en PMB 2 (resp. PMB 1) pendant w ;

- entre une détection en PMB 1 et une détection en PMB 2 si toutes deux se produisent pendant w.

Cette mesure suppose la mise en jeu d'une fonction de tri des impulsions, dont l'organisation est résumée sur la Fig. II-12.

../..

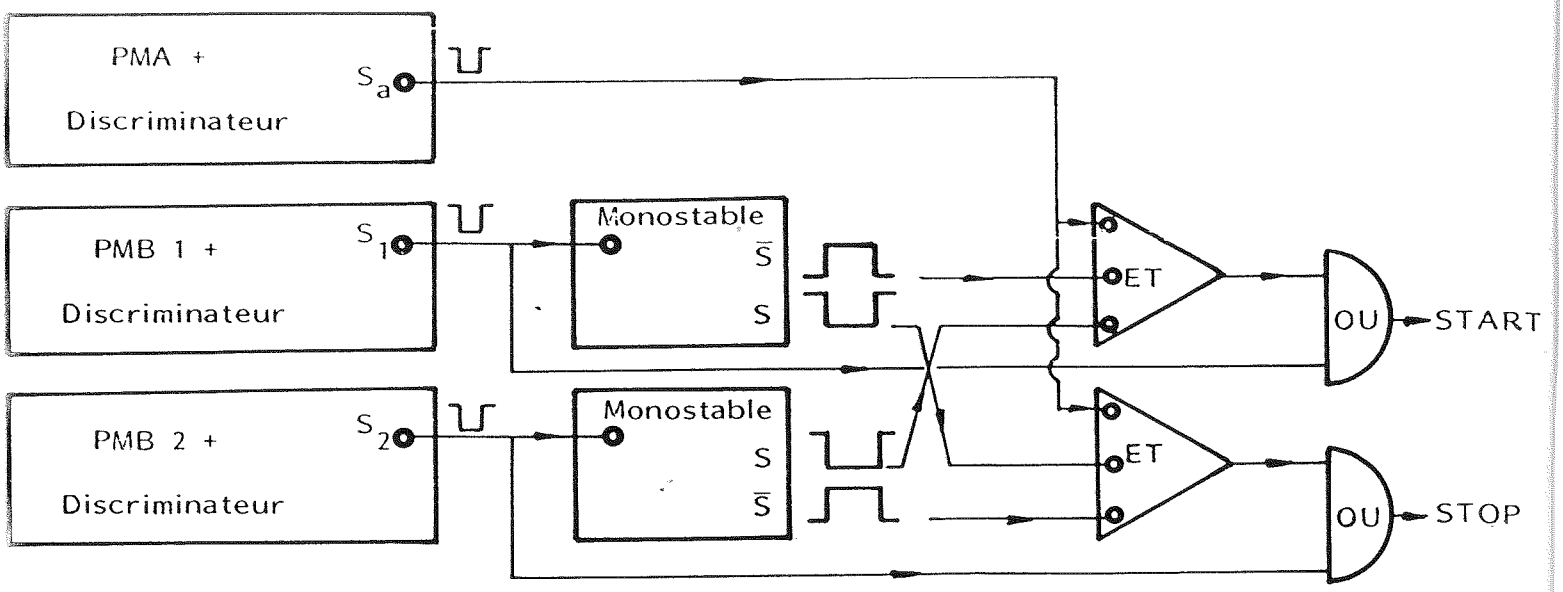


Figure II-12 : Logique de tri des impulsions. Les sorties $\bar{S}$ des monostables correspondent à une inversion logique. L'impulsion issue de PMA n'est admise que si une des impulsions issues de PMB 1 et PMB 2 est présente, et l'autre absente, pendant l'intervalle de temps défini par les monostables. Le choix définitif des impulsions qui seront prises en compte est effectué par les sélecteurs monocanaux (voir Fig. II-13).

Enfin, nous mesurons également les taux de coïncidences "vraies" et "retardées" entre PMA et PMB 1 d'une part, PMA et PMB 2 d'autre part. Les coïncidences "vraies" correspondent à un centrage du circuit à recouvrement entre - 2 ns et + 16 ns par rapport au pic de corrélation, et les coïncidences retardées à un centrage entre + 100 ns et + 118 ns destiné à évaluer le "fond" de coïncidences fortuites.

f) Conclusion

Le synoptique de l'ensemble de l'électronique de comptage est présentée sur la figure II-13. Onze taux de comptages sont enregistrés simultanéments :

- Les quatre taux N_A, N_1, N_2, N_c ;
- Les taux en simples non commandés N_T et N_R ;
- Les quatre taux de coïncidences vraies et retardées ;
- Le taux d'impulsions codées par le convertisseur analogique/numérique (entrée ARIAM) ;
- Le douzième compteur de notre module est utilisé en horloge.

../..

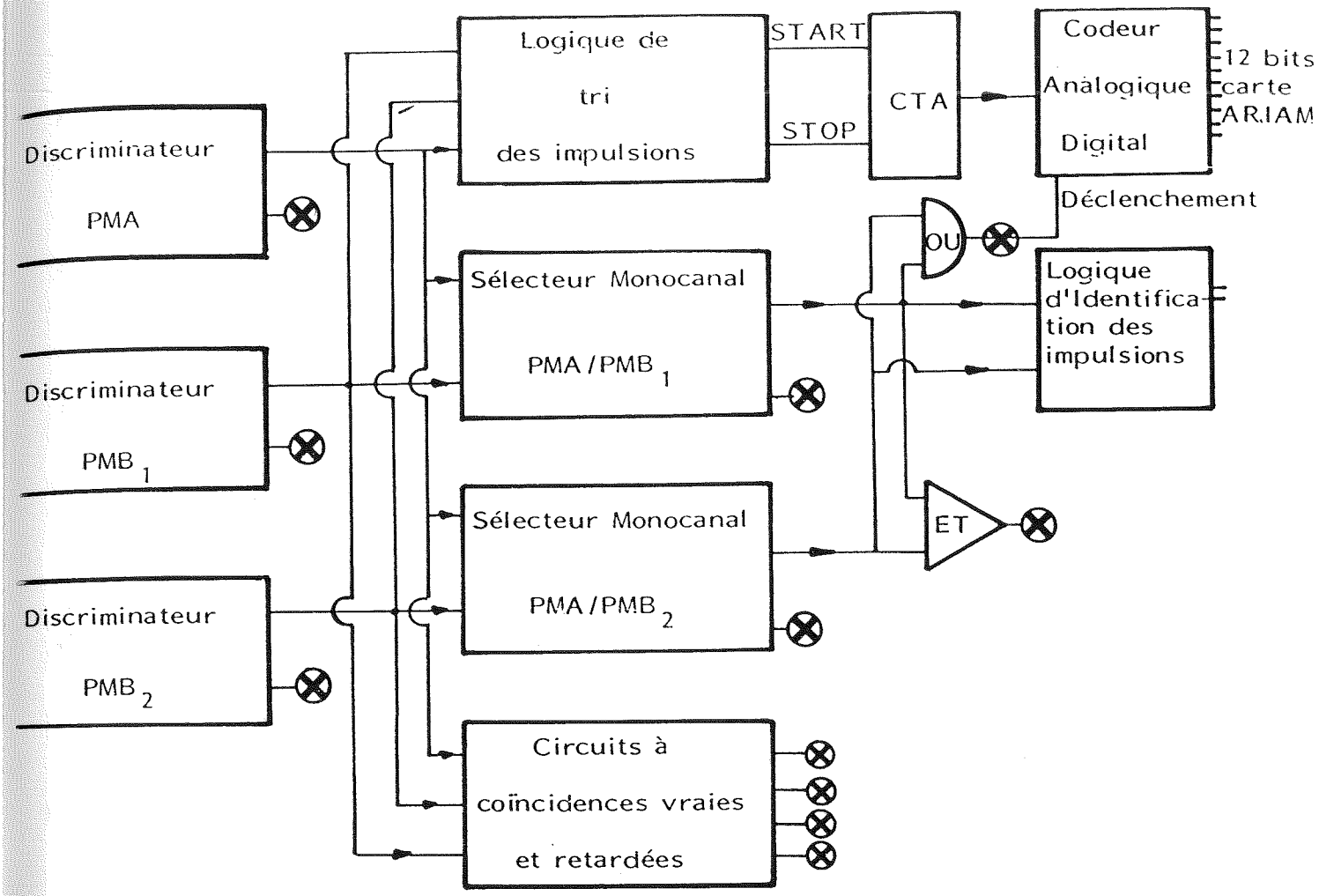


Figure II-13 : Synoptique des circuits de comptages. Les symboles X représentent les 11 compteurs. Les 12 bits de l'analyseur multicanal (carte ARIAM) comprennent les 10 bits de sortie du codeur analogique/digital, et 2 bits servant à l'identification des impulsions.

Le système est conçu de façon à visualiser en permanence les signaux mesurés sur l'écran de l'analyseur multicanal, ce qui permet un contrôle en temps réel du bon fonctionnement et du centrage des circuits de mesures (sélecteurs monocanaux).

Le déroulement d'une expérience et les résultats obtenus seront décrits dans le paragraphe suivant.

II-D - RESULTATS EXPERIMENTAUX

II-D-1 - Procédure expérimentale

a) Introduction

Deux versions différentes de l'expérience d'anticorrélation ont été réalisées. Dans la première, nous avons utilisé des circuits à coïncidences à recouvrement pour définir les portes de comptages w, et le laser Krypton n'était pas asservi. Bien que l'effet d'anticorrélation ait été nettement mis en évidence, l'inteprétation des résultats nécessitait des procédures correctives destinées à compenser par exemple l'inégalité des portes de comptages, et nous ne citerons ces résultats que très partiellement. La deuxième version de l'expérience a été réalisée conjointement avec l'expérience d'interférences qui sera décrite au chapitre suivant, et c'est cette deuxième version qui sera décrite en détail dans ce paragraphe.

Dans les deux cas, les photomultiplicateurs PMB 1 et PMB 2 sont disposés de part et d'autre d'une lame séparatrice utilisée sous faible incidence (respectivement 11° et 15°) ; dans la deuxième version, nous avons simplement utilisé l'interféromètre de Mach-Zehnder qui sera décrit dans le chapitre III, en modifiant la disposition des lames de façon à ce que le faisceau ne traverse qu'une seule fois la séparatrice.

b) Déroulement d'une expérience

Chaque séquence de mesures commence par le réglage du taux d'émission de la source au niveau désiré. Une première approximation est obtenue en jouant sur les puissances des lasers et sur la densité du jet atomique. Lorsque la zone de fonctionnement est atteinte, l'ajustement précis au niveau désiré se fait en modifiant le point de consigne de l'asservissement d'intensité (voir § II-C-1). Le tableau II-1 indique les valeurs des différents paramètres correspondant aux mesures effectuées.

Remarque :

Pour les valeurs les plus élevées de la densité dans la zone source, la possibilité de réabsorption résonnante du deuxième photon de la cascade ne peut être négligée sans discussion ; ce point sera abordé dans le paragraphe suivant.

$\bar{\mathcal{N}}$ (10^7 s^{-1})	$\bar{N}_A$ (s^{-1})	x	P_{Dye} (mW)	P_{Kr} (mW)	Temp. (°C)	Densité (10^{10} cm^{-3})
0.87	4700	0.065	35	35	605	2.1
1.65	8800	0.125	25	55	615	2.8
2.27	12000	0.175	25	70	615	2.8
3.82	20000	0.300	30	80	625	3.6
6.93	36000	0.540	35	80	635	4.5
9.65	50000	0.750	35	85	650	6.2
12.95	67000	1.00	35	90	660	7.6

Tableau II-2 : Paramètres d'excitation de la cascade radiative pour l'ensemble des mesures effectuées. Pour chaque mesure, caractérisée par $\bar{\mathcal{N}}$, N_A ou x, on donne les puissances laser (P_{Dye} et P_{Kr}), la température du four et la densité dans la zone source. Un paramètre supplémentaire lors du réglage est le point de consigne de l'asservissement d'intensité, qui n'est pas indiqué sur ce tableau.

Après obtention du niveau désiré, les asservissements sont verrouillés et les comptages proprement dits commencent sous le contrôle de l'ordinateur central. Une séquence de mesures comprend 16 périodes de comptages de 400 s, séparées par des transferts des données vers l'ordinateur, et dure environ deux heures. Lorsqu'une mesure est interrompue par un décrochage d'un asservissement, le transfert a lieu immédiatement, le temps de comptage effectif est enregistré, et une nouvelle séquence est lancée automatiquement lorsque le fonctionnement des asservissements est redevenu normal.

Entre deux séquences successives, le réglage des lasers est optimisé et la température du four contrôlée ; remarquons que des modifications de ces paramètres n'affectent pas le taux d'émission de la source, qui est maintenu constant par l'asservissement d'intensité. La dynamique de cet asservissement est suffisante pour corriger des variations de l'ordre de ± 30 % des paramètres d'excitation.

../..

En fin de séquence, un programme de pré-traitement des données donne les valeurs moyennes et les dispersions de tous les taux de comptages, estimées sur l'ensemble des mesures de 400 s. Les taux de coïncidences par circuits à recouvrement sont traités immédiatement, et permettent de contrôler la stabilité de la source (mesure des coïncidences fortuites, § II-C-1) et les rendements de détection (mesure des coïncidences vraies, § II-B-3).

L'acquisition des données est donc conçue de façon à ne pas nécessiter la présence d'un opérateur pendant les séquences de mesures (périodes de 2 heures), le stockage systématique de toutes les données sur ordinateur permettant de contrôler "a posteriori" le bon fonctionnement de l'appareillage.

c) La diffusion multiple résonnante

Ce paragraphe est consacré à la discussion de l'effet de la diffusion multiple résonnante des photons ν_B par des atomes du jet, qui ne peut être négligée "a priori" puisque les valeurs de l'épaisseur optique à résonance sont comprises entre 1 et 3 pour les valeurs de densités indiquées dans le tableau II-1.

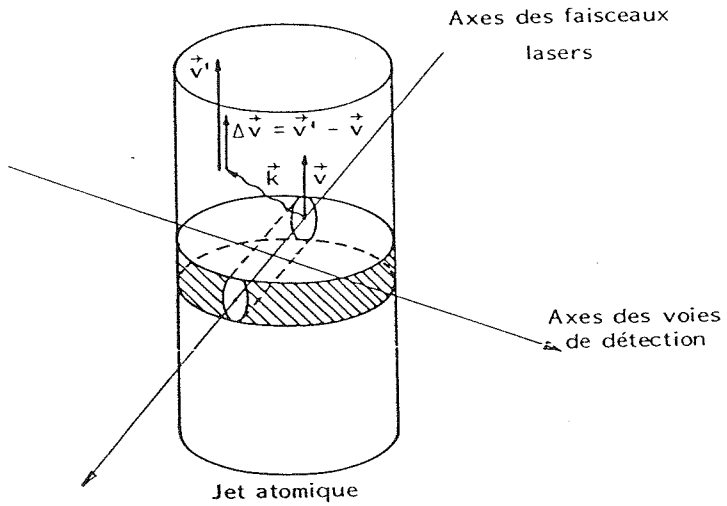


Figure II-14 : Géométrie de la zone d'intersection entre le jet atomique (cylindre vertical) et les faisceaux lasers (petitcylindre horizontal). La réabsorption des photons émis n'est significative que dans la zone hachurée, correspondant à une valeur moyenne de $(\vec{k}.\ \Delta\vec{v})$ de l'ordre de la longueur naturelle $\Gamma_r = 1/\tau_r$

Nous allons montrer tout d'abord que la réabsorption résonnante des photons ν_B a pour premier effet de diminuer le nombre de photons collectés. La géométrie

../..

de la zone source (intersection du jet atomique et des faisceaux lasers) est schématisée sur la Figure II-14. En raison de l'effet Doppler dû à la distribution des vitesses relatives $\Delta\vec{v}$ des atomes du jet, l'absorption résonnante n'est significative que dans la zone hachurée, correspondant à une valeur de $(\vec{k} \cdot \Delta\vec{v})$ de l'ordre de la largeur naturelle $1/\tau_r$. Par ailleurs, la zone source est conjuguée optiquement avec une fente par une lentille de grande ouverture, dont la profondeur de champ (latitude de mise au point) est très faible ; l'angle solide effectif de collection de la lumière émise en dehors de la zone source proprement dite sera donc très faible. Par conséquent, la majorité des photons rediffusés ne seront pas détectés (dans le rapport des volumes de la zone hachurée et de la zone source).

On doit donc observer une diminution du rapport N_B/N_A des taux de comptages des photons ν_B et ν_A lorsque la densité atomique augmente, ce qui a bien été confirmé expérimentalement (Figure II-15). Remarquons que cette diminution n'excède pas 10 %, pour les densités les plus élevées qui nous seront nécessaires.

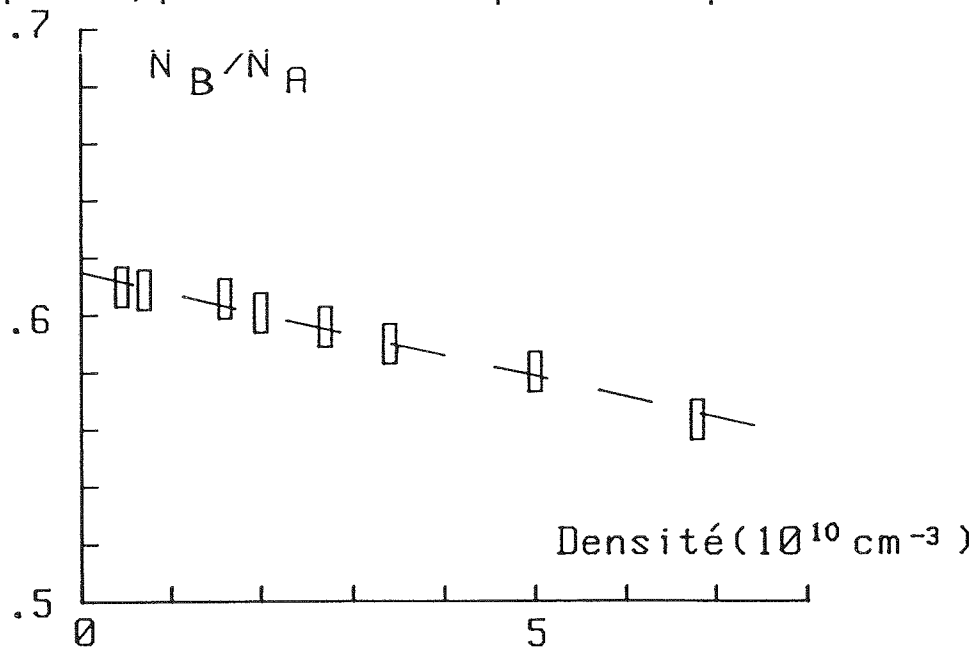


Figure II-15 : Variation du rapport N_B / N_A en fonction de la densité atomique. Ce rapport varie d'environ 7 % (0.6 à 0.56) dans la gamme de densités qui nous seront nécessaires (2 à 7.5 $10^{10} cm^{-3}$, voir tableau II-2).

Par ailleurs, nous n'avons jamais observé d'allongement notable de la durée de vie de la cascade, contrairement à des expériences similaires ayant utilisé une autre géométrie de la zone source[43]. Ceci s'explique par le fait que l'essentiel de la lumière collectée n'a pas subi de diffusion résonnante.

../..

On peut alors remarquer que l'expression du paramètre d'anticorrélation α en fonction de $\mathcal{N}$, de $\bar{N}_A$ ou de x ne fait pas intervenir les rendements de collection de κ_1 et κ_2 ; notre configuration spécifique, la diffusion résonnante n'a pas d'effet au premier ordre sur les quantités que nous mesurons, et ne sera donc plus considérée dans la suite de l'exposé. La justification intuitive de cette conclusion est évidente, tant que la seule conséquence de l'absorption est une perte de signal ; cette conclusion ne se justifierait plus en cas de modification appréciable de la durée de vie effective du niveau intermédiaire de la cascade, qui entrainerait une perturbation plus sérieure des phénomènes mis en jeu.

II-D-2 - Analyse des données

a) Résultats bruts ; violation de l'inégalité semi-classique

Les résultats bruts obtenus sont résumés sur le tableau II-3. Nous indiquons, après la durée de comptage T, le nombre de coïncidences correspondant à la limite inférieure pour le modèle semi-classique :

$$N_{Class}\, T = \frac{N_1 N_2}{N_A} \cdot T \qquad (II-52)$$

On a alors :

$$\alpha_{exp} = \frac{N_c T}{N_{Class} T} \qquad (II-53)$$

La dernière colonne indique la violation de l'inégalité $\alpha_{Class} \geq 1$, comptée en nombre d'écarts-type $\Delta\alpha = \alpha / \sqrt{N_c T}$; la violation maximale est obtenue pour $N_A = 8870\ s^{-1}$, pour la valeur du paramètre d'anticorrélation :

$$\alpha_{exp} \cong 0.18 \pm 0.06 \qquad (II-54)$$

../..

N_A (s^{-1})	N_1 (s^{-1})	N_2(s^{-1})	T(s)	$N_{Class}T$	N_cT	$(1-\alpha)/\Delta\alpha$
4 720	2.45	3.23	15 200	25.5	6	8
8 870	4.55	5.75	17 200	50.8	9	14
12 100	6.21	8.44	14 800	64.1	23	8.5
20 400	12.6	17.0	19 200	204	86	12.7
36 500	31.0	40.6	13 200	456	273	11
50 300	47.6	61.9	8 400	492	314	10
67 100	71.5	95.8	3 600	367	291	5

Tableau II-3 : Taux de comptages et nombres de coïncidences dans l'expérience d'anticorrélation. Les colonnes "$N_{Class}T$" et "N_cT" correspondent respectivement au nombre minimal de coups attendus pour tout modèle semi-classique, et au nombre de coups effectivement observé. L'inégalité semi-classique testée est $N_c\ T \geq N_{Class}T$. L'importance de sa violation est indiquée en dernière colonne.

Remarques :

- La réaugmentation du facteur de mérite $Q/\sqrt{T}$ à partir de N_A = 20 400 est due à une retouche du réglage optique de la voie de détection B, ayant entrainé une augmentation de κ_1 et κ_2.

- Une violation équivalente avait été obtenue dans la première version de l'expérience, utilisant des circuits à recouvrement. Nous avions alors obtenu, au maximum de $(1 - \alpha)/\Delta\alpha$:

$$\alpha_{exp} = 0.35 \pm 0.05 \qquad (II-55)$$

b) Contre-expérience

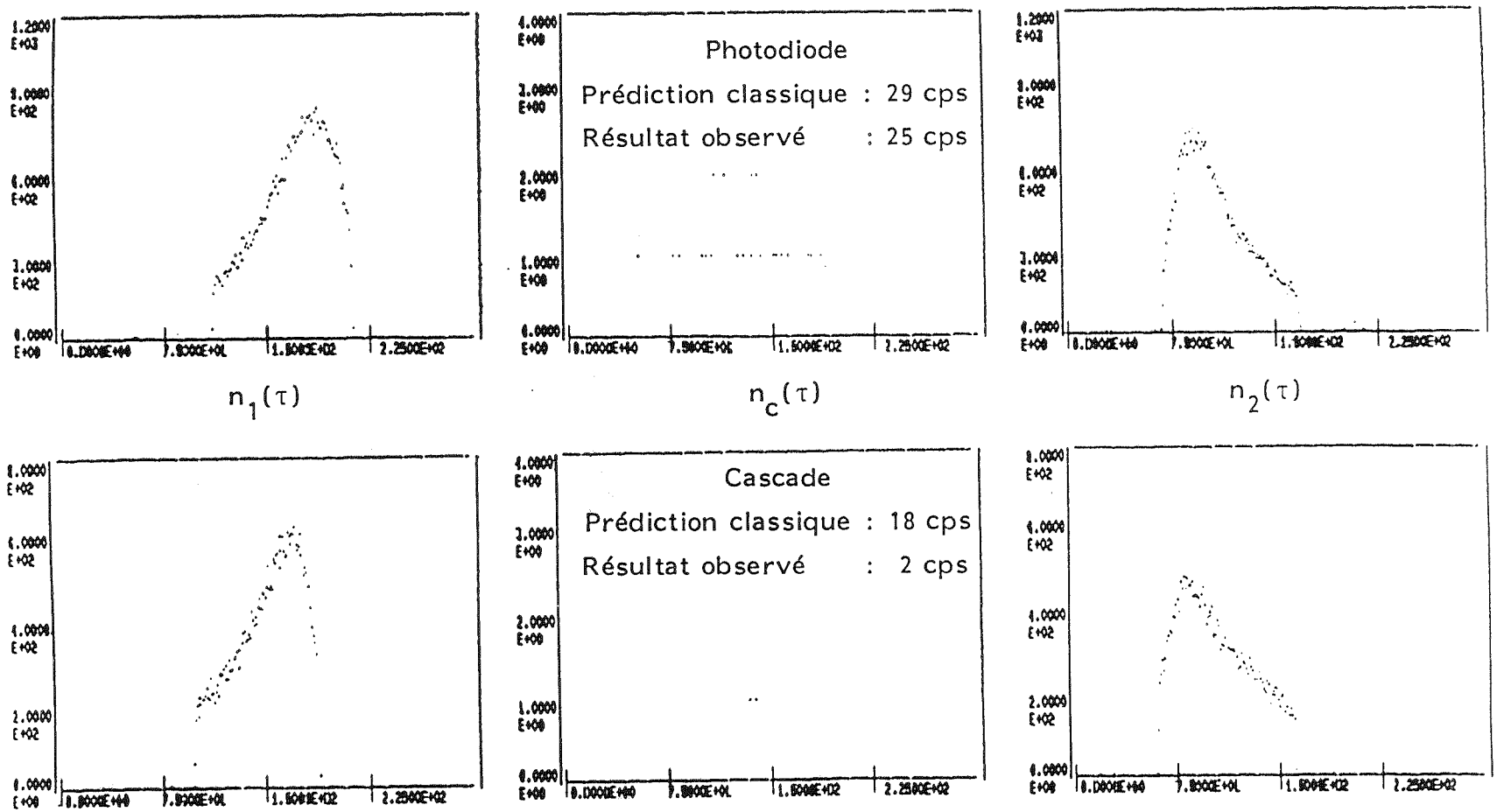
Une contre-expérience a été réalisée en utilisant une photodiode alimentée par des impulsions électriques très brèves (3 à 4 ns de largeur totale à mi-hauteur, amplitude $\sim$ 300 mV). La durée de l'impulsion lumineuse émise est alors très voisine de la durée de vie de la cascade. Le taux de déclenchement N_A est simplement le taux de répétition de ces impulsions. Les probabilités $p_1 = N_1/N_A$ et $p_2 = N_2/N_A$ peuvent être ajustées à des valeurs voisines de celles correspondant à l'expérience réelle, c'est-à-dire un peu inférieures à 10^{-3}.

Par contre, l'impulsion lumineuse émise par la photodiode est évidemment descriptible par une intensité classique I(t), qui varie d'ailleurs de façon déterministe pendant la durée de la porte (voir Remarques ci-dessous). La probabilité d'observer une coïncidence est alors simplement la probabilité de coïncidence fortuite $p_c = p_1 p_2$.

Le tableau II-4 résume les résultats expérimentaux. $N_{Class}T$ est toujours défini par la relation (II-51) et on observe que les valeurs expérimentales (N_cT) sont parfaitement compatibles avec les prédictions semi-classiques ($N_{Class}T$). Ces résultats doivent bien sûr être comparés avec ceux du tableau II-3, obtenus avec le même système de comptage mais en utilisant pour source notre cascade radiative.

N_A (s^{-1})	N_1 (s^{-1})	N_2 (s^{-1})	T(s)	$N_{Class}T$	N_cT
4 760	3.02	3.76	31 200	74.5	82
8 880	5.58	7.28	31 200	143	153
12 130	7.90	10.2	25 200	167	157
20 400	14.1	20.0	25 200	349	341
35 750	26.4	33.1	12 800	313	329
50 800	44.3	48.6	18 800	798	840
67 600	69.6	72.5	12 800	955	925

Tableau II-4 : Taux de comptages et nombre de coïncidences dans la contre-expérience utilisant une photodiode pulsée. Les colonnes "$N_{Class}T$" et "N_cT" correspondent respectivement aux prédictions semi-classiques et aux nombres de coups observés.



$n_1(\tau)$ $n_c(\tau)$ $n_2(\tau)$

Figure II-16 : Spectres-temps $n_1(\tau)$, $n_c(\tau)$ et $n_2(\tau)$ pour la photodiode (en haut) et pour la cascade (en bas) (L'inversion de $n_1(\tau)$ est due au fonctionnement des circuits de comptage). Alors que $n_1(\tau)$ et $n_2(\tau)$ sont très voisins dans les deux cas, le nombre de coïncidences varie considérablement (25 et 2). Les détections observées dans le cas de la cascade correspondent donc bien à des "photons uniques".

Remarques :

- La photodiode utilisée étant une source incohérente à la fois spatialement et temporellement, l'effet Hanbury-Brown et Twiss est inobservable dans la configuration employée.

- Les spectres-temps correspondant aux détections dans les fenêtres w sont très proches de ceux observés dans l'expérience réelle, puisque la durée de l'impulsion lumineuse est voisine de la durée de vie de la cascade (voir Fig. II-16). Sur la même figure sont représentés les spectres-temps des coïncidences entre PMB 1 et PMB 2 : la différence entre les deux sources est alors évidente.

c) Contrôles de l'électronique et mesure des rendements de collection

L'interprétation quantitative des résultats précédents s'effectue en reliant le taux N_A au paramètre caractérisant le nombre de cascades émises pendant une porte w :

$$x = w\,\overline{\mathcal{N}}/\xi = w\,N_A/\kappa_A\,\xi$$

Le rendement de collection κ_A a été mesuré pour chaque séquence de mesures en utilisant la méthode de coïncidences exposée dans le paragraphe II-B-3 ; on a obtenu :

$$\kappa_A = (0.515 \pm 0.015)\ 10^{-3} \qquad \text{(II-56)}$$

L'incertitude indiquée rend principalement compte de la reproductibilité de la valeur mesurée, au cours des deux semaines qui ont été nécessaires pour effectuer toutes les mesures.

Par ailleurs, nous avons vu dans le § II-B-3-c qu'il est possible d'obtenir directement les valeurs de w et $\kappa_A\,\xi$, qui sont simplement la pente et l'ordonnée à l'origine des droites représentant N_1/N_T et N_2/N_R en fonction de N_A (Fig. II-17).

En raison de l'imperfection des ajustements électroniques, les portes w_1 correspondant à N_1 et w_2 correspondant à N_2 ne sont pas parfaitement confondues.

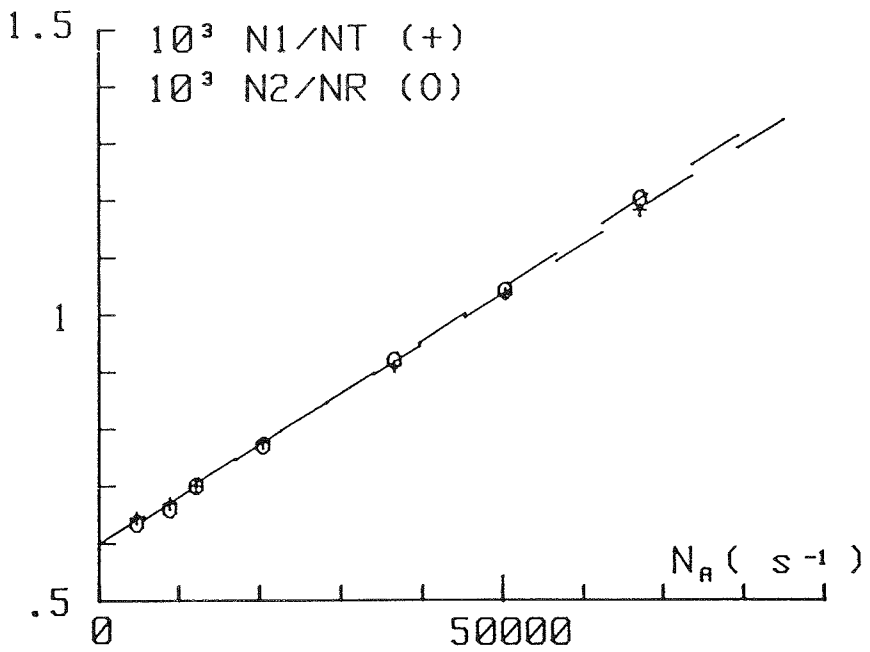


Figure II-17 : Variations de N_1/N_T et N_2/N_R en fonction de N_A. Ces droites permettent de comparer les valeurs des portes w_1 et w_2 (pentes des deux droites) et des paramètres $\kappa_A \xi_1$ et $\kappa_A \xi_2$ (ordonnées à l'origine).

On obtient par régression linéaire sur les deux droites de la Figure II-17 :

$$\kappa_A \xi_1 = 0.60\ 10^{-3} \qquad w_1 = 8.7\ 10^{-9}\ s$$

$$\kappa_A \xi_2 = 0.59\ 10^{-3} \qquad w_2 = 9.1\ 10^{-9}\ s \qquad \text{(II-57)}$$

Ces valeurs sont compatibles avec des mesures directes de w_1 et w_2, utilisant les spectre-temps de la Fig. II-16. Le paramètre x est alors lié à N_A par la relation(cf. II-43) :

$$x = \frac{1}{2}\left(\frac{w_1}{\kappa_A \xi_1} + \frac{w_2}{\kappa_A \xi_2}\right) N_A$$

ou encore :

$$x = 1.5\ 10^{-5}\ N_A \qquad \text{(II-58)}$$

../..

Cette relation permet de faire le lien entre le taux de comptage expérimental N_A et le paramètre sans dimension x ; les résultats quantitatifs qui en découlent sont présentés dans le paragraphe suivant.

d) Résultats quantitatifs et conclusion

Sur la Figure II-18, nous avons présenté les valeurs théoriques et expérimentales du paramètre d'anticorrélation α, en fonction de x et N_A. Pour permettre la comparaison, les valeurs de α obtenues dans la contre-expérience sont portées sur la même figure.

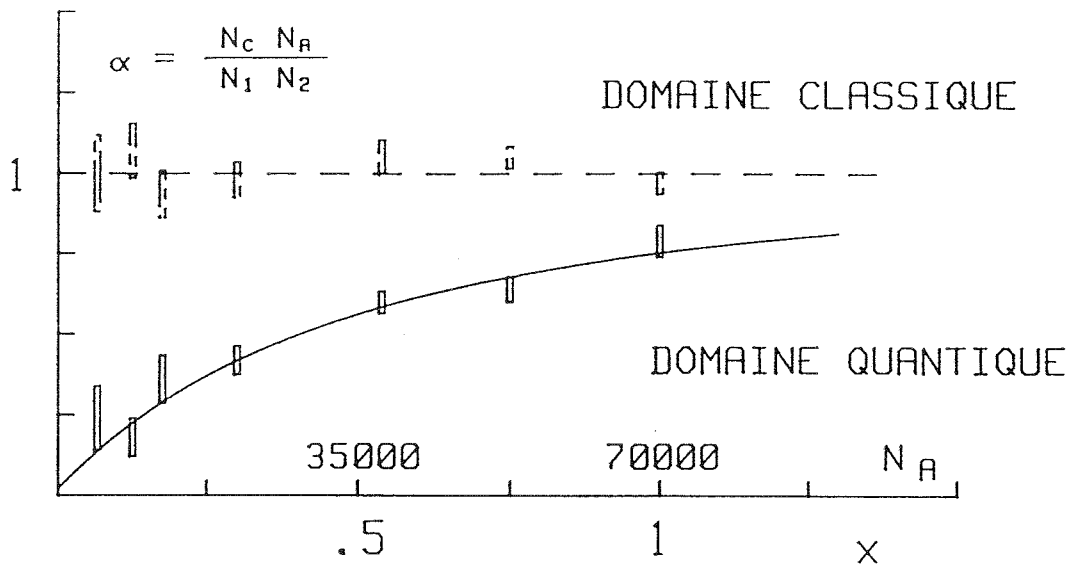


Figure II-18 : Valeurs théoriques et expérimentales du paramètre d'anticorrélation α. Les rectangles en traits pleins correspondent à l'expérience utilisant la cascade radiative, et les rectangles pointillés à la contre-expérience utilisant une photodiode pulsée.

L'effet d'anticorrélation a donc été clairement mis en évidence : la lumière détectée pendant la porte w (déclenchée par le premier photon de la cascade) présente des propriétés caractéristiques d'un "état à un seul photon".

La propriété principale de la cascade que nous avons utilisée est évidemment son aptitude à fournir des paires de photons ν_A, ν_B fortement corrélés temporellement. Nous allons discuter brièvement dans le paragraphe suivant d'autres exemples d'effets quantiques basés sur la production de paires de photons.

../..

II-D-3 - Discussion - Comparaison avec d'autres expériences

a) L'expérience de Clauser

Clauser a réalisé en 1973 une expérience destinée à établir le caractère quantique des processus de photodétection,[44] grâce à des mesures de corrélations d'intensité dans une cascade atomique (la même que celle utilisée dans ce travail). Dans le même article, il présente une analyse de tentatives précédentes[45, 46] pour observer des effets quantiques en utilisant simplement de la lumière atténuée ; il nous a semblé intéressant de rappeler brièvement cette discussion, qui est reliée à la recherche d'un "terme de coïncidences anormal" prédit par les théories semi-classiques.

Imaginons en effet, que l'émission des atomes d'une source faiblement excitée soit décrite par une suite de "trains d'ondes" classiques, amortis en un temps de l'ordre de la durée de vie des atomes excités. La fonction d'autocorrélation de cette intensité "pulsée" présentera un terme dit "terme de coïncidences anormales", dû aux corrélations de chaque impulsion avec elle-même.

Plus précisément, le modèle semi-classique prédit que les taux de comptages de part et d'autre d'une lame séparatrice seront :

$$S_1 = \eta_1 E \qquad S_2 = \eta_2 E \qquad \text{(II-59)}$$

où η_1 et η_2 sont les probabilités pour qu'une impulsion provoque une photodétection, et E est le taux d'émission des impulsions.

Si l'intervalle entre impulsions est très grand devant la durée d'une impulsion, le taux de coïncidences entre les détecteurs disposés de part et d'autre de la lame sera :

$$S_C = \eta_1 \eta_2 E \qquad \text{(II-60)}$$

Ce terme est qualifié "d'anormal", et rien n'interdit qu'il soit beaucoup plus grand que le taux de coïncidences fortuites :

$$S_f = S_1 S_2 w = \eta_1 \eta_2 E^2 w \qquad \text{(II-61)}$$

../..

Schrödinger[47] a suggéré de rechercher le terme de coïncidences anormal S_c, dont la présence ou l'absence fournirait un test simple du modèle d'émission semi-classique. Remarquons que la condition $S_c >> S_f$ est équivalente à $w\,E << 1$: le nombre d'impulsions émises pendant une fenêtre de coïncidence doit être petit devant un. En fait, les expériences réalisées dans les années 50 (par exemple par Adam, Janossy et Varga)[46], ne disposaient que d'une électronique très peu rapide ($w \cong 5\ \mu s$), il était alors nécessaire de se placer dans le cas opposé $w\,E > 1$ pour avoir des taux de comptages appréciables. Dans ce cas, le temps de comptage nécessaire pour que la petite différence entre $(S_c + S_f)T$ et $S_f T$ soit de N écarts-types $\sqrt{S_f T}$ est donné par :

$$T \cong N^2 S_f / S_c^{\,2} = N^2 w / \eta_1 \eta_2 \qquad (II\text{-}62)$$

Un point essentiel, souligné par Clauser, est que les facteurs η_1 et η_2 doivent être considérés comme des rendements globaux, incluant les angles solides de collection. L'estimation faite par Clauser, de $\eta_1 \sim \eta_2 \sim 8\ 10^{-6}$ pour l'expérience de Adam, Janossy et Varga conduit à des temps de comptage de plusieurs centaines d'heures pour une valeur de N de quelques écarts-types. Dans l'expérience citée, les taux de comptages n'ont été que de quelques heures, sur la foi d'une estimation erronée de η_1 et η_2 ; remarquons de plus que les problèmes liés à la stabilité de la source ont été totalement négligés. Cette expérience peut donc être regardée à juste titre comme non concluante. Par contre, il est instructif d'appliquer le même raisonnement à notre expérience ; on a alors :

$$\eta_1 \cong \eta_2 \cong 10^{-3} \qquad (II\text{-}63\text{-}a)$$

$$S_1 \cong S_2 \cong 10^4\ s^{-1} \qquad (II\text{-}63\text{-}b)$$

$$E \cong 10^7\ s^{-1} \quad ; \quad w \cong 10^{-8}\ s \quad ; \quad w\,E \cong 0.1 \qquad (II\text{-}63\text{-}c)$$

On obtient alors $S_c \cong 10\ s^{-1}$ et $S_f \cong 1\ s^{-1}$: le modèle de trains d'ondes est mis en défaut en 1 s de comptage ! Remarquons de plus qu'aucune procédure de déclenchement n'est utilisé ici : il suffit de compter les photons ν_B en simple et en coïncidence. Un sous produit de notre expérience est, donc de régler de façon définitive le vieux problème du "terme de coïncidences anormales".

../..

Remarque :

Le lecteur peut alors se demander à quoi sert le système de déclenchement. La réponse est bien sûr que l'absence du terme de coïncidences anormales prouve seulement l'invalidité du modèle d'émission utilisé ("trains d'ondes" bien séparés dans le temps). En particulier, un modèle classique de source émettant une intensité constante redonnerait la bonne valeur du taux de coïncidences. Pour prouver l'invalidité de n'importe quel modèle classique, il faut violer une inégalité du type $p_c \geq p_1 p_2$, c'est à dire, observer un taux de coïncidence inférieur au taux de coïncidences fortuites.

Clauser a en fait résolu le premier le problème de façon très élégante, en introduisant une inégalité plus complexe que $p_c \geq p_1 p_2$, mais qui est également valide pour tout modèle classique d'émission d'une cascade atomique. L'idée est d'utiliser deux lames séparatrices, placées respectivement sur les deux faisceaux de fréquences ν_A et ν_B. On peut alors déterminer les quatre spectre-temps $C_{A1\,A2}(\tau)$, $C_{B1\,B2}(\tau)$, $C_{A1\,B2}(\tau)$ et $C_{A2\,B1}(\tau)$ où 1 et 2 correspondent aux deux voies de chaque lame semi-réfléchissante. Une inégalité de Cauchy-Schwarz permet alors de montrer que l'on a dans tout modèle classique :

$$C_{A1\,A2}(0)\, C_{B1\,B2}(0) \geq C_{A1\,B2}(\tau)\, C_{A2\,B1}(\tau) \qquad \text{(II-64)}$$

L'idée physique correspondant à cette inégalité est que dans le modèle classique les corrélations "intra-faisceau" (membre de gauche) sont nécessairement plus grandes que les corrélations "inter-faisceaux" (membre de droite). Cette relation est évidemment violée par une cascade atomique, puisque le membre de gauche correspond à des coïncidences entre photons émis par des atomes différents, et peut être rendu beaucoup plus petit que le membre de droite, qui correspond aux coïncidences "vraies" entre les deux photons émis par chaque atome.

En conclusion, soulignons quelques différences importantes entre notre expérience et celle de Clauser : bien que le système physique soit le même, les quantités mesurées et les buts poursuivis sont assez différents dans les deux expériences. Le taux de coïncidences commandé N_c, qui est la quantité essentielle mesurée dans notre expérience, est en fait liée à une fonction de corrélation d'ordre trois de l'intensité émise par la source : l'intérêt de ce choix est que le comportement "quantique" de cette fonction de corrélation s'interprète très simplement par le comportement corpusculaire du seul photon ν_B. L'avantage essentiel qui apparait

../..

dans ce cas est la possibilité expérimentale de "préparer" un faisceau ayant des propriétés quantiques contrôlées. Ce point est très important en vue d'expériences ultérieures effectuées sur les photons ν_B, et en particulier de l'expérience d'interférence que nous décrirons dans le chapitre suivant.

Les effets quantiques apparaissant lorsqu'une source produit des paires de photons "en cascade" ont suscité un intérêt assez vif au cours des deux dernières années[48]. Une autre possibilité pour produire de telles paires, potentiellement beaucoup plus efficace que notre cascade, est la fluorescence paramétrique ; le paragraphe suivant est consacré à une brève discussion d'expériences récentes ayant utilisé cette méthode.

b) La fluorescence paramétrique : une source "parfaite" de paires de photons corrélés ?

La fluorescence paramétrique spontanée est un processus dans lequel des photons "pompes" ($\hbar\vec{k}$, $\hbar\omega$) incidents sur un cristal non-linéaire sont divisés en deux photons ($\hbar\vec{k}_1$, $\hbar\omega_1$) et ($\hbar\vec{k}_2$, $\hbar\omega_2$), en vérifiant les relations de conservation de l'énergie et de l'impulsion :

$$\hbar\omega = \hbar\omega_1 + \hbar\omega_2 \qquad \text{(II-66-a)}$$

$$\hbar\vec{k} = \hbar\vec{k}_1 + \hbar\vec{k}_2 \qquad \text{(II-66-b)}$$

Ce processus n'est possible que dans un cristal "non-centrosymétrique", c'est-à-dire dépourvu de symétrie d'inversion, condition nécessaire pour que le coefficient non linéaire $\chi^{(2)}$ soit non-nul. De nombreuses études théoriques[49] et expérimentales[50] ont été consacrées aux processus paramétriques. Les points essentiels pour ce qui nous occupe ici sont que les deux photons $\hbar\omega_1$ et $\hbar\omega_2$ sont très fortement corrélés, à la fois temporellement et angulairement. Plus précisément, l'intervalle de temps séparant les deux photons est de l'ordre de l'inverse de la bande de fréquence accessible, qui est déterminée en pratique par les filtres utilisés pour séparer ω_1 et ω_2 ; l'intervalle de temps correspondant est de l'ordre de 0.1 ps. La corrélation angulaire est liée à la condition d'accord de phase $\vec{k} = \vec{k}_1 + \vec{k}_2$, qui autorise une interférence constructive entre les contributions de tous les atomes du cristal. En pratique, chaque bande de fréquence de

../..

la lumière de fluorescence est produite dans un cône centré sur le faisceau pompe ; des diaphragmes et des filtres placés convenablement permettent de diriger vers leurs photodétecteurs respectifs les deux photons $\hbar\omega_1$ et $\hbar\omega_2$.

Nous avons défini dans le § II-B un "facteur de mérite", caractérisant l'aptitude de la source à émettre des "photons uniques". A la limite des très faibles durées de vie ($\tau_r \ll w$), ce facteur de mérite est donné par :

$$\frac{Q}{\sqrt{T}} = \left(\frac{\kappa_A \kappa_1 \kappa_2 C_{AB}^3}{2w}\right)^{1/2} \left(1 + \frac{w\overline{\mathcal{N}}}{2 C_{AB}}\right)^{-1/2} \qquad (II-67)$$

où la durée de vie τ_r n'apparait plus, puisqu'elle est très inférieure à la porte w ; celle-ci est en pratique limitée inférieurement à environ 100 ps. Par ailleurs, la corrélation angulaire totale permet en principe d'obtenir :

$$\kappa_i C_{AB} = \eta_i \qquad (II-68)$$

où η_i est le rendement de détection incluant seulement le facteur de transmission des éléments optiques et le rendement quantique des photomultiplicateurs. On peut donc en principe obtenir :

$$\left(\frac{Q}{\sqrt{T}}\right)_{Opt} \cong \left(\frac{\eta_A \eta_1 \eta_2}{2w}\right)^{1/2} \qquad (II-69)$$

Si on suppose que w est de l'ordre de 0.1 ns, et que les rendements η_i sont du même ordre que dans notre expérience, le gain espéré sur le facteur de mérite peut atteindre un facteur 100.

En fait, les expériences effectivement réalisées ont jusqu'à présent été loin d'approcher de telles performances. En effet, les limitations technologiques sont très sévères[3]. L'utilisation d'un laser pompe à 350 nm produit des photons à 700 nm, longueur d'onde pour laquelle les rendements quantiques des photomultiplicateurs sont très faibles ; les facteurs η_i effectivement observés ne dépassent pas quelques

../..

10^{-3}. De plus, des considérations pratiques conduisent à choisir une porte w de plusieurs nanosecondes, et le facteur de mérite obtenu est tout à fait comparable à celui de notre cascade.

Du point de vue des expériences réalisées dans ce travail, et en particulier de celui des interférences "à un seul photon", la fluorescence paramétrique n'aurait donc apporté aucun gain significatif. Remarquons néanmoins que les processus paramétriques, et notamment l'oscillation paramétrique qui apparait lorsqu'on referme une cavité sur les faisceaux ω_1 et ω_2, sont des candidats potentiellement extrêmement intéressants pour produire des champs lumineux intenses ayant des propriétés spécifiquement quantiques[51].

Chapitre 3

INTERFERENCES A UN SEUL PHOTON

L'étude des phénomènes d'interférences et de diffraction à la limite des très faibles flux lumineux est vieille de trois quarts de siècle : en 1909, Taylor a photographié la figure de diffraction dans l'ombre d'une aiguille, avec des temps d'exposition de plusieurs mois[52], sans observer de diminution notable du contraste des franges. De nombreuses autres expériences ont été réalisées (Table III-1), concluant, à quelques exceptions près, en faveur de l'indépendance du contraste des franges d'interférences et du flux lumineux. Des expériences récentes (1984-1985) introduisent un élément nouveau que nous discuterons à la fin du chapitre IV : le "choix retardé" ("delayed choice") proposé par Wheeler en 1978[53].

Expérience	Année	Appareillage	Détecteur	Nombre d'atomes émetteurs par cm^3	Photons/sec dans la zone d'interférences	Résultat
Taylor[a]	1909	Diffraction	Film		$\sim 10^6$	Oui
Dempster and Batho[d]	1927	a) réseau b) Fabry-Pérot	Film Film	~ 10	10^2 10^5	Oui Oui
Janossy and Naray[f]	1957	Interféromètre de Michelson	Photomultiplicateur		10^5	Oui
Griffiths[g]	1963	Fentes d'Young	Intensificateur d'Image		2×10^3	Oui
Scarl et al.[i]	1968	Fentes d'Young	Photomultiplicateur		2×10^4	Oui
Dontsov and Baz[h]	1967	Fabry-Pérot	Intensificateur d'Image	~ 100	$\sim 10^3$	Non
Reynolds et al.[j]	1969	Fabry-Pérot	Intensificateur d'Image	~ 150	10^2	Oui
Bozec et al.[k]	1969	Fabry-Pérot	Film	10^6	$\sim 10^2$	Oui
Grishaev et al.[l]	1971	Interféromètre de Jamin	Intensificateur d'Image	Radiation Synchrotron	$\sim 10^3$	Oui
Zajonc et al.[m]	1984	Interféromètre à Fibre	Photomultiplicateur	Expérience en mode "delayed-choice"		Oui
Alley et al.[n]	1985	Interféromètre de Mach-Zehnder	Photomultiplicateur	Expérience en mode "delayed choice"		Oui

Table III-1 : Expériences d'interférences à bas niveau[52]. Le "nombre de photons par seconde dans la zone d'interférence" est obtenu en divisant le flux minimum estimé par $h\nu$. Le résultat "oui" signifie que le contraste des interférences est indépendant du flux lumineux.

../..

Toutes ces expériences ont été réalisées en lumière atténuée, les sources les plus fréquemment utilisées étant des lampes à décharge (le plus souvent, Hg ou He sous faible pression). L'analyse des résultats requiert la définition d'une "longueur" du photon, qui permet d'obtenir une valeur de l'intensité lumineuse pour laquelle les évènements successifs sont en moyenne bien séparés dans l'espace et dans le temps. Cette longueur caractéristique est le plus souvent assimilée à la longueur de cohérence de la lumière utilisée[54]. Lorsque l'intensité lumineuse est, selon ce critère, "suffisamment faible", on parle habituellement d'interférences à un seul photon. Pourtant, dans tous les cas, ces expériences peuvent être décrites par le formalisme semi-classique présenté dans les chapitres précédents : une telle description est d'ailleurs simplement celle présentée dans tous les cours d'optique physique, en admettant (ou en démontrant) que le taux de comptage d'un photomultiplicateur est proportionnel à l'intensité lumineuse. Il nous semble donc plus correct de s'en tenir au concept d'interférences en lumière très atténuée pour qualifier les expériences du tableau III-1.

Il est possible de présenter la différence entre un état à un seul photon et une lumière atténuée sous un jour un peu "paradoxal", illustrant bien l'enjeu conceptuel des interférences à un seul photon. Si on appelle p_1, p_2 et p_c, les probabilités de détections simples ou en coïncidences dans les bras de l'interféromètre (voir chapitre précédent), la quantité p_c/p_1 représente la probabilité conditionnelle de détection dans le bras 2, lorsqu'une détection a lieu dans le bras 1.

Le point généralement mis en avant dans les discussions relatives aux interférences à un seul photon[55] est que l'on observe des interférences, mais que si l'on cherche à détecter le photon dans les bras de l'interféromètre, une détection dans un bras exclut toute détection dans l'autre. Cette affirmation est fausse en lumière atténuée, puisque l'on a $p_c/p_1 \geq p_2$: la probabilité de détection dans le bras 2 n'est pas "diminuée" par une détection dans le bras 1. Au contraire, la situation quantique à un seul photon - $p_c/p_1 \ll p_2$ - correspond bien à l'enjeu de la discussion de l'expérience de pensée. Le caractère "paradoxal" des interférences à un seul photon (en fait, la nécessité de faire appel directement ou indirectement à une "réduction du paquet d'onde"[55]), n'apparait donc vraiment que lorsque la lumière incidente est dans un "état à un seul photon".

../..

Ce chapître est consacré à la description d'une telle expérience, utilisant la source de "photons uniques" décrite dans le chapitre II. Nous décrirons d'abord en détail l'interféromètre utilisé (§ III-A), puis le principe de la procédure expérimentale (§ III-B). Le § III-C sera consacré à la présentation et à la discussion des résultats ; nous examinerons en particulier, la relation entre le contraste des interférences et la possibilité de déterminer le "chemin suivi" dans l'interféromètre.

III-A - L'INTERFEROMETRE

III-A-1 - Choix de l'interféromètre

a) Critères utilisés

Deux types de critères ont déterminés les choix que nous avons faits : tout d'abord le souci de conserver à l'expérience son caractère de démonstration, en nous plaçant dans une situation très proche d'une "expérience de pensée" ; ensuite et évidemment les impératifs de l'interférométrie, prenant en compte les propriétés de cohérence spatio-temporelle de notre source et les contraintes créées par la nécessité de temps d'intégration de plusieurs heures : nous avons vu dans le chapître précédent que notre source ne délivre qu'une dizaine de "photons uniques" utilisables par seconde.

Le première critère conduit à construire l'interféromètre autour de la lame séparatrice utilisée pour la mise en évidence de l'effet d'anticorrélation, c'est-à-dire à se placer alternativement dans les deux situations "complémentaires" d'une expérience de pensée illustrant la dualité onde/corpuscule. Il semble également intéressant d'obtenir un très bon contraste théorique des franges d'interférences, correspondant à une situation expérimentale parfaitement contrôlée du point de vue de l'interférométrie classique.

Remarque :

La procédure consistant à comparer le contraste "à forte intensité" et le contraste "à faible intensité", qui est utilisée dans les expériences en lumière atténuée[52]*, peut être source d'erreurs systématiques si le contraste "à forte intensité" est notablement inférieur à un pour des raisons insuffisamment analysées*[52]*. De façon générale, les expériences visant à tester des effets "fondamentaux" sont d'autant plus probantes que la confrontation entre les résultats expérimentaux et la théorie est plus directe.*

Par ailleurs, deux impératifs expérimentaux apparaissent essentiels : l'interféromètre doit avoir une acceptance géométrique supérieure ou égale à l'étendue de la source, afin de ne pas limiter encore un flux déjà très faible, et il doit être rendu insensible à la cohérence spatiale de la source, qui est le facteur susceptible de limiter le plus rapidement le contraste des franges.

../..

Ces différents critères sont en fait convergents, et conduisent au choix d'un interféromètre à deux voies "à division d'amplitude", c'est-à-dire construits autour d'une lame séparatrice (Michelson ou Mach-Zehnder). Ces interféromètres, convenablement conçus et réglés, peuvent en effet être rendus insensibles à la cohérence spatiale de la source, c'est-à-dire, donner lieu à des franges localisées de contraste égal à un lorsque la source est spatialement incohérente. Ce point est brièvement discuté dans le paragraphe suivant.

b) Théorème de Zernike généralisé

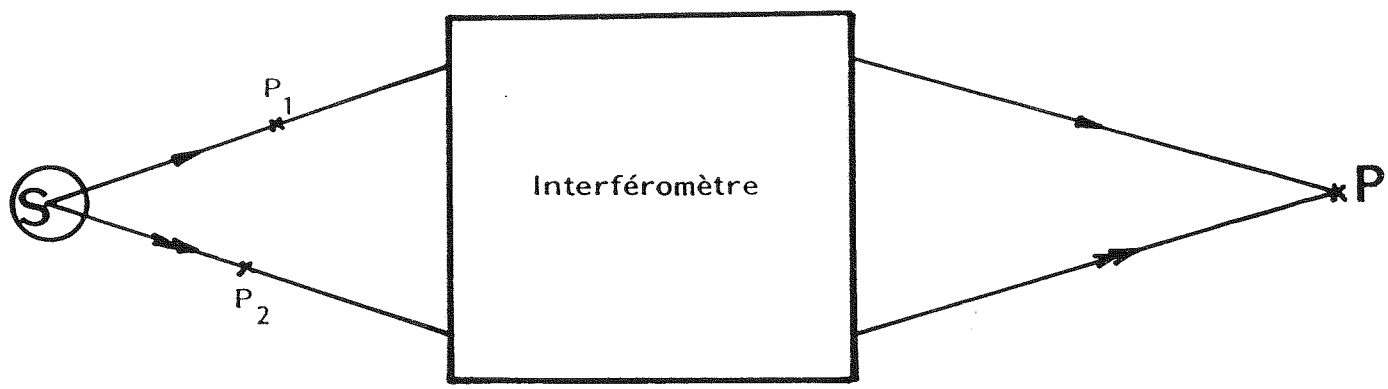


Figure III-1 : Schéma général d'un interféromètre à division d'amplitude. Les contributions des divers points S de la source s'ajoutent de façon incohérente au point P où on observe les interférences. P_1 et P_2 sont les conjugués optiques de P à travers les deux voies de l'interféromètre.

Considérons un interféromètre à deux voies constitué de miroirs plans (Figure III-1), et un point P du champ d'interférences ; P_1 et P_2 sont les conjugués optiques de P dans les deux voies de l'interféromètre, et on note Δ la différence de marche (S P_1 P) - (S P_2 P) entre les deux voies de l'interféromètre pour un champ émis au point S. L'interféromètre étant éclairé par une source étendue, l'éclairement en P résulte de contributions incohérentes des divers points S : il est alors évident que si Δ varie rapidement avec S le contraste des franges d'interférences sera très mauvais. Cependant, on peut montrer qu'il existe des positions de P (surfaces de localisation) où Δ ne dépend de S qu'au second ordre, ou même n'en dépend pas. Dans ce cas, P_1 et P_2 sont tous deux situés sur un même rayon incident issu du point de référence S_o de la source. Un exemple d'interféromètre

../..

"du second ordre" est le Michelson réglé "en coin d'air" : les franges sont localisées sur le miroir, et sont visibles jusqu'à des différences de marche de l'ordre de $\frac{\lambda}{\varepsilon^2}$, où ε est l'ouverture angulaire de la source (on suppose ici cette source monochromatique). Un exemple d'interféromètre où Δ est indépendant de S est le Michelson réglé "en anneaux", la surface de localisation étant dans ce cas rejetée à l'infini ; les franges doivent donc être observées au foyer d'une lentille. Ce raisonnement constitue une partie d'une étude générale des interféromètres à division d'amplitude connue sous le nom de théorème de Zernike généralisé[56].

c) Détection des interférences

La configuration permettant d'obtenir des interférences de contraste maximal, indépendamment de la cohérence spatiale de la source, correspond donc à l'obtention d'un système de franges localisées à l'infini ; ce système sera formé d'anneaux pour un interféromètre de Michelson, ou de franges plus complexes (en première approximation rectilignes et perpendiculaires au plan de l'interféromètre) pour un Mach-Zehnder. Le nombre de franges visibles dans le champ d'interférence dépend de la différence de marche entre les deux voies de l'interféromètre, et s'annule avec celle-ci (teinte plate).

L'observation directe des systèmes de franges exigerait un tube intensificateur d'image fonctionnant en mode déclenché, pour se placer dans les conditions de photon unique (voir chapitre précédent). Bien que de tels systèmes de détections (extrêmement onéreux) existent, une solution beaucoup plus simple dans notre situation expérimentale est de se placer suffisamment près de la différence de marche nulle pour que l'intensité dans le champ d'interférences reste uniforme. Nous verrons plus loin que cette condition est relativement facile à satisfaire ; un simple photomultiplicateur est alors suffisant pour la détection, l'état d'interférence sur le détecteur étant modifié par variation contrôlée de la différence de marche (déplacement des miroirs).

Remarquons enfin que le fait de se placer très près de la différence de marche nulle élimine toute possibilité de dégradation du contraste des franges par des effets de cohérence temporelle : la longueur de cohérence de notre source, limitée essentiellement par l'effet Doppler dans le jet atomique vu par les lentilles de collection, est en effet de l'ordre de la dizaine de cm.

../..

d) Conclusion

Une dernière question est le choix entre les interféromètres de Michelson et de Mach-Zehnder. Bien que ce dernier ait la réputation d'être plus difficile à régler, il présente dans notre cas plusieurs avantages. Tout d'abord, l'interféromètre de Mach-Zehnder possède deux sorties complémentaires, et la mise en évidence d'un état d'interférence peut être rendue particulièrement directe en observant que tous les photons incidents sont détectés dans la sortie correspondant à une interférence constructive, et que parallèlement on a extinction complète sur la voie correspondant à l'interférence destructive. Un second avantage, d'ordre pratique, est dû au fait que l'interféromètre doit nécessairement être compensé (voir plus loin) ; cette compensation peut se faire avec trois lames (et supports de lames) pour un Mach-Zehnder, mais nécessite quatre lames pour un Michelson. Remarquons enfin, que le fait d'employer trois lames dans un interféromètre de Mach-Zehnder (deux miroirs et une lame séparatrice unique) conduit à une grande simplification des réglages par rapport au dispositif habituel à quatre lames indépendantes.

III-A-2 - Etude quantitative

a) Calcul de la différence de marche (cas idéal)

Considérons l'interféromètre idéal de la Figure III-2. Un calcul donne la différence de marche entre deux rayons émergents parallèles issus du même rayon incident (dans le plan de la figure) :

$$\delta(\Theta) = 2(\ell - \ell') \cos\Theta \qquad \text{(III-1)}$$

La surface de localisation étant ici rejetée à l'infini, les franges seront observées au foyer d'une lentille. En pratique, le faisceau incident possédera une certaine ouverture angulaire. Les variations de δ en fonction de l'orientation du rayon incident seront beaucoup plus rapides dans le plan de la figure que perpendiculairement à ce plan ; nous considérerons donc seulement l'effet des variations de Θ autour de l'angle d'incidence Θ_o du rayon moyen, dans le plan de la figure.

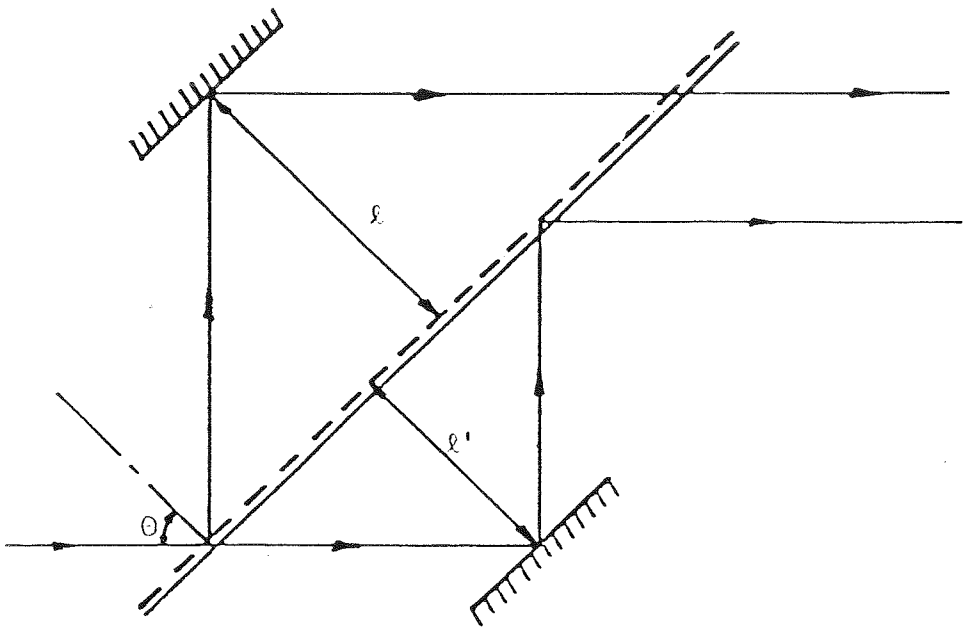


Figure III-2 : Schéma simplifié d'un interféromètre de Mach-Zehnder. L'angle d'incidence du rayon moyen (dans le plan de la figure) est noté θ_o.

En désignant par ε la demi-divergence du faisceau incident, l'intensité totale mesurée dans le champ d'interférence sera donnée par :

$$I = \frac{I_o}{2\varepsilon} \int_{-\varepsilon}^{+\varepsilon} (1 + \cos\ 2\Pi\ \delta(\theta_o + i)/\lambda)\ di$$

$$\cong I_o\ (1 + \frac{\sin u}{u}\ \cos(2\Pi\ \delta_o/\lambda)) \qquad \text{(III-2)}$$

où :

$$u = \frac{2\Pi\varepsilon}{\lambda}\ \left.\frac{d\delta}{d\theta}\right|_{\theta = \theta_o} = -\frac{2\Pi\varepsilon}{\lambda}\ \delta_o\ tg(\theta_o) \qquad \text{(III-3)}$$

et :

$$\delta_o = \delta(\theta_o)$$

../..

Un contraste sin u/u supérieur à 0.995 correspond à une valeur de u inférieure à 0.173 ; en utilisant les valeurs $\Theta_o = 15°$ et $\varepsilon = 12.5$ mrd (voir plus bas), on obtient une limite supérieure de la différence de marche $\delta_o \cong 8\ \lambda$, ce qui fixe l'ordre de grandeur du nombre de franges que l'on peut explorer.

b) Epaisseur de lame et compensation angulaire

Dans l'interféromètre réel, la (ou les) séparatrices ont une épaisseur non nulle. En supposant toujours l'interféromètre réglé, et les lames parfaitement parallèles, la différence de marche devient (Fig. III-3) :

$$\delta_v(\Theta) = \delta(\Theta) + (e - e')\ (n \cos\Theta_r - \cos\Theta) \qquad \text{(III-4)}$$

où e et e' sont les épaisseurs de verre d'indice n traversées, et Θ_r l'angle de réfraction dans les lames ($\sin\Theta = n \sin\Theta_r$).

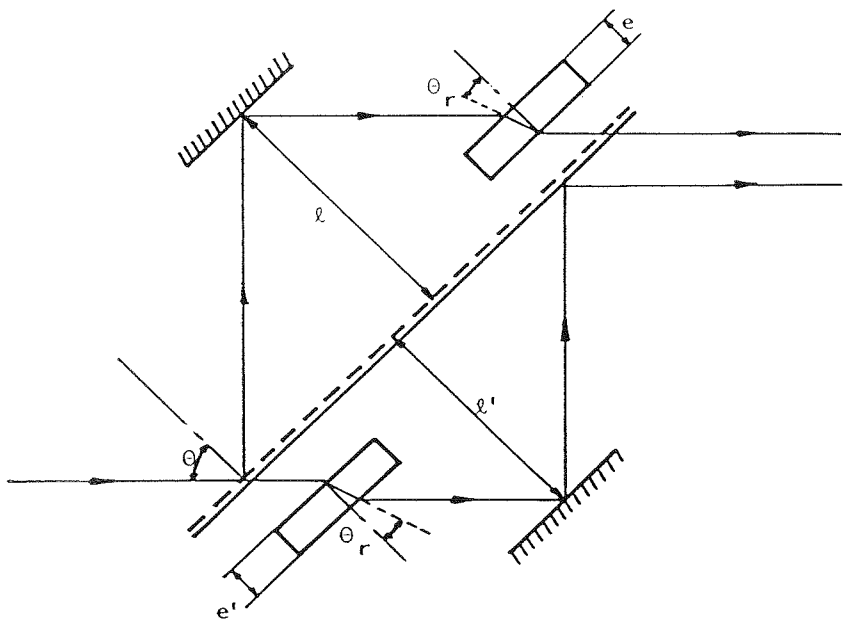


Figure III-3 : La traversée d'une lame de verre d'épaisseur e et d'indice n introduit une différence de marche supplémentaire égale à $e(n \cos\Theta_r - \cos\Theta)$

En pratique, (e - e') peut varier entre plusieurs cm (si toutes les épaisseurs de verre sont rassemblées sur une même voie de l'interféromètre), et zéro (on dit alors que l'interféromètre est compensé). En effectuant un développement limité de

../..

$\delta_v(\theta)$ autour de $\theta = \theta_o$ (voir Annexe II), on montre que les variations de $\delta_v(\theta)$ sur la divergence du faisceau sont suffisamment rapides pour dégrader appréciablement le contraste, si l'interféromètre n'est pas compensé.

Il est donc indispensable de compenser l'interféromètre, en égalisant les épaisseurs de verre traversées sur les deux voies. Le procédé le plus simple consiste à alterner les traitements semi-réfléchissants sur une séparatrice unique (Fig. III-4). Cette disposition présente également l'avantage de réduire le nombre de degrés de libertés d'orientations des lames, et donc de faciliter les réglages. Une tolérance de $\lambda/4$ sur le parallélisme des faces de la lame est suffisante pour garantir un contraste supérieur à 0.99 (Voir Annexe II).

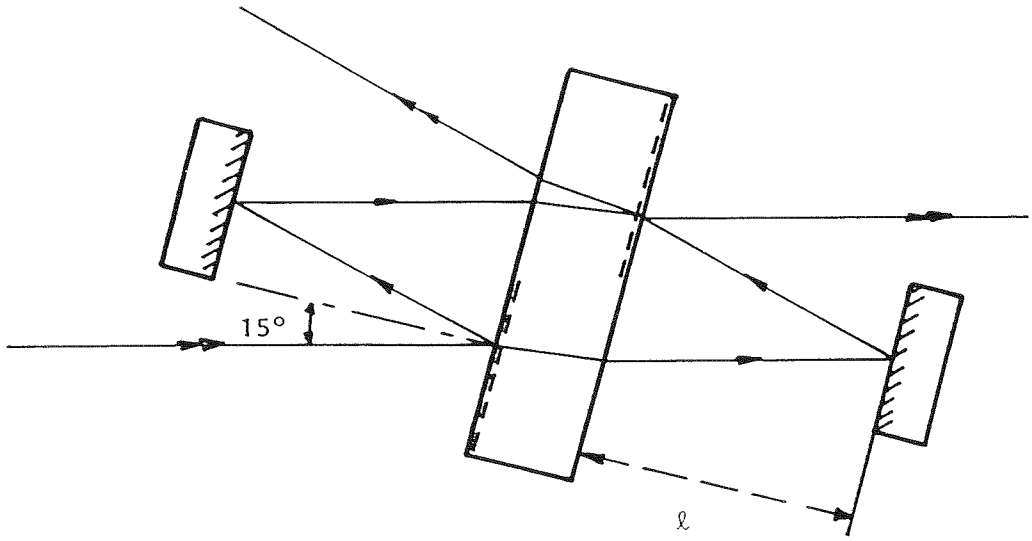


Figure III-4 : Schéma de principe de l'interféromètre. La compensation est assurée en alternant les traitements semi-réfléchissants sur une séparatrice unique. Cette disposition conduit à des réglages très simples, en réduisant le nombre de degrés de liberté d'orientation par rapport à un système à 4 lames indépendantes.

c) Miroirs et lame séparatrice

La tolérance globale sur la déformation relative des surfaces d'ondes est de $\lambda/20$ pour un contraste de 0.995. Ces valeurs correspondent à une planéité de $\lambda/80$ de la surface utile des lames réfléchissantes, en faisant l'hypothèse raisonnable qui consiste à ajouter en moyenne quadratique les effets des quatre réflexions. Cette tolérance sur la surface utile correspond à environ $\lambda/50$ sur la surface totale ; elle peut être satisfaite (homogénéité et polissage) lors du polissage de lame de silice de type HOMOSIL (Heraeus) sur polissoir téflon (Figure III-5).

../..

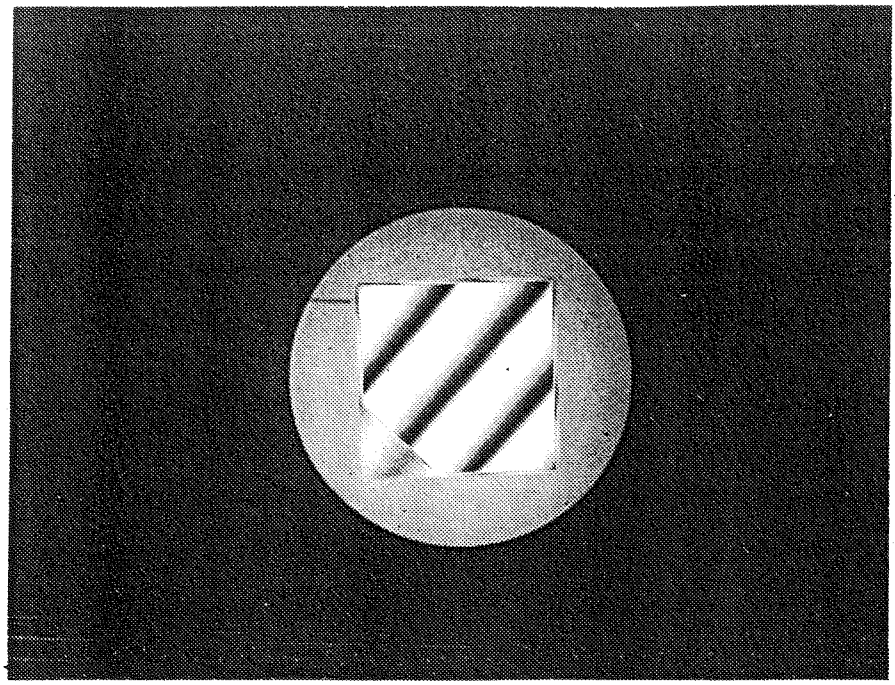


Figure III-5 : Contrôle d'un miroir à l'aide d'un interféromètre de Fizeau, par comparaison avec un calibre. La planéité est mesurée en déterminant l'écart quadratique moyen entre les franges de coin d'air et une ligne droite.

Afin d'éviter toute perte de signal, des traitements multidiélectriques ont été préférés à des traitements métalliques ; cependant, la qualité des lames a imposé des traitements à froid ($ZnS/Th F_4$ - MATRA), qui ne déforment pas les lames mais sont beaucoup plus fragiles mécaniquement et chimiquement. Les mesures des coefficients de réflexion et de transmission de la séparatrice à la longueur d'onde de travail ont donné les résultats suivants :

$$T = 0.535 \pm 0.010 \qquad R = 0.465 \pm 0.010 \qquad \text{(III-5)}$$

Les faces opposées aux traitements séparateurs sont traitées antireflets ; l'efficacité médiocre de ce traitement (R très proche de 1 %) est responsable de la formation de systèmes d'interférences parasites (voir Annexe II), qui vont être la limitation pratique essentielle de la valeur du contraste observé.

d) Dimensions et acceptance géométrique

L'interféromètre doit être adapté à l'étendue géométrique du faisceau issu de la source, et la divergence de ce faisceau est limitée par la nécessité d'avoir une teinte uniforme dans le champ d'interférence ; nous avons vu ci-dessus qu'une demi-divergence de 12.5 mrd autorise une différence de marche maximale de 8 λ pour un contraste supérieure à 0.995.

La meilleure adaptation consiste alors à rejeter l'image de la source à l'infini, et à former l'image de la lentille de collection, jouant le rôle de diaphragme d'ouverture, sur les miroirs de l'interféromètre. La conservation de l'étendue impose alors un diamètre de faisceau d'environ 35 mm dans l'interféromètre.

Par ailleurs, on aura intérêt à travailler à faible incidence sur les lames : ceci permet d'augmenter la valeur de δ_{Max} en vertu de la formule (III-3), et de diminuer la taille des lames. Enfin, il semble inutile d'augmenter les dimensions de l'appareil au delà de ce qui est exigé par la mécanique de maintien des lames.

Le schéma de principe résultant de ces considérations est présenté sur la Figure III-6 ; l'angle d'incidence sur les lames est d'environ 15° et la distance entre lames de 12 cm. Pour des raisons d'encombrement des supports et de stabilité mécanique de la silice, les dimensions des lames ont été portées à 60 x 60 x 25 mm (miroirs) et 120 x 60 x 25 mm (séparatrice) ; les règles de l'art exigent en effet un rapport minimum de 0.2 entre la plus petite et la plus grande dimension, pour nos tolérances de planéité.

III-A-3 - Réalisation et contrôles

a) Maintien et orientation des miroirs

Les miroirs et la séparatrice sont posés sur la tranche sur des hémisphères de téflon, et maintenus contre trois butées d'orientation par des "pompes" (butées à ressort) (voir Figure III-7). Les vis de réglage d'orientation des miroirs sont munies de systèmes de compensation de jeu ; deux de ces vis, agissant sur les mouvements de rotation selon deux directions orthogonales, sont montées dans un système de démultiplication à lames de ressorts[57]. Les vis micrométriques contrôlant le système de démultiplication peuvent être commandées de l'extérieur de l'interféromètre, qui est protégé des turbulences de l'air par un capot en tôle. Notons que cette commande extérieure, qui n'est utile que pour le réglage ultime de l'orientation, n'existe que pour un seul miroir.

La lame séparatrice est également maintenue en trois points, mais n'a aucun réglage fin d'orientation ; le réglage de l'interféromètre consistera donc à amener les miroirs parallèles à la séparatrice. Un moyen commode de dégrossir ce réglage est d'utiliser une lunette autocollimatrice orientée normalement à tous les dioptres ; à cet effet, des jours ont été ménagés dans le capot et la monture de l'un des miroirs.

../..

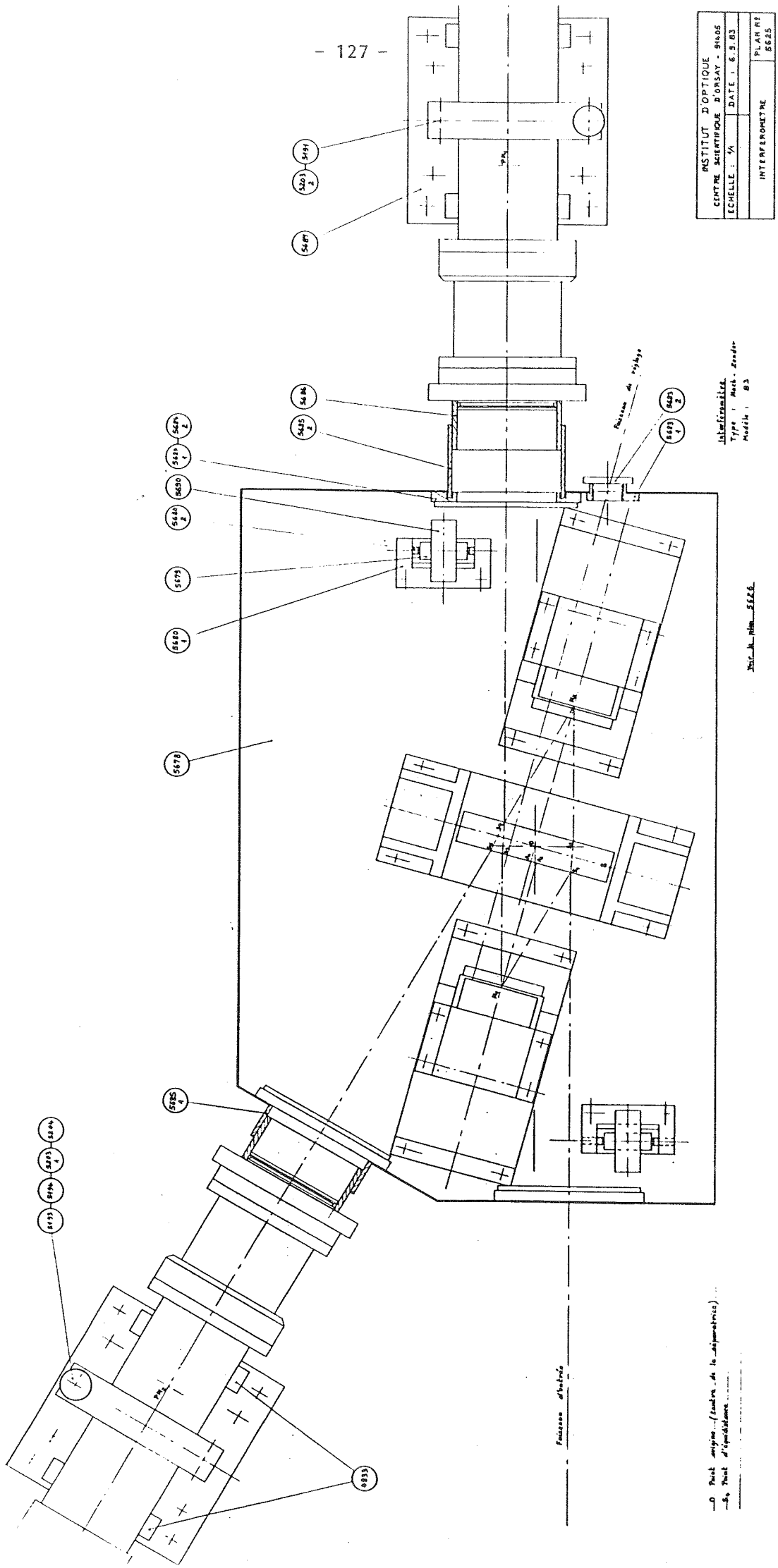


Figure III-6 : Schéma général de l'interféromètre et des voies de détection

b) Variation de la différence de marche

La configuration adoptée requiert un mécanisme de variation contrôlée de la différence de marche entre les deux voies de l'interféromètre, dans une gamme d'environ 10 λ de part et d'autre de la différence de marche nulle. La solution la plus simple dans notre cas est de recourir à un mécanisme piezo-électrique. Cependant, le déplacement de miroirs de grande taille nécessite plusieurs céramiques, équipées d'amplificateurs haute-tensions indépendants pour corriger les dissymétries, et la qualité de la translation est souvent médiocre. Afin d'éviter ces difficultés, nous avons en recours à une solution ayant depuis longtemps fait ses preuves à l'Institut d'Optique : l'ensemble du miroir et des mécanismes d'orientation est monté sur un parallèlogramme déformable (Figure III-7), qui garantit une translation de très bonne qualité en utilisant une seule céramique piezo-électrique.

En fait, deux systèmes symétriques sont utilisés, séparés par une barre d'acier fixée sur le support de séparatrice (Figure III-8) ; les deux céramiques seront bien sûr pilotées par des hautes-tensions de signes opposés. Les céramiques utilisées sont des tubes de 30 mm de long, 20 mm de diamètre externe et 2.5 mm d'épaisseur ; on balaie environ 20 franges pour une excursion de tension de 1000 V.

c) Tests et réglages

La planéité des lames a été vérifiée après traitement en utilisant un interféromètre de Fizeau (franges d'égale épaisseur à ondes multiples), et a été trouvée meilleure que $\lambda/50$ (Figure III-5).

Un test élémentaire de l'interféromètre lui-même peut être effectué à l'aide d'un faisceau laser ; en utilisant la raie à 457.9 nm d'un laser Argon ionisé (cette longueur d'onde est adaptée aux traitements des miroirs), avec un diamètre de faisceau d'environ 5 mm, on obitent un contraste d'au moins 0,9995 (Figure III-9). Nous n'avons pas cherché à réduire les fluctuations (mécaniques, atmosphériques...) apparaissant dans cette mesure, puisque dans notre situation expérimentale d'autres facteurs seront prédominants.

Nous avons également effectué un test de parallélisme de la translation des miroirs. Sur toute l'excursion des céramiques (20 franges), le parallélisme est respecté à environ $\lambda/30$ sur la surface du faisceau laser. Cette mesure peut-être confirmée par une observation visuelle des franges en lumière blanche : en éclairant

../..

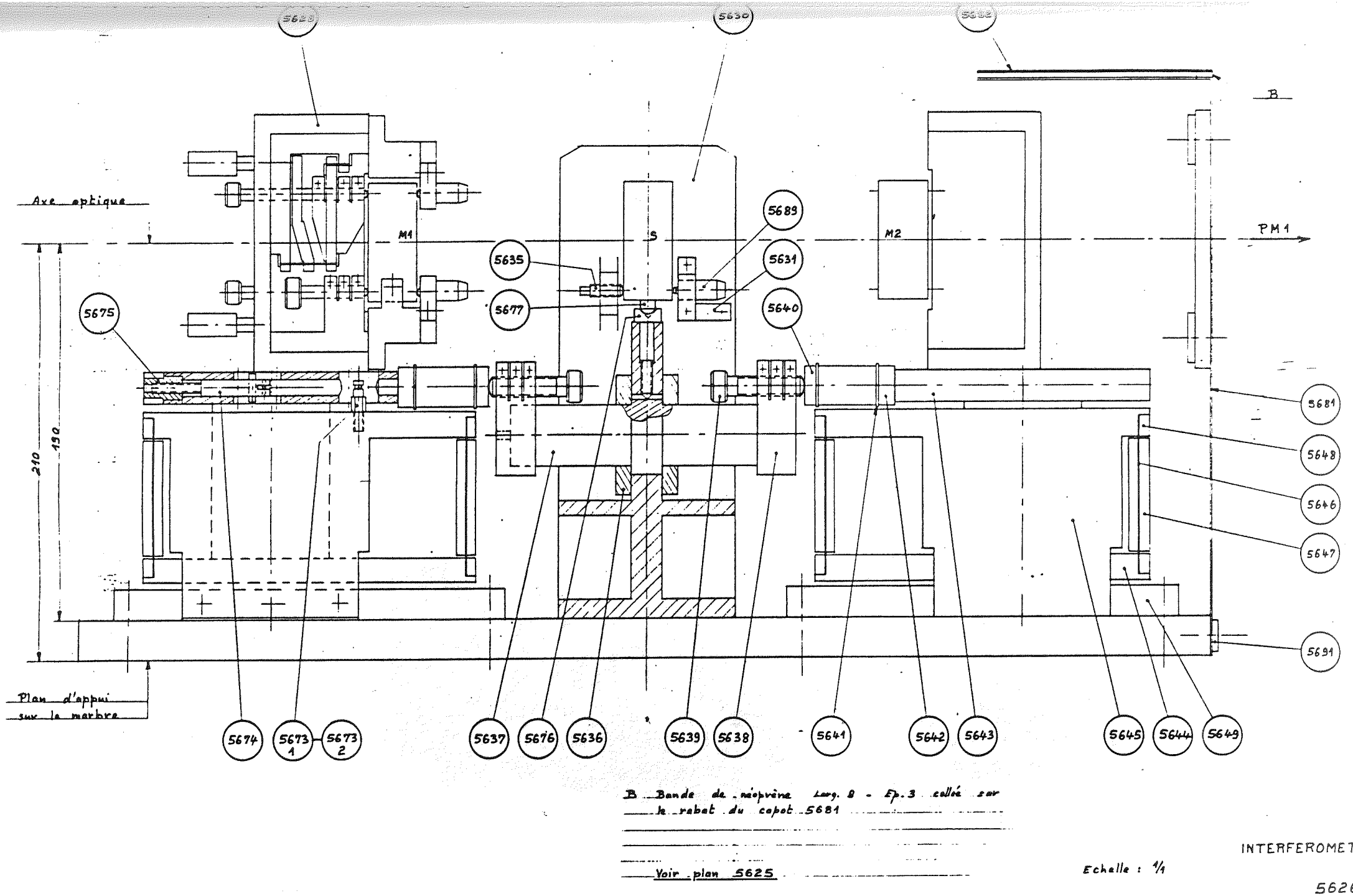
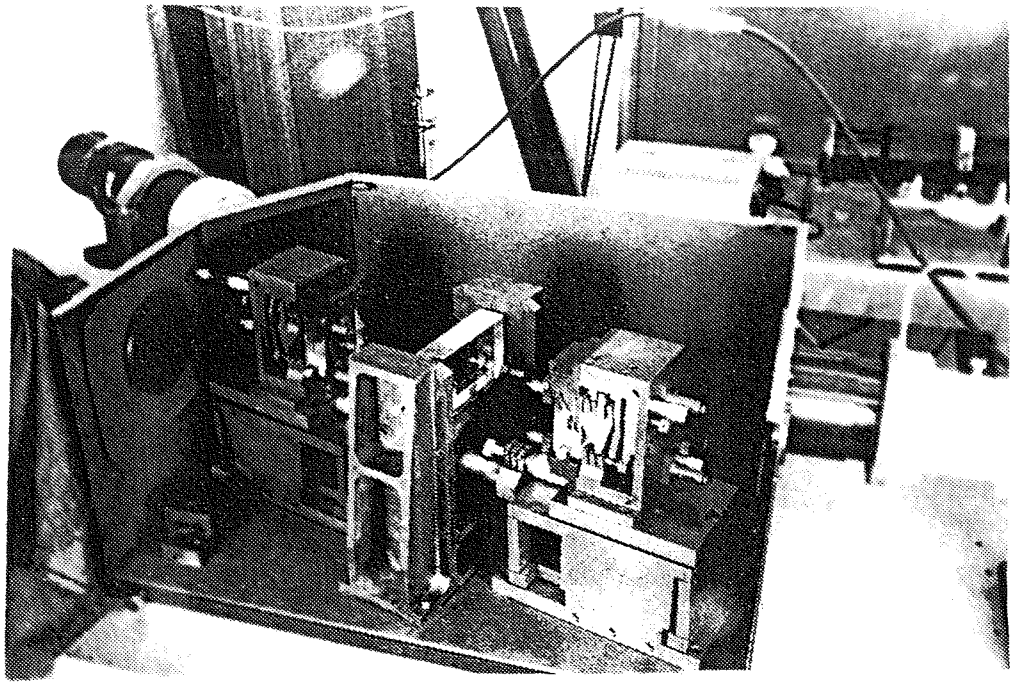


Figure III-7 : Schéma mécanique de l'interféromètre



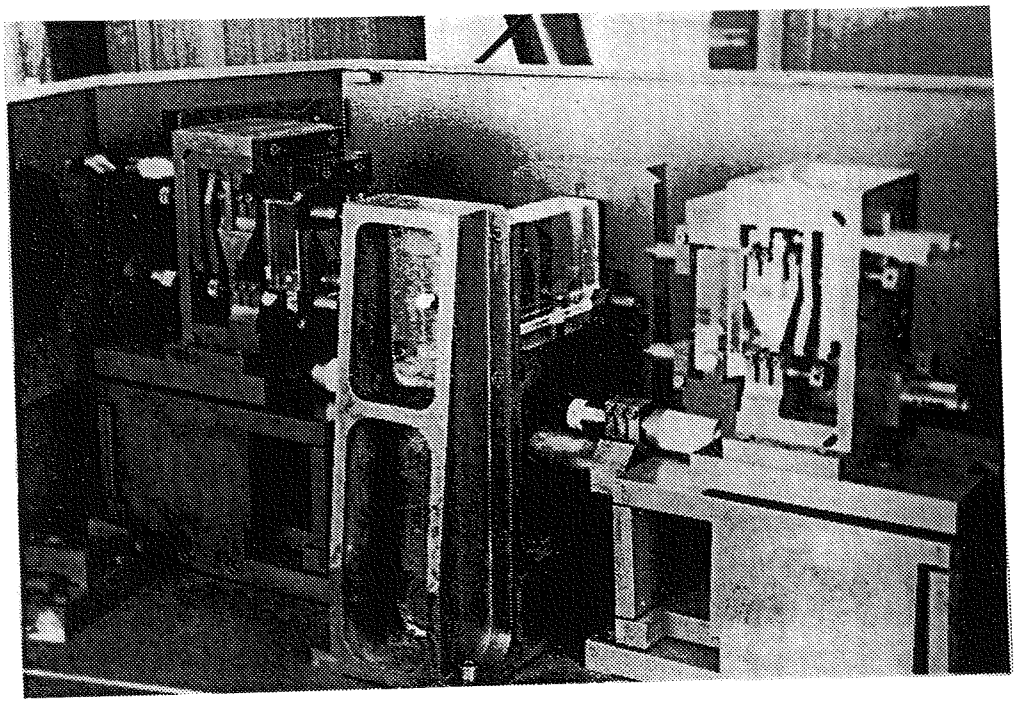
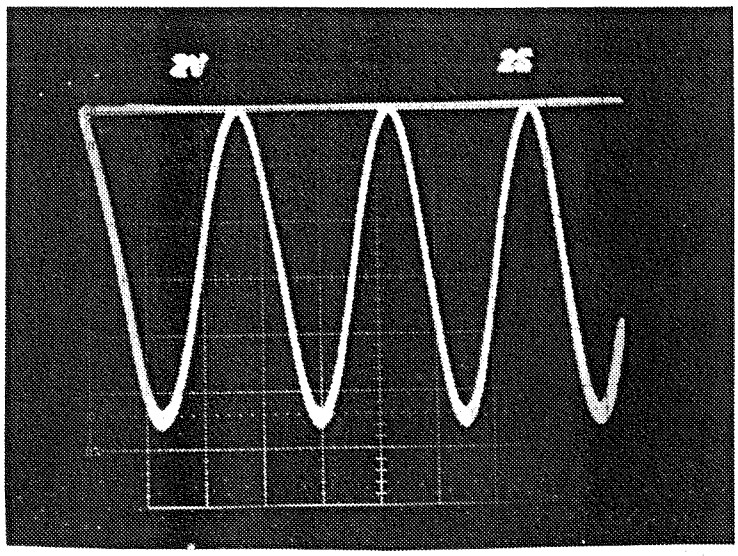


Figure III-8 : Réalisation mécanique de l'interféromètre de Mach-Zehnder. Le faisceau d'entrée est à gauche. On distingue les photomultiplicateurs sur la photo du haut, et le détail du montage des supports de lames sur la photo du bas

a)



b)

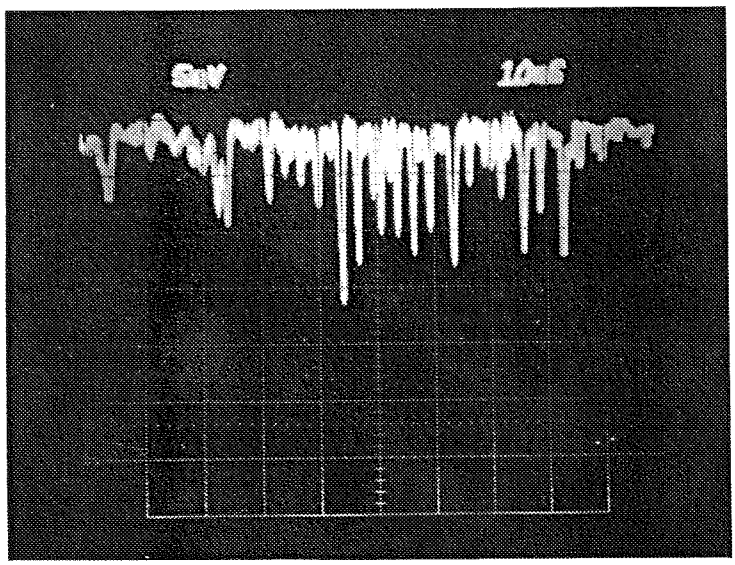


Figure III-9 : Contrôle du contraste des franges d'interférence avec un laser à 457.9 nm. La figure (a) est obtenue en faisant varier lentement la différence de marche (le zéro correspond à la trace horizontale, les échelles sont 2V, 2s). La figure (b) est obtenue en immobilisant les miroirs au voisinage de l'extinction (même zéro, échelles 5mV, 10 ms). Une valeur minimale de 2 mV pour une amplitude totale de 11 V correspond à un contraste de 99.96 %.

../..

toute la surface des miroirs, il n'est pas possible de maintenir une couleur uniforme du champ d'interférence en balayant sur toute l'excursion des céramiques. Cependant, pour le balayage sur 5 franges que nous utiliserons dans l'expérience réelle, et pour le diamètre réel de la pupille utile (35 mm), la déviation maximale est inférieure à $\lambda/20$, ce qui correspond à un contraste supérieur à 0.995. Un dernier point à considérer pour rendre compte des résultats observés est l'existence de systèmes de franges parasites, résultant de réflexions sur les faces de la séparatrice traitées anti-reflets (voir Annexe II). Les différences de marche intervenant dans ce cas mettent en jeu des trajets optiques complexes, et il est très difficile de "synchroniser" ces systèmes de franges parasites sur le système principal. En pratique, nous n'avons observé qu'exceptionnellement un contraste de 0.993 avec la source réelle. La valeur couramment observée de 0.987 (voir paragraphe suivant) correspond aux résultats du calcul de l'Annexe II, en supposant que les différents déphasages des systèmes parasites prennent des valeurs aléatoires non corrélées.

Remarque :

- Les mesures faites avec le faisceau laser ne sont pas sensibles aux systèmes de franges parasites, qui sont géométriquement séparées du faisceau principal (translation de 9 mm dans le plan de l'interféromètre) ;

- Toutes les valeurs données dans ce paragraphe correspondent à un réglage optimal de l'interféromètre. L'influence de certains défauts d'alignement est analysée dans l'Annexe II, et la méthode de réglage utilisée pratiquement sera décrite dans le paragraphe suivant.

d) Haute tension de commande des céramiques

La position des miroirs s'est révélée être une fonction compliquée de la tension appliquée aux céramiques, présentant de l'hystérésis et dans certains cas des constantes de temps extrêmement lentes (plusieurs minutes). Disposant d'un convertisseur Digital/Analogique sur notre ordinateur central, nous avons adopté une solution pragmatique consistant à synthétiser numériquement une rampe de tension produisant le déplacement désiré (Figure III-10). Un seul sens de déplacement est utilisé pour les mesures, et est décrit en 256 pas élémentaires ; dans l'expérience réelle, le retour de la rampe est mis à profit pour effectuer les transferts de données.

../..

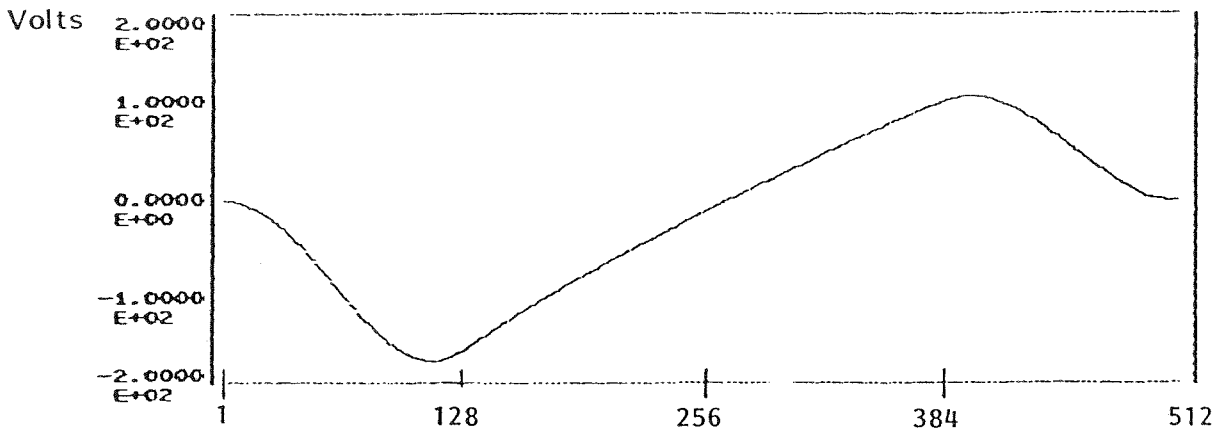


Figure III-10 : Rampe haute-tension utilisée pour la commande des céramiques piézo-électriques ; l'échelle horizontale correspond à la numérisation sur 512 points. Seule la partie centrale (points 128 à 384) est utilisée pour les mesures.

e) Méthode pratique de réglage de l'interféromètre

Le réglage s'effectue en deux étapes. La première étape consiste à ajuster le parallèlisme de tous les dioptres, afin d'éliminer la possiblité de "faux réglage" décrite dans l'Annexe III. Ce réglage s'effectue à l'aide d'un laser He-Ne, en recherchant le maximum du contraste des anneaux d'interférences à l'infini (Figure III-11) ; la précision obtenue est largement supérieure aux tolérances calculées dans l'Annexe II.

Remarques :

- Il est commode de réaliser pour ce réglage une source étendue spatialement incohérente,en utilisant un diffuseur fixe et un diffuseur mobile (tenu à la main) ; on n'a pas ainsi à se préoccuper de l'orientation du faisceau laser vis-à-vis de l'interféromètre.

- Compte-tenu de la stabilité de l'interféromètre, ce réglage est pratiquement effectué une fois pour toute.

La deuxième étape du réglage s'effectue juste avant l'acquisition de données, en utilisant les réglages externes (capot fermé). En éclairant l'interféromètre en lumière blanche à l'aide d'un miroir basculant, la couleur du champ d'interférence, observée visuellement, doit être rendue la plus uniforme possible ; une commande manuelle de l'amplificateur haute-tension permet de faire varier la différence de marche au voisinage de la teinte plate, afin de parfaire ce réglage.

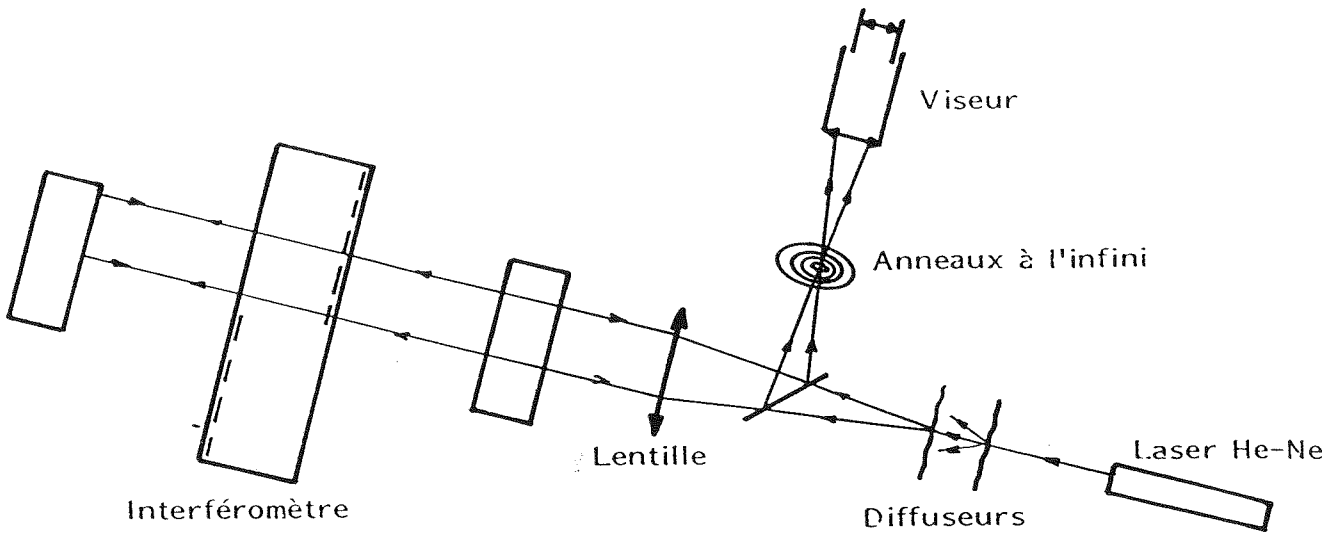


Figure III-11 : Réglage du parallélisme des lames en observant les anneaux à l'infini (au foyer d'une lentille). Le diamètre du faisceau dans l'interféromètre est d'environ 1 cm (dimension de l'orifice dans la monture du miroir).

Des comptages effectués immédiatement après le réglage avec la source réelle ont toujours donné un contraste supérieur à 0.985 (le plus souvent 0.987). Remarquons qu'il est pratiquement exclu d'obtenir cette valeur en se basant uniquement sur les comptages : le réglage "à l'oeil" permet d'apprécier beaucoup plus facilement l'effet des deux commandes d'orientation.

III-B - LA PROCEDURE EXPERIMENTALE

III-B-1 - Acquisition de données

a) Principe

Le but de l'expérience est la mesure du contraste des franges d'interférences dans une situation où la lumière incidente peut être représentée par un "état à un seul photon". En fait, nous allons mesurer le contraste des franges en fonction du paramètre $x = w\bar{\mathcal{S}}/\xi$ caractérisant le taux d'émission de la source ; nous avons vu dans le chapitre précédent que, pour les faibles valeurs de x, la lumière produite par notre source présente un comportement spécifiquement quantique d'"anticorrélation" entre les photodétections se produisant de part et d'autre d'une lame semi-réfléchissante.

Le système de franges sera obtenu par variation contrôlée de la différence de marche δ sur cinq franges environ. Ce balayage s'effectuera en 256 pas élémentaires, d'environ $\lambda/50$ chacun ; un calcul élémentaire permet d'estimer la dégradation du contraste dû à la "discrétisation" de δ à moins de 10^{-3}.

b) Mesures effectuées

A chaque pas de $\lambda/50$, quatre taux de comptages sont mesurés : les taux de comptages "directs" sur les deux sorties de l'interféromètre, que nous noterons $N_{S1}(\delta)$ et $N_{S2}(\delta)$, et les taux de comptages "commandés" par une détection en PMA, que nous noterons $N_{Z1}(\delta)$ et $N_{Z2}(\delta)$. La durée d'intégration pour chaque mesure est de une seconde.

Le transfert de ces quatre taux depuis les compteurs vers l'ordinateur s'effectue à chaque pas. Parallèlement, une autre série de compteurs enregistrent le nombre total de détections pendant le balayage ; les taux obtenus correspondront donc à des valeurs moyennes sur toutes les valeurs de δ, que nous indiquerons à l'aide d'un tilde. Les évènements enregistrés sont les suivants :

- détections en PMA (déclenchements) ;
- taux moyens $\tilde{N}_{S1}$, $\tilde{N}_{S2}$, $\tilde{N}_{Z1}$, $\tilde{N}_{Z2}$ et $\tilde{N}_c$;
- coïncidences et coïncidences retardées entre les détections en PMA et les détections sur les deux voies de sorties de l'interféromètre (PMZ 1 et PMZ 2) ;
- évènements enregistrés par ARIAM, et horloge.

../..

Remarque :

$\tilde{N}_c$ *correspond à des détections simultanées sur les deux sorties de l'interféromètre, pendant les portes w. C'est donc une quantité analogue à* N_c, *mesuré dans l'expérience d'anticorrélation. Nous reviendrons sur ce point ultérieurement.*

c) Transferts et visualisation

A la fin de chaque balayage, la rampe haute-tension revient à sa valeur initiale pendant que les contenus des douze compteurs sont transférés vers l'ordinateur, et que l'ensemble des données (franges d'interférence et taux de comptages) sont stockés sur disquette.

Le bon déroulement de l'expérience est contrôlée visuellement par l'affichage de plusieurs quantités :

- le nombre de coups comptés dans chacun des 256 canaux (totalisation au cours des 16 balayages de chaque séquence de mesures) ;

- le dernier pas de chaque balayage est affiché graphiquement pour contrôler la stabilité de l'interféromètre ;

- les contrastes des coups simples et commandés sont estimés à chaque balayage par une analyse statistique très simple des données.

A titre d'exemple, l'affichage de la console à la fin d'une séquence de 16 balayages est présenté sur la figure III-12.

III-B-2 - Contrôle de la stabilité de l'interféromètre

L'interféromètre est situé à 7 m de l'enceinte à vide, dans une pièce entièrement close isolée du reste de l'expérience. La dérive thermique de la salle d'expérience, due au fonctionnement des lasers et des pompes, est de l'ordre de 1° par heure jusqu'à 30°C ; en ce sens, les expériences effectuées de nuit après une journée entière de stabilisation thermique ont donné les meilleurs résultats.

La dérive typique observée est de l'ordre de $\lambda/8$ pour une séquence de deux heures, mais peut varier entre $\lambda/4$ et $\lambda/20$. Le décalage des franges d'un balayage au suivant est donc toujours inférieur à un canal ($\lambda/50$), et l'effet de la dérive est négligeable au cours d'un balayage.

../..

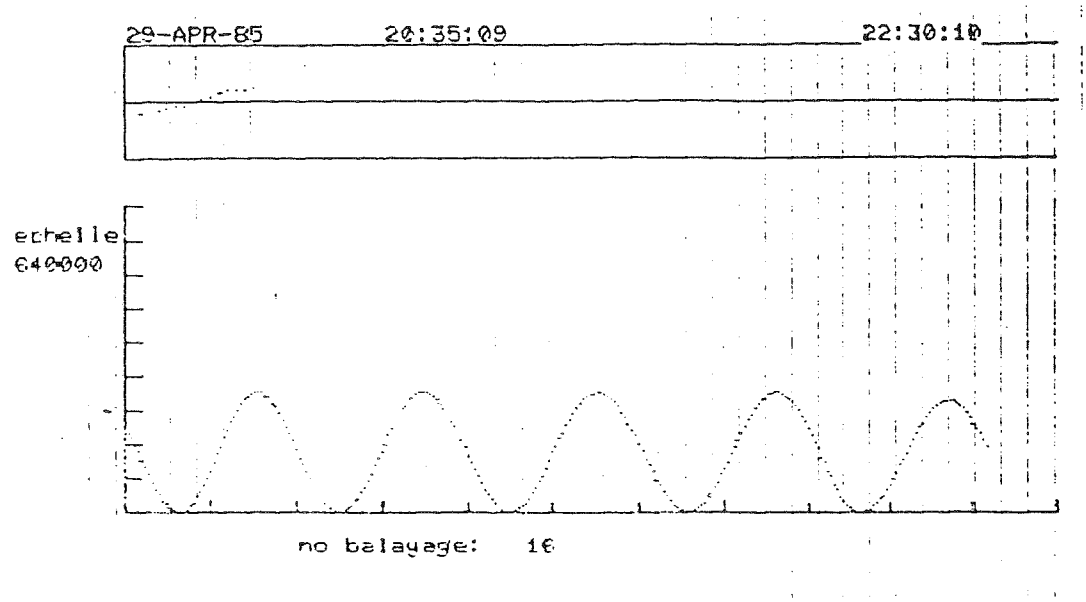


Figure III-12 : Affichage de la console à la fin d'une séquence de 16 balayages ; la durée de la séquence est d'environ 2 h. La partie supérieure de la figure correspond aux valeurs des taux de comptages pour le dernier point de chaque balayage, et permet d'estimer la dérive de l'interféromètre. La partie inférieure représente le total des nombres de coups comptés, en fonction de la différence de marche (il s'agit ici des coups directs "non commandés").

Tous les balayages étant stockés séparément sur disquette, l'effet de la dérive à long terme peut être éventuellement corrigé lors du traitement de données ; cette procédure sera discutée au § III-C-1.

Remarque :

Les changements de température de la salle d'expérience ne sont pas seuls en cause dans les dérives observées ; en particulier, les céramiques piézo-électriques ne fonctionnent avec une stabilité satisfaisante que plusieurs heures après leur mise sous tension.

III-B-3 - Déroulement d'une expérience

La phase initiale de chaque expérience est la même que pour l'expérience d'anticorrélation décrite dans le chapître précédent : la source est stabilisée au

niveau désiré en jouant sur les paramètres d'excitation (puissances lasers, densité du jet atomique), et sur le point de consigne de l'asservissement d'intensité.

Le réglage de l'interféromètre est ensuite retouché, en contrôlant visuellement l'uniformité de la couleur du champ d'interférence en lumière blanche ; un miroir basculant permet une mise en place puis un escamotage simple et rapide de la source de lumière blanche.

Lorsque le réglage est jugé satisfaisant (voir § III-A-3), le programme d'acquisition effectue un balayage de contrôle avec la source réelle. On peut alors ajuster les paramètres de la rampe haute-tension : l'amplitude doit être de cinq franges, et l'origine telle que les taux de comptages dans le dernier canal, utilisé pour le contrôle de la stabilité, vérifie la condition $N_{S1}(\delta_{Max}) = N_{S2}(\delta_{Max})$. Il est en effet évident que la sensibilité aux dérives sera maximum à mi-hauteur d'une frange d'interférence. Ces réglages permettent également de contrôler que les dérives sont dans des limites tolérables (un canal, c'est-à-dire $\lambda/50$ entre deux balayages).

Lorsque tout est au point, le programme effectue un balayage en affichant les taux N_{S1} et N_{S2} correspondant aux 256 canaux pour un contrôle ultime du contraste, puis l'acquisition proprement dite est lancée. Une séquence de deux heures environ comprend 16 balayages, et s'effectue entièrement sous le contrôle de calculateur. Une éventuelle baisse de puissance d'un laser est détectée via l'asservissement d'intensité, qui doit modifier son point moyen de fonctionnement pour maintenir un taux d'émission constant ; un signal sonore informe alors l'opérateur qu'une intervention est nécessaire. En cas de décrochage brutal d'un asservissement, le balayage correspondant est annulé, mais les contenus des douze compteurs sont transférés vers le calculateur pendant que la position des miroirs est réinitialisée.

A la fin de chaque balayage, le calculateur imprime les puissances lasers, la température du four, le taux de déclenchement N_A et des estimations du contraste des franges, tandis que le contenu des 4 x 256 canaux est stocké sur disquette.

A la fin de la séquence de mesures, les spectres-temps enregistrés par l'analyseur multicanal (carte ARIAM) sont stockés à son tour, et les nombres de coups enregistrés par les douze compteurs sont imprimés pour un contrôle du bon déroulement de l'expérience.

../..

Puis, le programme est relancé, la stabilité des réglages de l'interféromètre étant en général suffisante pour rendre inutile de retoucher les réglages entre deux séquences.

En résumé, une procédure d'acquisition presque totalement informatisée a été rendue nécessaire par la grande quantité de données à traiter simultanément. Des procédures systématiques sont mises en jeu automatiquement en cas de défaillance du système (décrochage d'un asservissement...). Enfin, comme dans l'expérience d'anticorrélation (Ch. II), l'ensemble des données enregistrées permet un contrôle supplémentaire "a posteriori" du bon fonctionnement de l'appareillage.

III-C - TRAITEMENTS DE DONNEES ET RESULTATS

III-C-1 - Les mesures de contrastes

a) Introduction

Ce paragraphe décrit les méthodes de mesure du contraste des franges d'interférences, utilisées lors du traitement des données expérimentales. Rappelons que ces données sont regroupées en tableaux de 4 x 256 valeurs, représentant des nombres de coups obtenus en 1 s de comptage sur les deux sorties de l'interféromètre, en fonction de la différence de marche δ ; l'intervalle entre deux points successifs correspond à une variation de δ égale à $\lambda/50$, et les quatre taux enregistrés pour chaque valeur de δ sont les coups "directs" $N_{S1}(\delta)$ et $N_{S2}(\delta)$, et les coups "commandés" $N_{Z1}(\delta)$ et $N_{Z2}(\delta)$.

Les valeurs attendues pour ces taux vont s'obtenir en utilisant les eq. (I-83) et (I-84) établies au chapitre I. De plus, on devra prendre en compte les coups d'obscurités des photomultiplicateurs, que nous noterons b_A, b_1 et b_2 pour PMA, PMB1 et PMB2. On obtient alors (i = 1, 2) :

$$N_{Si}(\delta) = \kappa_i(\delta)\,\overline{\mathcal{S}} + b_i \qquad \text{(III-6-a)}$$

$$N_{Zi}(\delta) = \kappa_A\,\kappa_i(\delta)\,\xi\,\overline{\mathcal{S}} + w(\kappa_A\,\overline{\mathcal{S}} + b_A)\,(\kappa_i(\delta)\,\overline{\mathcal{S}} + b_i) \qquad \text{(III-6-b)}$$

où le terme d'interférence est contenu dans le rendement de collection effectif $\kappa_i(\delta)$ (voir eq. I-84), et les grandeurs κ_A, ξ et $\mathcal{S}$ ont été définies dans le § I-C. On suppose ici la source suffisamment stable pour que la relation $\overline{\mathcal{S}^2} = (\overline{\mathcal{S}})^2$ soit bien vérifiée.

Nous définirons le contraste γ relativement à $\kappa_i(\delta)$ par la relation usuelle :

$$\gamma_i = \frac{\kappa_i^{Max} - \kappa_i^{Min}}{\kappa_i^{Max} + \kappa_i^{Min}} \qquad \text{(III-7)}$$

../..

Par ailleurs, les contrastes expérimentaux correspondant aux nombres de coups comptés seront donnés par :

$$V_{Si} = \frac{N_{Si}^{Max} - N_{Si}^{Min}}{N_{Si}^{Max} + N_{Si}^{Min}} \quad \text{(coups "directs")} \qquad \text{(III-8-a)}$$

$$V_{Zi} = \frac{N_{Zi}^{Max} - N_{Zi}^{Min}}{N_{Zi}^{Max} + N_{Zi}^{Min}} \quad \text{(coups "commandés")} \qquad \text{(III-8-b)}$$

En l'absence de bruit de fond des PM, on doit avoir $V_{Si} = V_{Zi} = \gamma_i$; pour des bruits de fonds non nuls, les corrections au 1er ordre seront exprimés en fonction de $b_i/\varepsilon_i \bar{\mathcal{N}}$, où ε_i représente le rendement moyen de détection :

$$\varepsilon_i = \frac{1}{2} (\kappa_i^{Max} + \kappa_i^{Min}) \qquad \text{(III-9)}$$

On aura alors :

$$V_{Si} = \gamma_i \left(1 - \frac{b_i}{\varepsilon_i \bar{\mathcal{N}}}\right) \qquad \text{(III-10-a)}$$

$$V_{Zi} = \gamma_i \left(1 - \frac{x}{1+x} \frac{b_i}{\varepsilon_i \bar{\mathcal{N}}}\right) = \gamma_i \left(1 - \frac{1}{1+x} \frac{w\, b_i}{\bar{\xi} \varepsilon_i}\right) \qquad \text{(III-10-b)}$$

où $x = w \bar{\mathcal{N}} / \xi$ caractérise le degré d'excitation de la source (voir chapitre II).

En pratique, ces corrections seront inférieures à 0.05 pour V_{Si}, et à 0.003 pour V_{Zi}. Afin de comparer l'expérience et les prédictions quantiques, nous appliquerons d'abord ces corrections, pour en déduire les contrastes γ_{Si} et γ_{Zi} calculés respectivement à partir de V_{Si} et V_{Zi}. D'après les prédictions quantiques, on doit avoir $\gamma_{Si} = \gamma_{Zi} = \gamma_i$ pour toute valeur de x ; le but de nos mesures sera donc de vérifier cette relation.

Remarque :

- Si les lames séparatrices utilisées ont des coefficients de transmission T et de réflexion R différents, les deux sorties 1 et 2 de l'interféromètre ne sont pas

équivalentes. On obtient en effet :

$$\kappa_1(\delta) = \kappa_o \; 2RT \; (1 + \gamma_o \cos 2\pi\delta/\lambda)$$

$$\kappa_2(\delta) = \kappa_o \; (R^2 + T^2 - 2RT \; \gamma_o \cos 2\pi\delta/\lambda)$$

où γ_o *est le contraste lorsque* $T = R = 0.5$. *On a alors :*

$$\gamma_1 = \gamma_o \qquad\qquad \gamma_2 = \frac{2RT}{R^2 + T^2} \; \gamma_o$$

Dans ce cas réel, $T \cong 0.535$ *et* $R \cong 0.465$ *et on a* $\gamma_2 \cong 0.99 \; \gamma_o$.

- Une autre définition de la visibilité pourrait être :

$$\gamma' = Sup \left(\frac{\kappa_2(\delta) - \kappa_1(\delta)}{\kappa_2(\delta) + \kappa_1(\delta)} \right)$$

La mesure ne nécessite alors qu'un seul comptage si δ *est bien choisi (extinction de* $\kappa_1(\delta)$*). En utilisant le modèle simple ci-dessus, on obtient :*

$$\gamma' = (R - T)^2 + 4RT \; \gamma_o$$

$$\cong 0.005 + 0.995 \; \gamma_o$$

Bien que les différences entre ces différentes expressions soient minimes lorsque γ_o *est proche de 1, les calculs ultérieurs seront effectués sur les signaux de la voie 1, qui fournit une valeur du contraste en principe indépendante de R et T.*

b) Procédure de recentrage

Les définitions précédentes de V_{Si} et V_{Zi} ne sont en fait applicables que dans la mesure où la statistique des comptages est suffisante. En particulier, dans toutes les expériences réalisées, le nombre de coups commandés au maximum d'une frange d'interférence est de quelques dizaines, et vaut zéro au minimum. Il est donc nécessaire de rassembler plusieurs balayages, en tenant compte des dérives

../..

de l'interféromètre. Ce paragraphe est consacré à la description de cette procédure de "recentrage", qui ne pose pas de difficultés de principe, les dérives à corriger étant peu importantes.

Les contenus des différents fichiers sont ajoutés canal par canal, en introduisant éventuellement un décalage pour compenser les dérives. Les décalages sont déterminés par rapport à un fichier de référence, par la méthode suivante : soit $n_o(p)$, p étant le numéro du canal, le nombre de coups simples comptés sur la sortie 1 de l'interféromètre. Le décalage ℓ correspondant à un fichier dont le contenu est n(p) est déterminé en cherchant le minimum de la quantité :

$$T(\ell) = \sum_{p=20}^{235} \left\{ n(p+\ell) - n_o(p) \right\}^2 \qquad \text{(III-11)}$$

Le fichier "compilé" est ainsi construit par additions successives de plusieurs balayages. En pratique, le décalage ℓ (déterminé par le programme) augmente d'une unité tous les deux ou trois balayages ; ceci confirme que la dérive entre deux balayages consécutifs demeure inférieure à un canal.

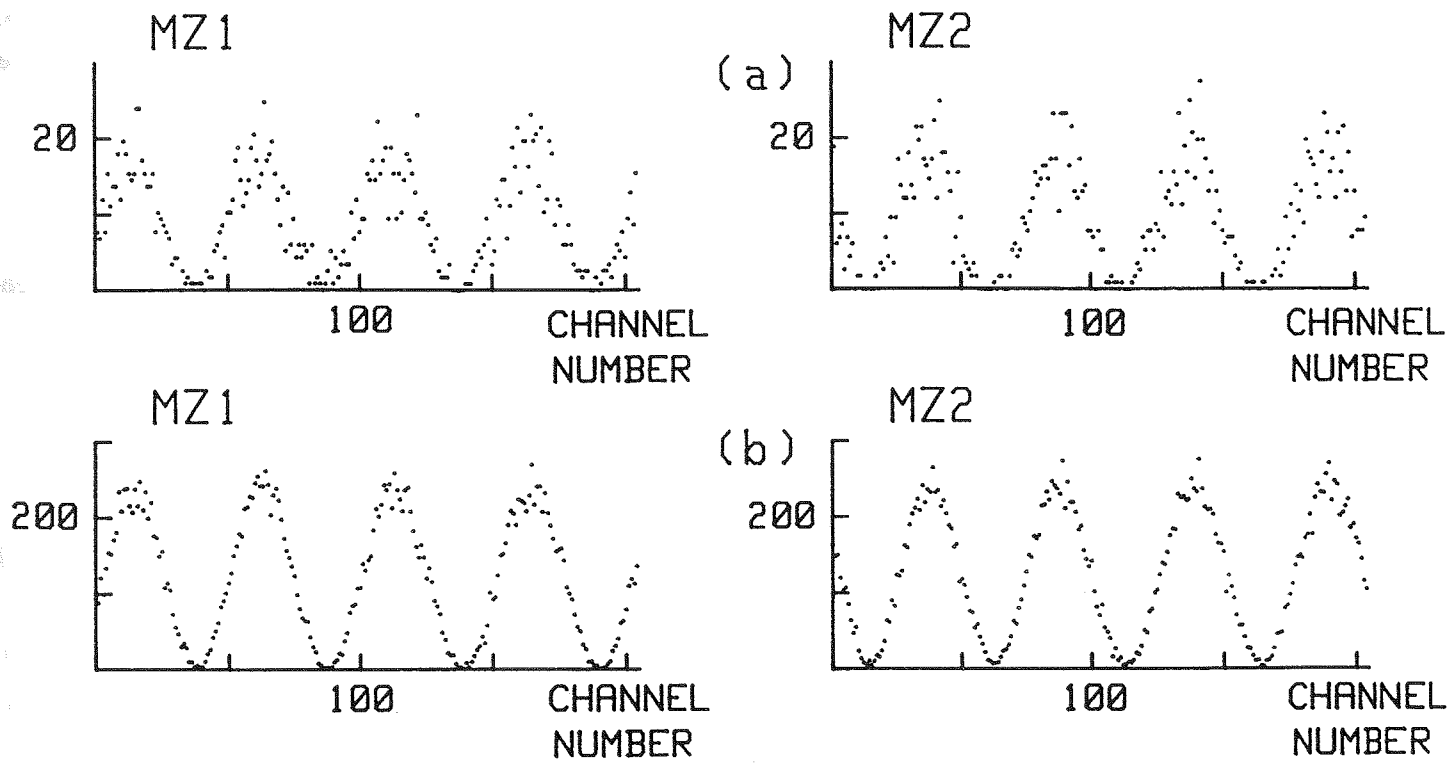


Figure III-13 : Nombre de coups comptés sur les deux sorties MZ 1 et MZ 2 de l'interféromètre, en fonction de la différence de marche δ (un point correspond à une variation de δ égale à $\lambda/50$). La Fig. (a) représente un balayage élémentaire (1 s de comptage par point), et la Fig. (b) la compilation de 15 balayages élémentaires. Cette expérience correspond à un paramètre d'anticorrélation $\alpha = 0.18$.

Un exemple de résultat est présenté sur la Figure III-13 ; remarquons qu'un contraste de 99 % correspond à un coup au minimum pour 200 coups au maximum des franges d'interférences.

c) Méthode élémentaire de mesure du contraste

Par application directe des formules (III-8 et III-10) aux fichiers compilés, on obtient une première estimation du contraste ; en pratique, les valeurs minimales et maximales sont déterminées par moyenne des minima et maxima des 4 franges correspondant à chaque fichier.

Les résultats obtenus après corrections des coups d'obscurités des P.M. sont indiqués sur le tableau III-2, avec une barre d'erreur obtenue en admettant des fluctuations en $\sqrt{N}$ sur les comptages.

Afin de permettre une comparaison aisée, nous avons représenté sur la figure III-14 les valeurs de γ_{S1}, γ_{Z1} et du rapport γ_{Z1}/γ_{Z1}, montrant que tous les résultats obtenus sont compatibles avec la relation $\gamma_{S1} = \gamma_{Z1}$.

On peut cependant remarquer que nous n'avons utilisé que quelques points du fichier (les minima et maxima). Nous allons voir que l'on peut obtenir les mêmes quantités en utilisant tous les points des fichiers correspondant à N_{S1} et N_{Z1}.

d) Méthode par régression linéaire

D'après les équations III-6, $N_{Zi}(\delta)$ et $N_{Si}(\delta)$ sont liés par la relation linéaire :

$$N_{Zi}(\delta) = \{\kappa_A \xi + w(\kappa_A \overline{\mathcal{S}} + b_A)\} \; N_{Si}(\delta) - \kappa_A \xi b_i$$

$$= A \, N_{Si}(\delta) + B \qquad \text{(III-12)}$$

Les coefficients A et B peuvent se calculer par régression linéaire, en utilisant tous les points du fichier ; connaissant A et B, il sera facile de comparer γ_{Z1} et γ_{S1}.

Cette méthode requiert quelques précautions, car la relation (III-12) indique seulement une relation linéaire entre les valeurs moyennes des nombres de coups

../..

x	0.061	0.12	0.166	0.282	0.501	0.703	0.85	1.12
γ_{S1}	0.986	0.985	0.989	0.986	0.988	0.986	0.990	0.986
γ_{Z1}	0.990	0.986	0.991	0.990	0.986	0.985	0.989	0.984
γ_{Z1}/γ_{S1}	1.004	1.001	1.002	1.004	0.998	0.999	0.999	0.998
σ	.006	.004	.004	.003	.003	.002	.002	.002

Tableau III-2 : Valeurs de γ_{S1}, γ_{Z1} et γ_{Z1}/γ_{S1} en fonction du paramètre x (voir Fig. III-14). L'incertitude σ (pour γ_{Z1}/γ_{S1}) correspond à un écart-type et représente une estimation des fluctuations statistiques sur les résultats de mesures.

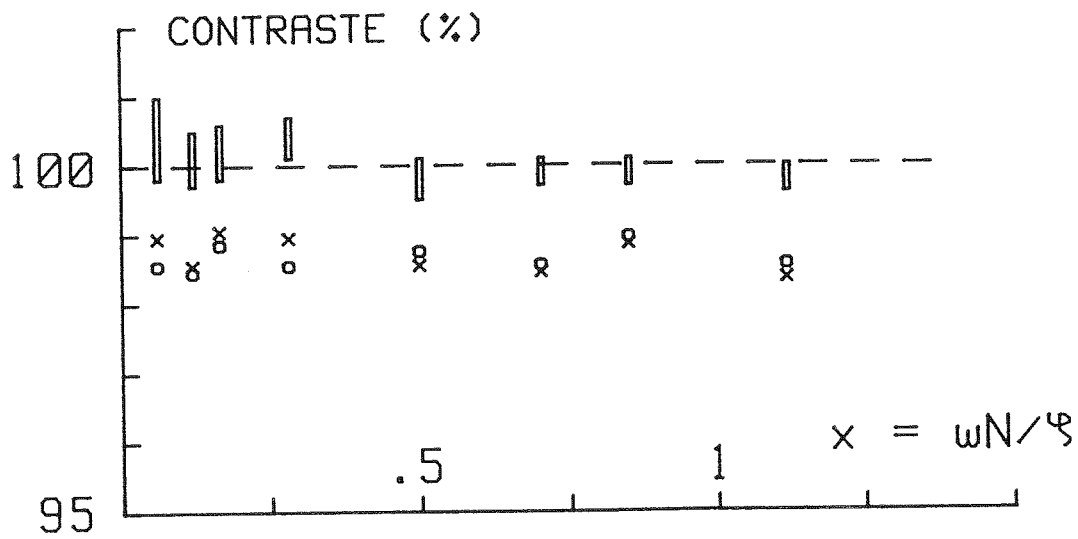


Figure III-14 : Valeurs de $\gamma_{S1}(o)$, $\gamma_{Z1}(x)$ et du rapport γ_{Z1}/γ_{S1}(rectangles) en fonction du paramètre x. Les valeurs des contrastes sont obtenues par détermination directe des maxima et minima de $N_{S1}(\delta)$ (coups directs) et $N_{Z1}(\delta)$ (coups commandés). Les barres d'erreurs, indiquées seulement pour le rapport γ_{Z1}/γ_{S1}, montrent que nos résultats sont en accord avec la prédiction quantique $\gamma_{Z1} = \gamma_{S1}$, quelle que soit la valeur de x et donc du paramètre d'anticorrélation α.

comptés pour chaque valeur de δ ; les résultats de mesures devront être considérés comme des variables aléatoires, obéissant à une loi de Poisson dont les valeurs moyennes ci-dessus seront les paramètres. En pratique, nous identifierons les lois de Poisson à des lois de Gauss de mêmes valeurs moyennes et mêmes écarts-types ; ceci permet de montrer par la méthode du maximum de vraisemblance[58] que A et B peuvent être obtenus simplement à partir d'une régression linéaire pondérée, en affectant à chaque taux expérimental $N_{Z1}(\delta)$ un poids $1/N_{Z1}(\delta)$. L'allure des données expérimentales, (Fig. III-15) rend d'ailleurs cette procédure évidente intuitivement.

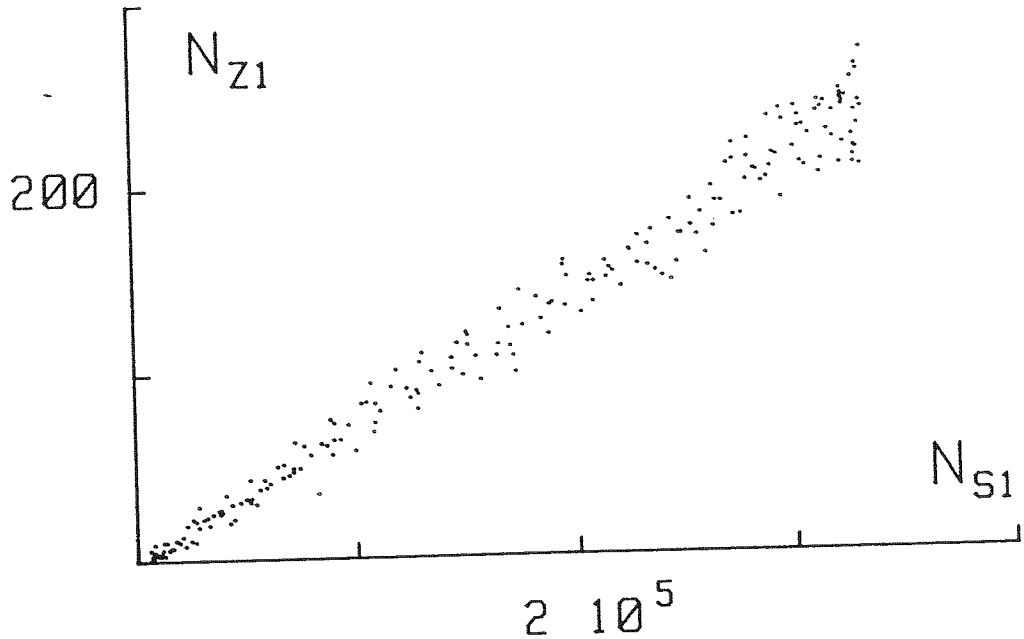


Figure III-15 : Nombre de coups "commandés" $N_{Z1}(\delta)$ en fonction du nombre de coups "directs" $N_{S1}(\delta)$; ces grandeurs sont reliés par une relation linéaire paramétrée par δ, qui n'apparait donc plus sur la figure. La dispersion poissonnienne de N_{Z1} est clairement apparente. Ces points correspondent au fichier "compilé" représenté sur la Figure III-13-(b).

Remarque :

- Nous supposons implicitement que $N_{S1}(\delta)$ est parfaitement connu, ce qui semble justifié ici puisque les fluctuations sur $N_{S1}(\delta)$, dues essentiellement aux fluctuations de la source et non au processus de comptage lui-même, sont beaucoup plus faibles que celles de $N_{Z1}(\delta)$;

- la méthode du maximum de vraisemblance consiste à rechercher les valeurs de σ, A et B minimisant la quantité :

../..

$$L = \left(\frac{1}{2\Pi\sigma^2}\right)^{N/2} (p_1 \dots p_N)^{1/2} \exp\left\{-\frac{1}{2\sigma^2} \sum_{n=1}^{N} p_n (y_n - Ax_n - B)^2\right\} \quad (III-14)$$

où les p_n sont les poids affectés aux points (x_n, y_n) et N le nombre de points (la variance du résultat y_n est par l'hypothèse σ^2/p_n, et σ sera déterminé par le calcul). A et B sont alors donnés par les équations habituelles :

$$A \sum p_n + B \sum p_n x_n = \sum p_n y_n \quad (III-15-a)$$

$$A \sum p_n x_n + B \sum p_n x_n^2 = \sum p_n x_n y_n \quad (III-15-b)$$

et on obtient un estimateur de σ^2 sous la forme[58] *:*

$$\sigma^2 = \frac{1}{N-2} \sum_n p_n (y_n - A x_n - B)^2. \quad (III-15-c)$$

Dans notre cas (loi de Poisson), on doit obtenir $\sigma = 1$, ce qui s'est trouvé être très bien vérifié en pratique, et justifie "a posteriori" le remplacement de la loi de Poisson exacte par la loi de Gauss.

Les résultats obtenus après les corrections de coups d'obscurité sont indiqués sur le tableau III-3, et représentés sur la figure III-16. Ces résultats sont en accord raisonnable avec ceux obtenus par la méthode du paragraphe précédent, et à nouveau parfaitement compatibles avec la relation $\gamma_{Z1} = \gamma_{S1}$. Remarquons que le point à x = 0.06 correspond à une valeur du paramètre d'anticorrélation $\alpha = 0.11$: pour cette valeur 10 fois inférieure à la limite classique, on peut affirmer que les photons arrivent bien "un à un" dans l'interféromètre.

III-C-2 - Les contrôles auxiliaires

a) Paramètre d'anticorrélation

Nous avons vu dans le paragraphe III-B-1 que tous les taux de comptages correspondant à l'expérience d'anticorrélation décrite au chapitre II étaient enregistrés pendant le fonctionnement de l'interféromètre ; ces taux seront donc des taux moyennés sur la différence de marche δ, que nous notons par un tilde.

../..

x	0.061	0.12	0.166	0.282	0.501	0.703	0.850	1.12
γ_{S1}	0.9855	0.9835	0.989	0.985	0.988	0.986	0.990	0.986
γ_{Z1}	0.981	0.9835	0.995	0.986	0.9815	0.985	0.988	0.985
γ_{Z1}/γ_{S1}	0.995	1.000	1.006	1.001	0.9935	0.999	0.998	0.999
σ	.006	.004	.004	.004	.003	.002	.002	.002

Tableau III-3 : Valeurs de γ_{S1}, γ_{Z1} et γ_{Z1}/γ_{S1} en fonction du paramètre x (voir Fig. III-16). Les valeurs des contrastes sont obtenues par une méthode de régression linéaire (voir texte). Comme dans le tableau III-2, l'incertitude σ correspond à un écart-type sur la mesure de γ_{Z1}/γ_{S1}.

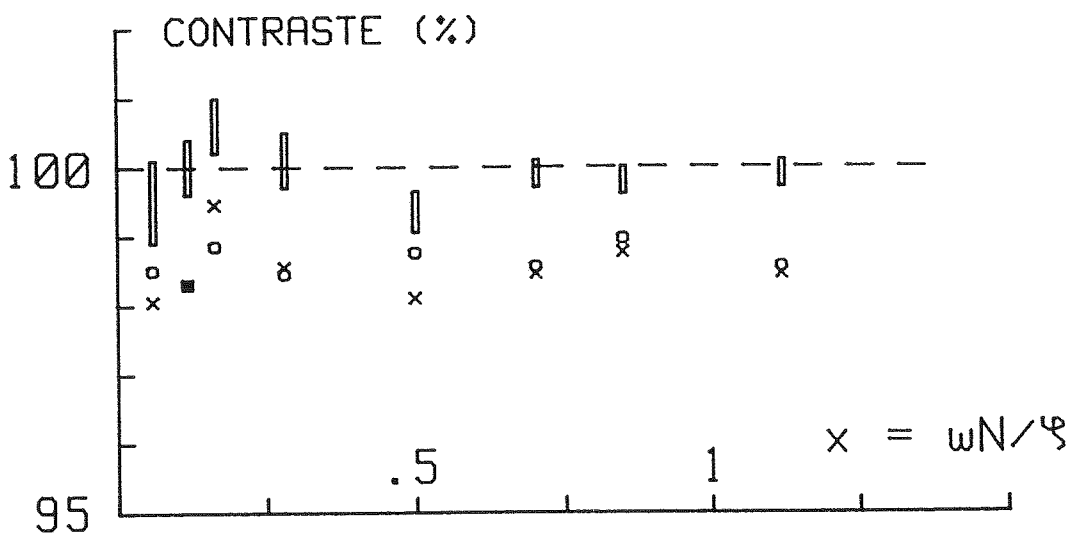


Figure III-16 : Valeurs de γ_{S1}(o), γ_{Z1}(x), et du rapport γ_{Z1}/γ_{S1} (rectangles) en fonction du paramètre x. Les valeurs des contrastes sont ici obtenues par une méthode de régression linéaire (voir texte). Ces résultats étant compatibles avec ceux de la Figure III-14, on obtient à nouveau un bon accord avec la relation $\gamma_{S1} = \gamma_{Z1}$

En particulier, nous avons enregistré le taux de coïncidences $\tilde{N}_c$ entre les deux sorties de l'interféromètre, pendant les portes w. On doit évidemment retrouver en sortie de l'interféromètre l'effet d'anticorrélation, qui caractérise le fait qu'un seul photon à la fois peut être détecté pendant la porte w.

Remarque :

Il n'y a ici aucune contradiction avec la dualité onde/corpuscule ; la propriété "corpusculaire" qui est incompatible avec l'apparition des interférences est l'identification de la "trajectoire suivie par le photon", c'est-à-dire, la détermination du "bras" de l'interféromètre qui a été parcouru. L'effet d'anticorrélation entre les deux sorties de l'interféromètre ne donne bien entendu aucune information sur le trajet suivi dans l'interféromètre.

Les taux de comptages $N_{Z1}(\delta)$ et $N_{Z2}(\delta)$ variant avec un contraste voisin de 100 %, le paramètre d'anticorrélation $\tilde{\alpha}$ doit être défini par la relation :

$$\tilde{\alpha} = \frac{\tilde{N}_c \; N_A}{\widetilde{(N_{Z1} \; N_{Z2})}} \qquad \text{(III-16)}$$

où $\widetilde{(N_{Z1} \; N_{Z2})}$ est la moyenne du produit de $N_{Z1}(\delta)$ et $N_{Z2}(\delta)$ obtenus à partir des fichiers d'interférences. En utilisant les relations approximatives :

$$N_{Z1}(\delta) \cong \tilde{N}_{Z1}(1 + \cos 2\Pi\delta/\lambda) \qquad \text{(III-17-a)}$$

$$N_{Z2}(\delta) \cong N_{Z2}(1 - \cos 2\Pi\delta/\lambda) \qquad \text{(III-17-b)}$$

on voit que $\widetilde{(N_{Z1} \; N_{Z2})}$ est approximativement égal à $(\tilde{N}_{Z1} \cdot \tilde{N}_{Z2})/2$. Le but de ces définitions est de conserver à $\tilde{\alpha}$ la même expression qu'au Chapitre II en fonction du paramètre $x = w\sqrt{\mathcal{S}}/\xi$:

$$\tilde{\alpha}_{M.Q} = \frac{x(x+2)}{(x+1)^2} \qquad \text{(III-18)}$$

et l'inégalité semi-classique s'écrit toujours :

$$\tilde{\alpha}_{Class} \geq 1 \qquad \text{(III-19)}$$

../..

Remarque :

Les raisonnements effectués ici sont évidemment moins directs que ceux du Chapitre II ; on peut également remarquer que les comptages pour lesquels $\kappa_1(\delta)$ et $\kappa_2(\delta)$ sont très différents sont très défavorables du point de vue du rapport signal sur bruit (eq. II-35). Les résultats présentés ici sont en fait surtout utiles comme contrôle de la valeur du paramètre d'anticorrélation, qui en principe ne dépend que du taux de cascades.

b) Egalité des portes et rendements de détection

Comme dans le § II-D-2, le rapport des taux directs et commandés peut s'écrire sous la forme :

$$\tilde{N}_{Z1}/\tilde{N}_{S1} = \kappa_A \, \xi_1 + w_1 \, N_A \qquad \text{(III-20-a)}$$

$$\tilde{N}_{Z2}/\tilde{N}_{S2} = \kappa_A \, \xi_2 + w_2 \, N_A \qquad \text{(III-20-b)}$$

Ces relations permettent la vérification de l'égalité des portes w_1 et w_2, et la mesure du facteur $\kappa_A \, \xi$ permettant de relier le taux N_A mesuré au paramètre x. Les résultats correspondants sont représentés sur la figure III-17 ; les valeurs que l'on peut déduire de ces courbes sont :

$$\kappa_A \, \xi_1 = 0.66 \; 10^{-3} \qquad w_1 = 8.5 \text{ ns} \qquad \text{(III-21-a)}$$

$$\kappa_A \, \xi_2 = 0.655 \; 10^{-3} \qquad w_2 = 8.5 \text{ ns} \qquad \text{(III-21-b)}$$

La différence entre ces valeurs et celles obtenues au Chapitre II s'explique par des réglages optiques et électroniques un peu différents.

../..

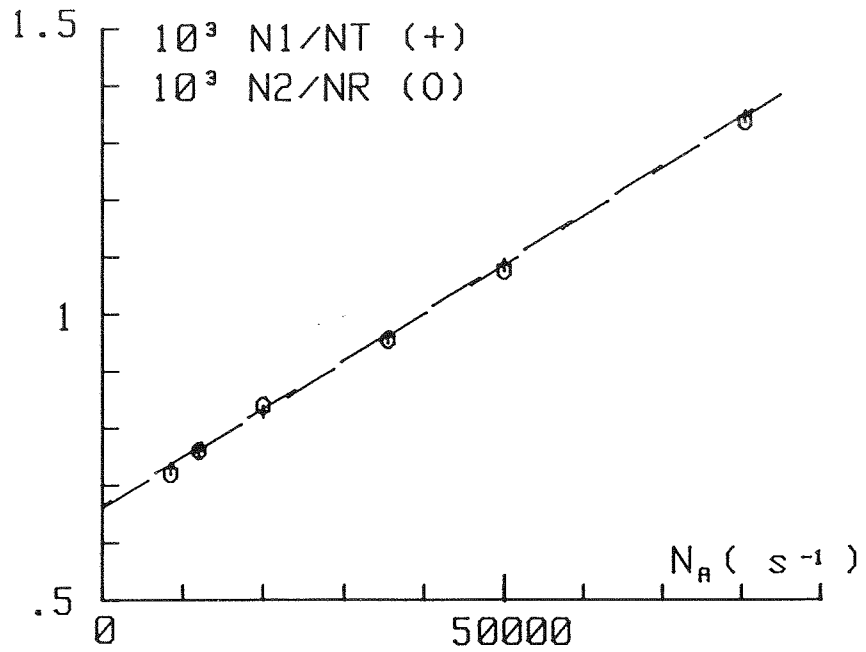


Figure III-17 : Contrôle des portes w_1 et w_2 (pentes des deux droites) et des paramètres $\kappa_A\ \xi_1$ et $\kappa_A\ \xi_2$ (ordonnées à l'origine) pour l'expérience d'interférences à un seul photon.

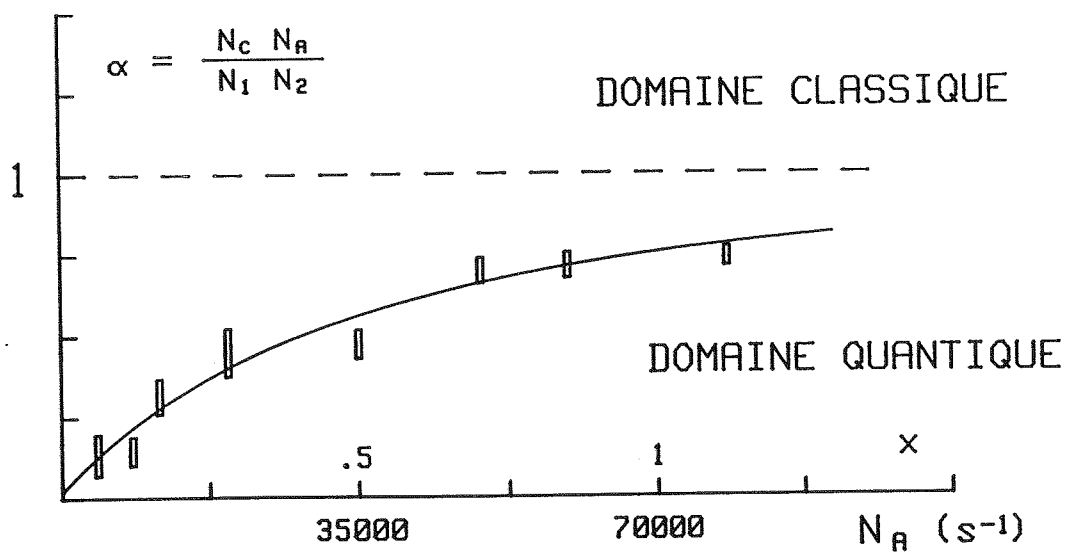


Figure III-18 : Valeurs théoriques et expérimentales du paramètre d'anti-corrélation $\tilde{\alpha}$ correspondant à l'expérience d'interférences à un seul photon (comparer avec la Figure II-18).

c) Conclusion

Sur la Figure III-18 sont portées les valeurs théoriques et expérimentales du paramètre d'anticorrélation $\tilde{\alpha}$ correspondant à l'expérience "d'interférences à un seul photon". Ces résultats sont évidemment tout à fait similaires à ceux obtenus au chapitre II, mais, étant enregistrés en même temps que les franges d'interférences, ils apportent une preuve supplémentaire du caractère spécifiquement quantique de la lumière utilisée dans l'expérience d'interférences proprement dite.

III-D - DISCUSSION ET CONCLUSION

III-D-1 - Discussion

a) Introduction

Nous avons donc observé un phénomène d'interférence dans un interféromètre "optique", en utilisant une lumière dont les propriétés spécifiquement quantiques ont été établies expérimentalement par la mise en évidence d'un effet d'anticorrélation. La description physique de ces expériences doit faire intervenir les propriétés "complémentaires" ondulatoires et corpusculaires du champ électromagnétique, qui seraient mutuellement exclusives dans un contexte classique. Ce paragraphe est consacré à une discussion de la question posée dans tous les cours de Mécanique Quantique : dans quelle mesure peut-on "localiser" le photon dans un des bras de l'interféromètre, et observer simultanément des interférences ? Il est possible d'illustrer cette question de façon très concrète dans notre situation expérimentale. Nous allons donc dans le paragraphe suivant considérer une proposition d'expérience (qui ne sera pas réalisée), dans laquelle on tente de savoir "par quelle voie est passé le photon". On pourra vérifier dans ce cas précis, la validité d'une inégalité reliant le contraste des franges et la connaissance du "chemin suivi", démontrée dans un autre contexte par A. Heidmann et S. Reynaud[59].

Remarque :

Le fait de considérer l'existence d'interférences comme une caractéristique "ondulatoire" et la connaissance du chemin suivi comme une caractéristique "corpusculaire" peut conduire à des confusions dans le contexte de la discussion ci-dessous, où on utilise directement la description quantique de la lumière. En particulier, cette discussion concerne la relation entre le contraste des franges et la connaissance du chemin suivi (propriétés du 1er ordre), et est indépendante de l'existence de l'effet d'anticorrélation (propriété du 2ème ordre). Dans ce travail, c'est plutôt l'effet d'anticorrélation qui a été considéré comme caractéristique d'un comportement corpusculaire. Ces difficultés sont essentiellement de nature sémantique : plutôt que de dire qu'un objet quantique est soit onde, soit particule, il vaut mieux considérer qu'il n'est ni onde, ni particule[63], et déterminer pour chaque

../..

type d'expérience quelles sont les grandeurs "complémentaires" dont la détermination simultanée sera restreinte par des inégalités.

b) Une expérience "de pensée" effectivement réalisable

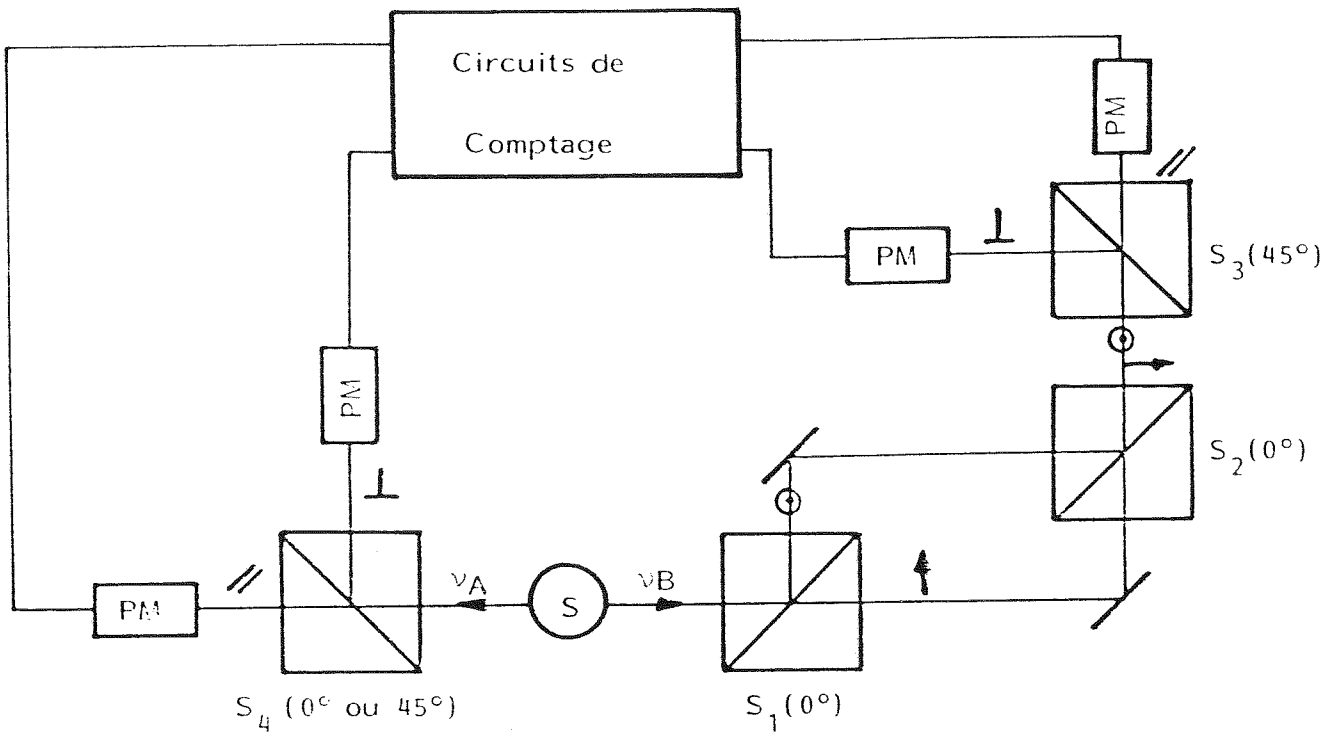


Figure III-19 : Expérience de pensée (réalisable), destinée à identifier le chemin suivi dans l'interféromètre (lorsque le séparateur de polarisation S_4 est parallèle à S_1 et S_2), ou à observer les interférences (lorsque S_4 est parallèle à S_3) (voir texte).

Nous avons démontré dans d'autres travaux[26, 41, 60] que les deux photons ν_A, ν_B émis par notre cascade sont très fortement corrélés en polarisation. Nous allons ici utiliser cette propriété pour tenter de savoir "par quel chemin est passé le photon". Le dispositif expérimental est schématisé sur la Figure III-19. On suppose que les deux séparatrices S_1 et S_2 de l'interféromètre de Mach-Zehnder sont des séparateurs de polarisation. Le faisceau incident est ainsi divisé en ses deux composantes de polarisation, qui émergent toutes deux sur la même voie de l'interféromètre (ce dispositif est équivalent à une lame biréfringente à différence de marche variable). Pour observer les interférences, il faut utiliser un troisième séparateur de polarisation S_3, orienté à 45° des précédents : on obtient ainsi les deux sorties complé-

../..

mentaires du Mach-Zehnder, modulées en opposition de phase lorsque la différence de marche varie, à condition que le faisceau incident soit convenablement polarisé.

Le photon ν_A provoquant le déclenchement des portes est lui-même détecté à travers un séparateur de polarisation S_4, possédant deux voies de sorties que nous noterons "//" et "$\perp$". Nous supposerons que l'on peut choisir arbitairement l'orientation de S_4, soit suivant celle de S_1 et S_2, soit suivant celle de S_3. La fin du raisonnement est alors évidente :

- si l'on choisit l'orientation de S_4 suivant celles de S_1 et S_2, le fait de détecter ν_A sur une des deux sorties // ou $\perp$ indiquera quel chemin (// ou $\perp$ dans l'interféromètre) est suivi par ν_B ; par contre, il n'y aura pas d'interférences, c'est-à-dire que ν_B sera détecté aléatoirement sur l'une des deux sorties de S_3, indépendamment de la différence de marche dans l'interféromètre.

- si l'on choisit l'orientation de S_4 suivant celle de S_3, on n'obtiendra pas d'information sur le chemin suivi, mais on pourra observer les interférences en sortie de S_3, c'est-à-dire que la détection de ν_B sur la voie // ou $\perp$ de S_3 sera controlée par la différence de marche de l'interféromètre.

Remarques :

- En choisissant des trajets optiques appropriés, c'est-à-dire en plaçant S_1 et S_2 très près de la source et S_3, S_4 éloignés, le choix de l'orientation de S_4 peut être fait après la traversée de S_1, S_2 par ν_B ; on peut donc travailler en "choix retardé" ("delayed-choice"[53]).

- La "qualité" de l'information obtenue lorsque S_4 est orienté suivant S_1, S_2 peut être testée en plaçant les photodétecteurs immédiatement après S_1 : on obtient ainsi un taux de détection "croisé" entre les sorties // de S_1 et $\perp$ de S_4 (ou l'inverse) extrèmement faible[60].

On peut bien sûr choisir l'orientation de S_4 arbitrairement entre celle de (S_1, S_2) et celle de S_3 : on obtient ainsi un passage "continu" entre les deux types de comportements. Il est intéressant de donner un caractère plus quantitatif à ces affirmations, en supposant tous les séparateurs de polarisation parfaits (ce qui ne serait pas le cas dans une expérience réelle). On peut alors définir les quantités :

$$P_c = \frac{\mathcal{I}(S_4// \; ; \; S_1//) - \mathcal{I}(S_4// \; ; \; S_1{}^{\perp})}{\mathcal{I}(S_4// \; ; \; S_1//) + \mathcal{I}(S_4// \; ; \; S_1{}^{\perp})} \qquad \text{(III-22)}$$

../..

où les $\mathcal{P}$ représentent les probabilités des évènements indiqués dans la parenthèse. $|P_c|$ vaut 1 lorsque l'on sait par quelle voie est passé le photon, et 0 lorsque les deux chemins sont équiprobables. On définit ensuite :

$$\mathcal{C} = \mathrm{Max}_{\delta} \frac{\mathcal{P}(S_4// \ ; \ S_3//) - \mathcal{P}(S_4// \ ; \ S_3 \ )}{\mathcal{P}(S_4// \ ; \ S_3//) + \mathcal{P}(S_4// \ ; \ S_3 \ )} \qquad \text{(III-23)}$$

où Max_{δ} signifie valeur maximum lorsque la différence de marche δ varie ; $\mathcal{C}$ est bien sûr une mesure du contraste des interférences.

Des calculs très simples permettent de démontrer les relations suivantes, où Θ est l'angle relatif entre S_4 et S_1 (Θ vaut 0 pour $S_4// \ S_1$, et 45° pour $S_4// S_3$) :

$$\mathcal{P}(S_4// \ ; \ S_1//) = \frac{1}{2} (1 + \cos 2\Theta) \qquad \text{(III-24-a)}$$

$$\mathcal{P}(S_4// \ ; \ S_1\perp) = \frac{1}{2} (1 - \cos 2\Theta) \qquad \text{(III-24-b)}$$

$$\mathcal{P}(S_4// \ ; \ S_3//) = \frac{1}{2} (1 + \sin 2\Theta \cos\delta) \qquad \text{(III-24-c)}$$

$$\mathcal{P}(S_4// \ ; \ S_3\perp) = \frac{1}{2} (1 - \sin 2\Theta \cos\delta) \qquad \text{(III-24-d)}$$

On obtient alors :

$$P_c = |\cos 2\Theta| \qquad \mathcal{C} = |\sin 2\Theta| \qquad \text{(III-25)}$$

Ces fonctions sont représentées sur la Figure III-20, entre 0 et 45° ; remarquons que lorsque l'on identifie le chemin suivi avec une probabilité de 0.95 ($|P_c| = 0.9$), le contraste des interférences est encore supérieur à 0.4. Nous allons démontrer dans le paragraphe suivant une relation d'incertitude reliant $\mathcal{C}$ et P_c dans le cas général ; cette relation s'écrit :

$$\mathcal{C} \leq \sqrt{1 - P_c^{\,2}} \qquad \text{(III-26)}$$

../..

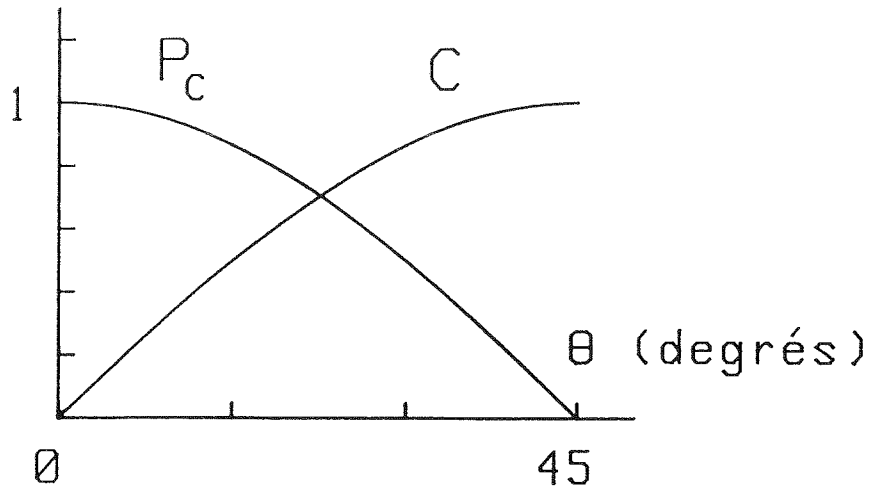


Figure III-20 : Valeurs des quantités P_C , caractérisant la connaissance du chemin suivi dans l'interféromètre, et $\mathcal{C}$, caractérisant le contraste des franges, lorsque l'orientation de S_4 varie. On passe ainsi d'une situation où on identifie avec certitude, le chemin suivi ($P_C = 1$, $\mathcal{C} = 0$) à un situation où on observe des interférences de contraste égal à un ($P_C = 0$, $\mathcal{C} = 1$).

Dans notre configuration spécifique, l'égalité est atteinte pour toute valeur de Θ ; notre "expérience de pensée" extrait donc dans chaque cas le maximum d'information autorisé par la Mécanique Quantique.

Remarques :

- Dans une expérience réelle, il faudrait prendre en compte les taux de transmission et d'extinction des séparateurs de polarisation utilisés. En utilisant les "cubes séparateurs" décrits dans le chapitre IV, et utilisés dans nos expériences de corrélation de polarisation[60], et en remplaçant S_1 et S_2 par une lame biréfringente supposés parfaite, on obtient[41] :

$$P_C = 0.955\ |\cos 2\Theta| \qquad \mathcal{C} = 0.955\ |\sin 2\Theta|$$

Pour ces valeurs, $\mathcal{C}$ est toujours strictement inférieur à $\sqrt{1 - P_C^2}$.

- Le raisonnement présenté dans ce paragraphe ne teste évidemment que la cohérence globale de la théorie quantique. Nous utilisons en effet, un résultat quantique (la corrélation de polarisation) pour mettre à l'épreuve un concept quantique (la dualité onde/corpuscule). On peut cependant montrer que l'inégalité (III-26) est

../..

valable quelle que soit la méthode utilisée pour tenter d'identifier le "chemin suivi"[59]. *Une démonstration voisine de celle de la référence 59 est proposée dans le paragraphe suivant.*

c) Inégalité générale reliant $\mathcal{C}$ et P_c

Différents dispositifs peuvent-être imaginés pour tenter de "localiser" un photon dans un bras de l'interféromètre : citons par exemple les "duplicateurs de photons"[59,61] ou les "mesures quantiques non-destructives" (QND)[62]. De façon générale, considérons les deux dispositifs de la Figure III-21 (a) et (b) ; les éléments en pointillés représentant des dispositifs que l'on peut insérer dans les bras de l'interféromètre, afin de "repérer" le passage d'un photon. Nous supposerons qu'à la sortie de ces dispositifs (c'est-à-dire juste avant la deuxième lame séparatrice), le champ est décrit par un état $|\psi\rangle$ ou une matrice densité ρ, qui peut éventuellement être "conditionnée" par le résultat d'une mesure effectuée par les dispositifs (on effectue alors des mesures de corrélations). Les deux configurations (a) et (b) correspondent à la possibilité d'insérer ou non une lame semi-réfléchissante pour recombiner les deux faisceaux. Nous supposerons que les champs E_1^+ et E_2^+ lorsque la lame est présente sont reliés à E_T^+ et E_R^+ par la transformation unitaire :

$$E_1^+ = \frac{1}{\sqrt{2}} (E_T^+ + E_R^+)$$

(III-27)

$$E_2^+ = \frac{1}{\sqrt{2}} (- E_T^+ + E_R^+)$$

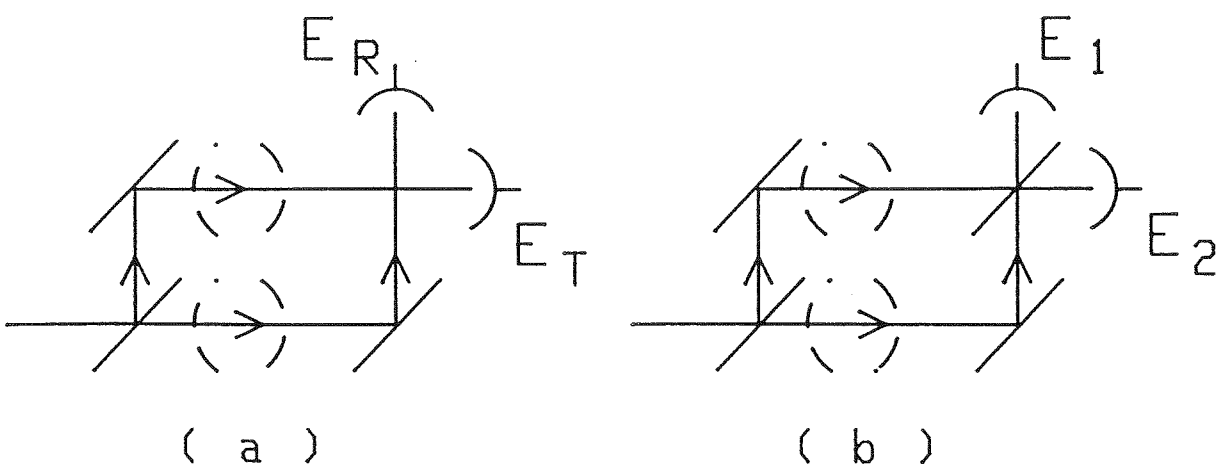


Figure III-21 : Exemple d'expériences "complémentaires" discuté dans le texte la configuration (a) correspond à l'identification du chemin suivi, et la configuration (b) à l'observation des interférences.

Les probabilités de détection dans les différentes configurations sont alors données par :

$$p_R = \langle E_R^- E_R^+ \rangle \qquad p_T = \langle E_T^- E_T^+ \rangle \tag{III-28-a}$$

$$p_1 = \langle E_1^- E_1^+ \rangle = \frac{1}{2} (p_R + p_T + \langle E_R^- E_T^+ + E_T^- E_R^+ \rangle) \tag{III-28-b}$$

$$p_2 = \langle E_2^- E_2^+ \rangle = \frac{1}{2} (p_R + p_T - \langle E_R^- E_T^+ + E_T^- E_R^+ \rangle)$$

La connaissance du "chemin suivi" dans l'interféromètre peut alors être caractérisée par la quantité :

$$P_c = \frac{p_T - p_R}{p_T + p_R} \tag{III-29}$$

P_c vaut 0 lorsque les deux sorties R et T sont équiprobables, et 1 si une seule sortie est possible. De même, le contraste des franges est donné par :

$$\mathcal{C} = \text{Max}_\delta \frac{p_1 - p_2}{p_1 + p_2} \tag{III-30}$$

$$\mathcal{C} = \text{Max}_\delta \frac{|\langle E_R^- E_T^+ + E_T^- E_R^+ \rangle|}{p_R + p_T} \tag{III-31}$$

Utilisons alors la relation, valable quelques soit λ et μ réels :

$$\langle (\lambda E_T^- + \mu E_R^-)(\lambda E_T^+ + \mu E_R^+) \rangle \geq 0$$

Par un raisonnement analogue à la démonstration d'une inégalité de Cauchy-Schwartz (§ II-A), on obtient :

$$|\langle E_R^- E_T^+ + E_T^- E_R^+ \rangle|^2 \leq 4 \langle E_T^- E_T^+ \rangle \langle E_R^- E_R^+ \rangle$$

../..

d'où on déduit :

$$\mathcal{C} \leq 2 \sqrt{p_R\, p_T}/(p_R + p_T)$$

En utilisant l'identité :

$$4\, p_R\, p_T = (p_R + p_T)^2 - (p_R - p_T)^2$$

on obtient finalement :

$$\mathcal{C} \leq \sqrt{1 - P_c^{\,2}} \qquad \text{(III-32)}$$

L'inégalité reliant $\mathcal{C}$ et P_c apparait donc simplement comme conséquence du fait que pour observer des interférences, il faut mélanger les champs entrants $E_T^{\,+}$ et $E_R^{\,+}$; lorsque $|P_c| = 1$, on a $p_R = 0$, ou $p_T = 0$, c'est-à-dire, une probabilité de détection nulle dans un des bras de l'interféromètre : il n'est donc pas surprenant que le contraste des franges soit alors égal à zéro. Au contraire, les franges d'interférences ne peuvent apparaitre que lorsque p_R et p_T sont tous deux non nuls, c'est-à-dire, lorsque la "connaissance du chemin suivi" n'est pas parfaite.

Remarque : Si on remplace les relations (III-27) par une transformation unitaire plus générale incluant des facteurs de réflexion et de transmission r et t différents, la relation (III-32) devient :

$$\mathcal{C} \leq \frac{(tr^* + rt^*)}{|t|^2 + |r|^2} \sqrt{1 - P_c^{\,2}} \qquad \textit{(III-33)}$$

Le coefficient supplémentaire étant inférieur à un, le contraste est dégradé lorsque $r \neq t \neq 1/\sqrt{2}$.

III-D-2 - Conclusion

Les expériences décrites dans les Chapitres II et III de ce mémoire sont bien sûr étroitement associées. L'originalité essentielle de ces expériences est qu'elles consistent alternativement en une mise en évidence d'une propriété spécifiquement quantique du champ électromagnétique, associée à un comportement corpusculaire

(l'effet d'anticorrélation), et en l'observation d'un effet d'interférence (associé à un comportement ondulatoire), les deux expériences utilisant la même source lumineuse. On peut donc dire que l'on a réalisé réellement des interférences à un seul photon, le sens de cette expression étant désormais clairement défini.

Nous avons également montré que notre dispositif se prête bien à la discussion d'une "expérience de pensée" dans laquelle on chercherait à réaliser un compromis entre l'observation des interférences et la possibilité de connaître le chemin suivi dans l'interféromètre ; le contraste $\mathcal{C}$ des franges et la "connaissance du chemin suivi" P_c sont alors reliés par l'inégalité :

$$\mathcal{C}^2 + P_c^{\,2} \leq 1$$

Remarquons enfin que l'on peut effectivement dire, suivant la formule célèbre de Dirac[64], qu'un photon unique interfère avec lui-même, dans le sens où la détection de ce photon dans l'une ou l'autre des deux sorties de l'interféromètre est contrôlée par le réglage de la différence de marche. Cependant, l'observation de "franges" d'interférences correspond nécessairement à un grand nombre de détections, pour des valeurs variables de la différence de marche. La figure III-22 illustre l'apparition progressive d'un tel système de franges, lorsque le temps de comptage augmente. Remarquons que des figures équivalentes pourraient être obtenues en lumière atténuée ; mais le résultat présenté ici a été obtenu pour une valeur du paramètre d'anticorrélation $\alpha = 0.18$, pour laquelle la lumière incidente dans l'interféromètre n'est plus descriptible en termes d'ondes classiques. La seule description cohérente de l'ensemble des phénomènes observés repose donc sur la notion d'interférences à un seul photon.

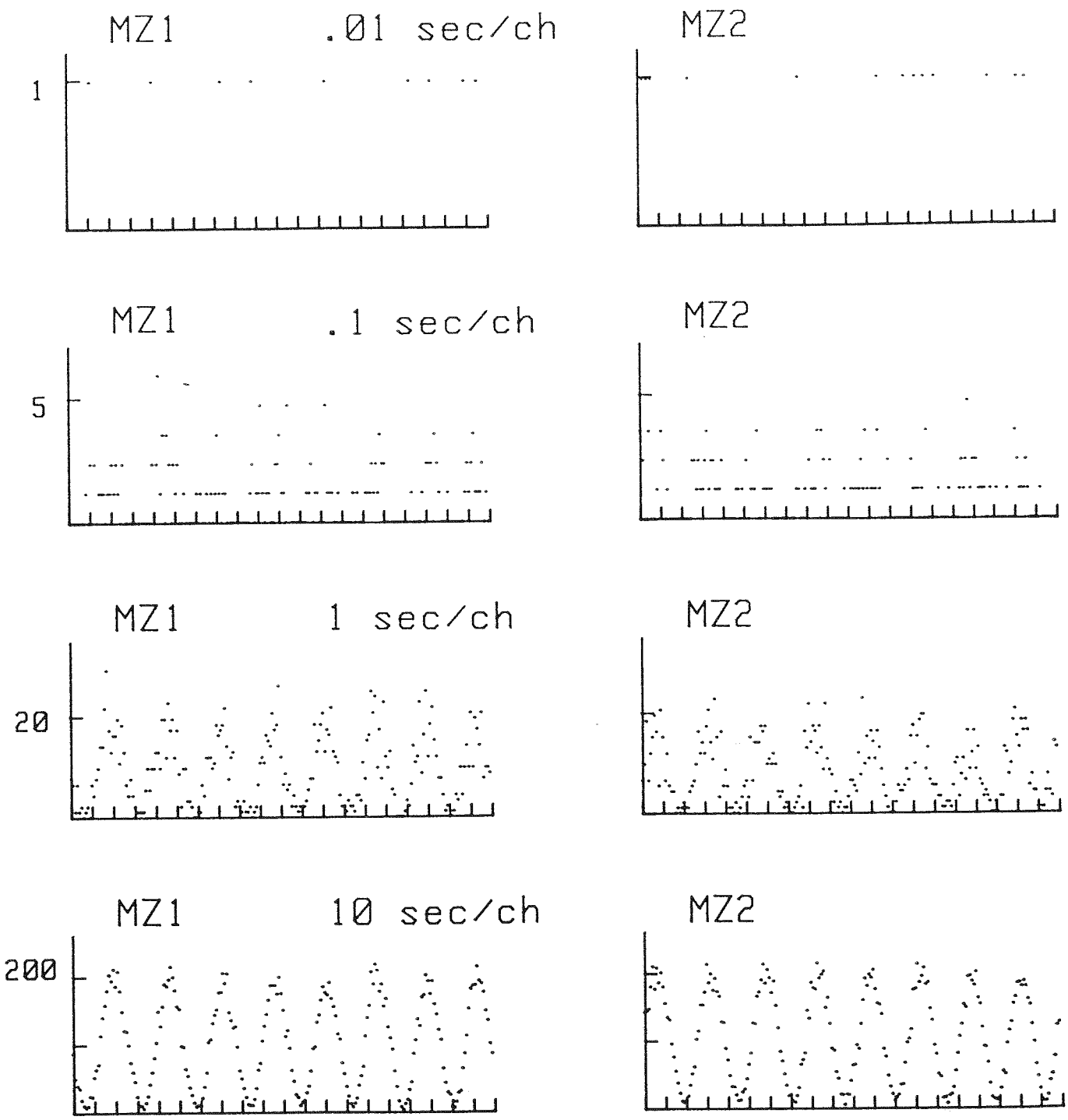


Figure III-22 : Enregistrement des franges d'interférences, pour plusieurs valeurs du temps de comptage. Un canal (échelle horizontale) correspond à une variation de la différence de marche d'environ $\lambda/25$; l'échelle verticale correspond aux nombres de coups comptés, pour les deux sorties complémentaires MZ1 et MZ2 de l'interféromètre de Mach-Zehnder. Le temps de comptage par canal est indiqué sur chaque figure.

Chapitre 4

BATTEMENTS QUANTIQUES DANS UNE CASCADE RADIATIVE EXCITEE DE FACON CONTINUE

Le phénomène de battements quantiques, observé lorsque l'on prépare un atome dans une superposition cohérente de plusieurs sous-niveaux non dégénérés, est associé à une interférence entre les différentes voies de désexcitation de l'atome. Les battements quantiques sont usuellement observés en envoyant sur l'atome une impulsion résonnante suffisamment courte, qui prépare la superposition cohérente, et en observant la modulation de la lumière de fluorescence aux fréquences de Bohr associées aux sous-niveaux excités[65,66].

Nous avons vu dans le premier chapître que notre cascade atomique permet de préparer une telle superposition cohérente en utilisant des lasers excitateurs continus ; c'est après la détection du premier photon de la cascade que le champ est décrit par un état quantique dans lequel plusieurs modes du champ (correspondant aux sous-niveaux excités) sont occupés de façon cohérente par un seul photon.

Nous allons décrire dans ce chapître l'observation expérimentale de cet effet d'interférence, qui apparaît comme une modulation temporelle (avec τ) de la probabilité $P(\nu_A : t, \nu_B : t + \tau)$ de détecter le photon ν_A à l'instant t et le photon ν_B à l'instant $(t + \tau)$. Le contraste et la phase de cette modulation dépendent fortement de l'orientation du champ magnétique qui lève la dégénérescence du niveau atomique, ainsi que de l'orientation des polariseurs placés devant les détecteurs ; nous discuterons donc les différentes configurations possibles, et nous présenterons une interprétation physique simple des résultats expérimentaux dans plusieurs situations effectivement réalisées.

Enfin, quelques questions reliées à l'interprétation des phénomènes de battements quantiques seront discutés dans le dernier paragraphe de ce Chapître.

IV-A - DESCRIPTION DE L'EXPERIENCE

Ce paragraphe est divisé en deux parties. Les configurations utilisées et les résultats obtenus sont présentés dans le § IV-A-1, tandis que le § IV-A-2 est consacré à une description plus détaillée des paramètres expérimentaux, permettant d'obtenir l'accord quantitatif mis en évidence dans le premier paragraphe. Le calcul complet du signal observé est effectué dans l'Annexe I.

IV-A-1 - Configurations utilisées

a) Introduction

La situation expérimentale considérée dans ce chapître est schématisée sur la Figure IV-1 : la cascade $4p^2\ ^1S_0 \rightarrow 4s\ 4p\ ^1P_1 \rightarrow 4s^2\ ^1S_0$ du Calcium 40 est excitée par un processus à deux photons, et on mesure la probabilité $P(\nu_A : t,\ \nu_B : t + \tau)$ de détecter les deux photons ν_A et ν_B séparés d'un intervalle de temps τ, lorsque la dégénérescence du niveau intermédiaire (J = 1) est levée par un champ magnétique.

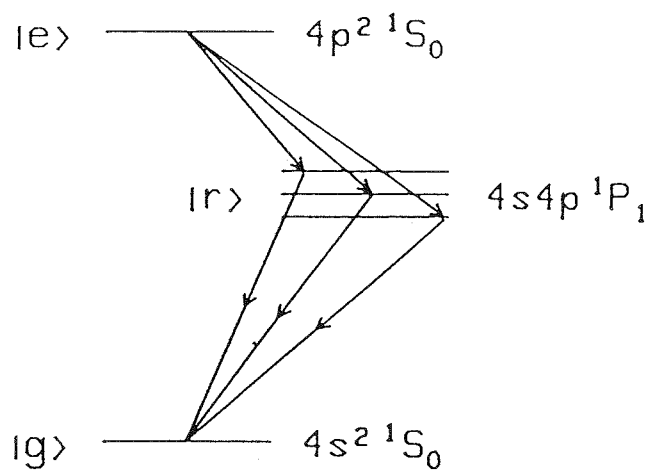


Figure IV-1 : Interférences dans la désexcitation d'une cascade radiative. La dégénérescence du niveau |r⟩ est levée par un champ magnétique.

Cette probabilité a été calculée au § I-B et nous avons obtenu le signal de corrélation suivant, pour des angles solides de détection infinitésimaux et des

../..

polarisations de détection $\vec{\varepsilon}_A$, $\vec{\varepsilon}_B$:

$$P(\nu_A : t,\ \nu_B : t+\tau) = \left|(\varepsilon_{xA}\ \varepsilon_{xB} + \varepsilon_{yA}\ \varepsilon_{yB})\cos\omega_z\,\tau + (\varepsilon_{xA}\ \varepsilon_{yB} - \varepsilon_{yA}\ \varepsilon_{xB})\sin\omega_Z\,\tau + \varepsilon_{zA}\ \varepsilon_{zB}\right|^2 H(\tau)\ e^{-\Gamma_r\tau} \qquad \text{(IV-1)}$$

où ω_Z est l'intervalle de fréquence entre sous-niveaux Zeeman, et l'axe Oz correspond à la direction du champ magnétique.

En l'absence du champ magnétique, on obtient le résultat très simple :

$$P(\nu_A : t,\ \nu_B : t+\tau) = (\vec{\varepsilon}_A \cdot \vec{\varepsilon}_B)^2\ H(\tau)\ e^{-\Gamma_r\tau} \qquad \text{(IV-2)}$$

(la constante multiplicative a été omise).

Nous considérons en particulier deux cas limites de l'expression IV-1. Dans le premier cas (Fig. IV-2 (a)), les directions de détection sont alignées suivant l'axe Oz, et les orientations des polariseurs sont repérés par les angles ϕ_A et ϕ_B dans le plan xOy. En notant P_z la probabilité correspondante, on obtient :

$$P_z(\tau) = \cos^2(\omega_Z\,\tau - (\phi_A - \phi_B))\ H(\tau)\ e^{-\Gamma_r\tau} \qquad \text{(IV-3)}$$

La phase des battements dépend donc de l'angle relatif des polariseurs.

Dans le deuxième cas, (Fig. IV-2 (b)) les directions de détection sont alignées suivant l'axe Ox, et les orientations des polariseurs sont repérés par les angles θ_A et θ_B dans le plan zOy. En notant P_x la probabilité correspondante, on obtient :

$$P_x(\tau) = (\sin\theta_A \sin\theta_B \cos\omega_Z\tau + \cos\theta_A \cos\theta_B)^2\ H(\tau)\ e^{-\Gamma_r\tau} \qquad \text{(IV-4)}$$

Remarquons que pour $\theta_A = \theta_B = 0$, il n'y a plus de battements, et que pour $\theta_A = 0$ et $\theta_B = 90°$ (ou l'inverse) il n'y a plus de signal.

../..

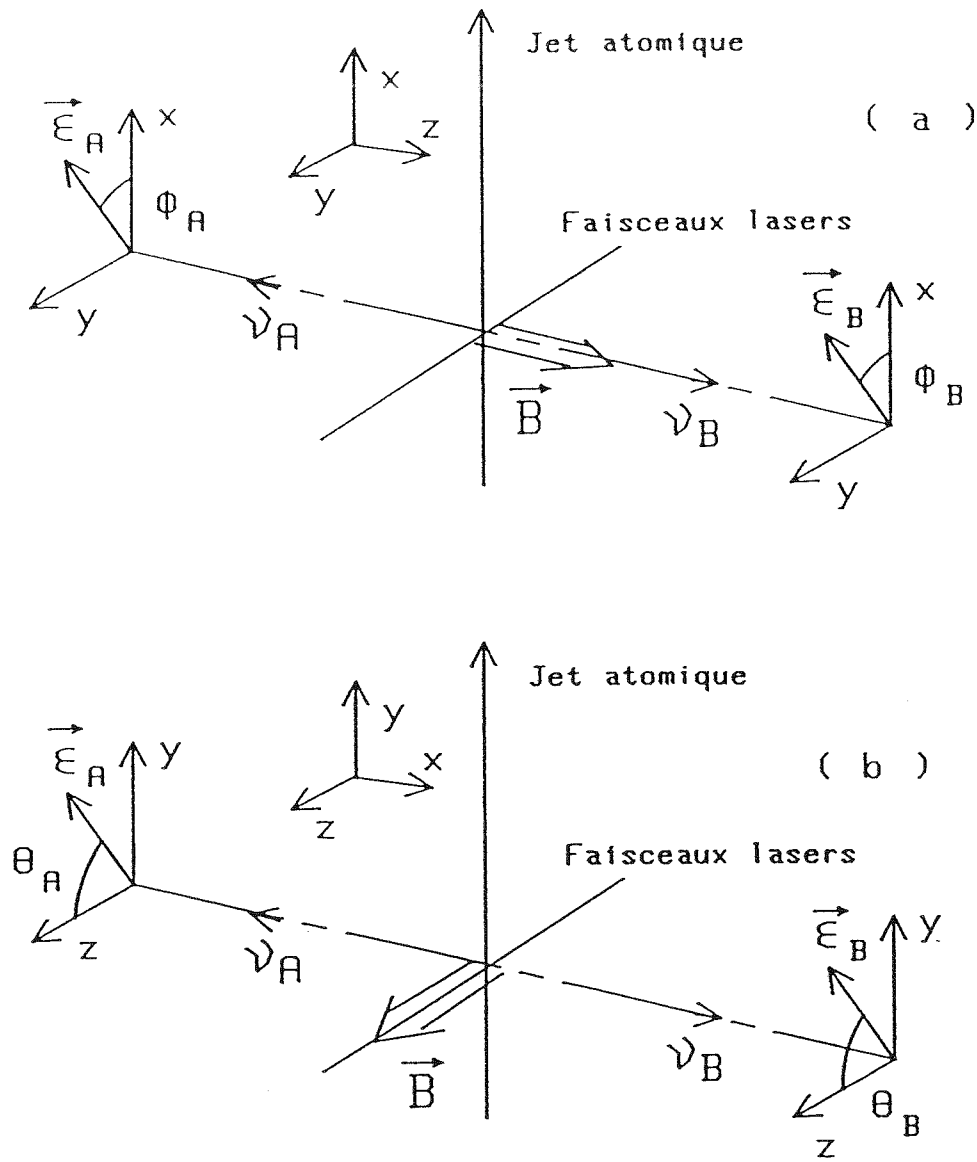


Figure IV-2 : Configurations étudiées. Dans le cas (a), le champ magnétique est orienté suivant les directions de détection. Dans le cas (b), le champ est perpendiculaire à ces directions. L'axe Oz demeure par convention parallèle au champ magnétique.

b) Interprétation simple des signaux calculés

Ces divers résultats ont en fait une interprétation simple et synthétique, si l'on se réfère à une image de battements quantiques. La détection de ν_A "prépare" un dipôle atomique orienté suivant $\vec{\varepsilon}_A$, qui va ensuite évoluer dans le champ

../..

magnétique par un simple mouvement de précession du moment magnétique orbital (le moment magnétique de spin étant toujours égal à 0).

Dans le cas de la Figure IV-2 (a), le dipôle atomique est créé suivant ϕ_A et tourne autour de Oz à la fréquence ω_Z ; la probabilité de le trouver suivant ϕ_B à l'instant τ est donc évidemment donné par l'eq. IV-3.

Dans le cas de la Figure IV-2 (b), on peut considérer par exemple deux situations particulières :

- $\vec{\varepsilon}_A$ parallèle à Oz : le dipôle est parallèle à $\vec{B}$ et n'évolue pas, il n'y a donc pas de battements si $\vec{\varepsilon}_B$ est parallèle à Oz, et pas de signal si $\vec{\varepsilon}_B$ est parallèle à Oy.

- $\vec{\varepsilon}_A$ parallèle à Oy : la rotation du dipôle s'effectue dans le plan xOy, ce qui fait apparaitre un terme en $\cos^2\omega_Z \tau$ si $\vec{\varepsilon}_B$ est parallèle à Oy ; il n'y a pas de signal si $\vec{\varepsilon}_B$ est parallèle à Oz.

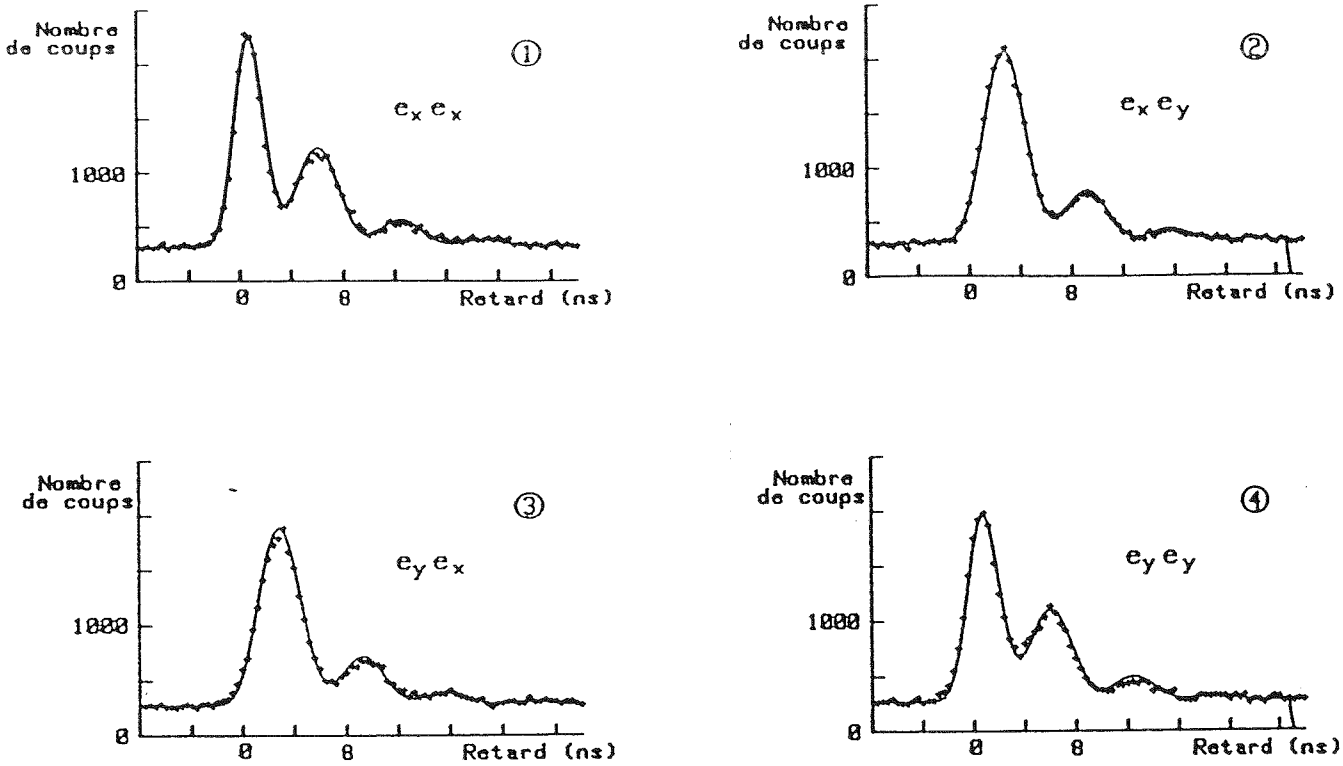
On retrouve dans ce cas précis l'équivalence entre le point de vue "battements quantiques" présenté dans ce paragraphe, et le point de vue "interférences entre chemins" qui correspond à l'interprétation physique des calculs effectués dans le § I-B, et conduisant à la formule IV-1.

c) Configurations expérimentales

Nous avons utilisé dans l'expérience réelle des polariseurs à deux voies de sorties, correspondant à deux polarisations orthogonales (voir § IV-A-2-b), et un système de comptage permettant d'obtenir simultanément les quatre spectres-temps de toutes les détections de paires (ν_A, ν_B). Dans le cas (a), les voies transmises des polariseurs correspondent à $\phi_A = \phi_B = 0$, et dans le cas (b) à $\Theta_A = \Theta_B = 90°$.

Les configurations expérimentales et les spectre-temps obtenus sont représentés sur les Figures IV-3 a et b. Les courbes en trait plein sont théoriques, mais prennent en compte l'effet des angles solides de collection, et la résolution finie de l'électronique, suivant une procédure qui sera discutée dans le paragraphe suivant.

L'accord entre les résultats expérimentaux et les calculs effectués est donc très bon ; en particulier, le contraste des battements observés est bien reproduit, alors que notre calcul ne prend pas en compte l'effet Faraday, qui pourrait être à l'origine d'une dépolarisation. Ces résultats confirment donc a postériori le



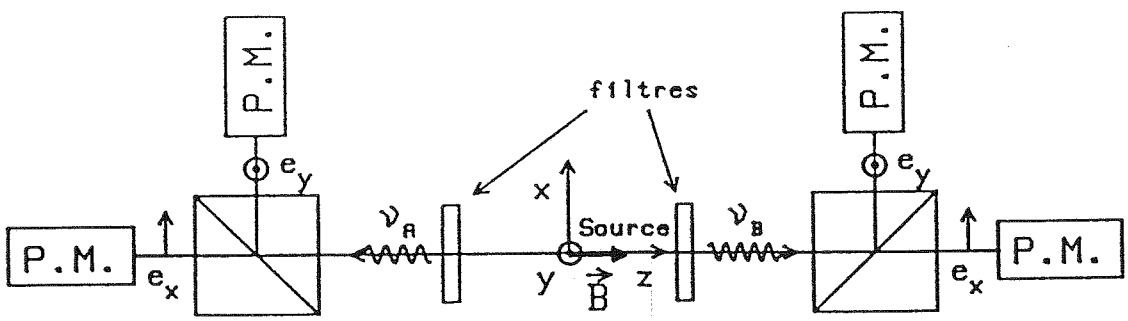


Figure IV-3-a : Comparaison des spectre-temps observés et des courbes théoriques, lorsque $\vec{B}$ est parallèle aux voies de détection. Les quadrants 1 à 4 correspondent aux couples de polarisation repérés sur le schéma par e_x et e_y.

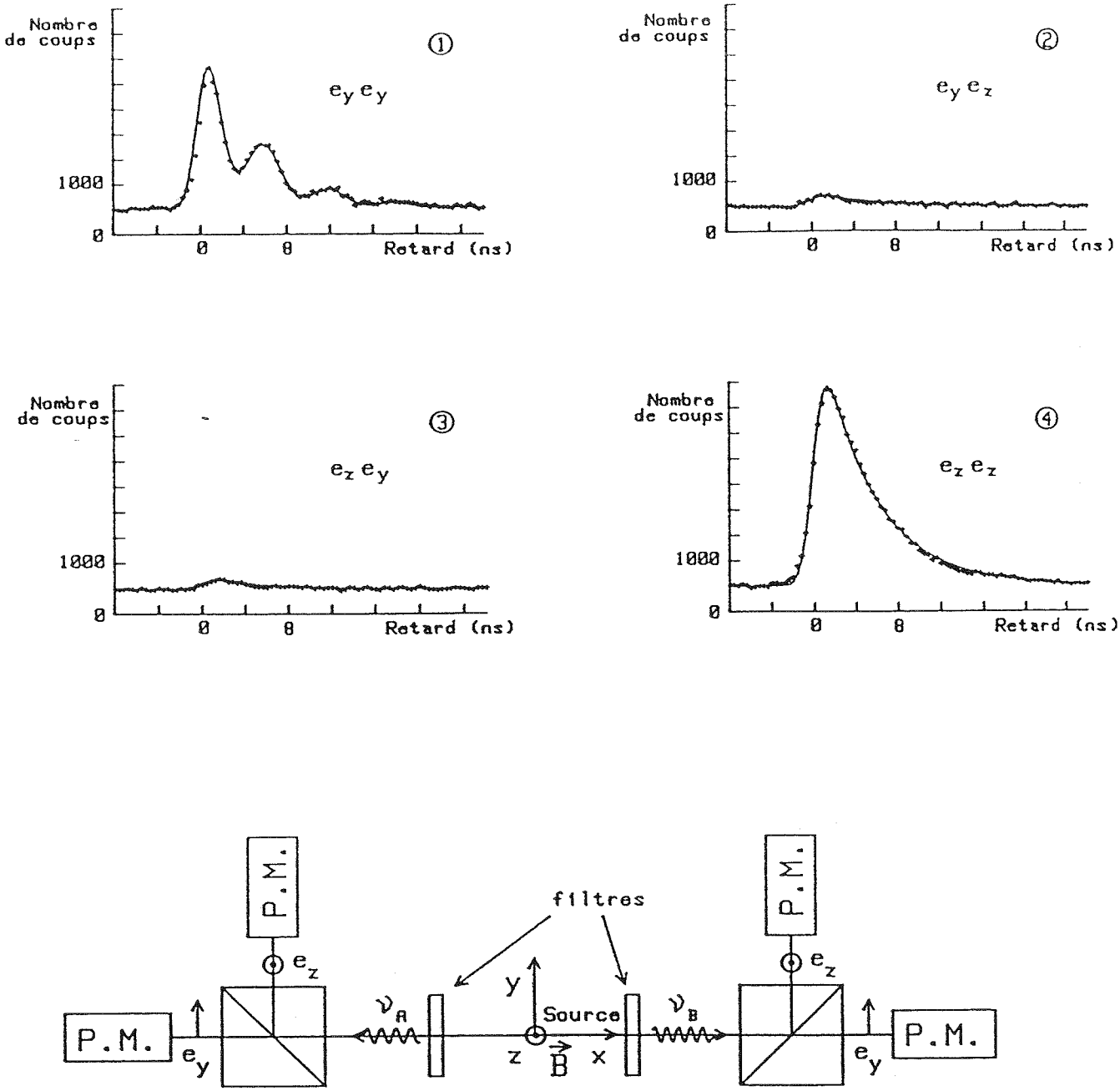


Figure IV-3-b : Comparaison des spectre-temps observés et des courbes théoriques, lorsque $\vec{B}$ est perpendiculaire aux voies de détection. Les quadrants 1 à 4 correspondent aux couples de polarisation repérés sur le schéma par e_y et e_z.

raisonnement du § II-D-1, qui nous avait conduit à la conclusion que la diffusion multiple résonnante ne jouait aucun rôle dans nos expériences.

d) Exploitation des données

Les courbes en trait plein de la Figure IV-3 résultent d'un ajustement sur les données expérimentales des expressions théoriques, tenant compte de l'optique de collection et du temps de résolution fini de l'électronique. Les paramètres libres sont l'instant origine (numéro du canal correspondant à $\tau = 0$) et la période de modulation. Le fond plat de coïncidences fortuites est estimé loin du pic de corrélation, et est ajouté au signal lors de l'ajustement.

En déterminant la valeur optimale de ω_Z pour chaque valeur du champ magnétique appliqué, on mesure directement le facteur de Landé du niveau 4s 4p $^1P_1$; on a obtenu :

$$g_J = 1.00 \pm 0.01 \qquad \text{(IV-5)}$$

ce qui est en accord avec la valeur théorique pour le niveau considéré, ainsi qu'avec d'autres mesures réalisées par une méthode de battements quantiques "conventionnels" (excitation pulsée)[66].

Remarque :

- La précision de cette mesure pourrait être considérablement améliorée en augmentant la résolution temporelle du système et en compensant le champ magnétique terrestre. Nous n'avons pas tenté d'apporter de telles améliorations, qui n'étaient pas indispensables pour la démonstration de l'effet de battement quantique.

Nous avons donc observé clairement les battements attendus. Remarquons que ce type d'effet, prédit depuis longtemps[67], a également été observé dans des cascades radiatives nucléaires[68]. Mais les expériences précédentes dans le domaine optique ont été soit infructueuses[25], soit d'un rapport signal/bruit très mauvais, à cause de signaux très faibles, donc de temps de comptage de plusieurs dizaines, ou même centaines d'heures[69]. Au contraire, les performances remarquables de notre source[26,41] (dues essentiellement à l'excitation laser de la cascade) nous ont permis d'observer les battements avec un excellent rapport signal/bruit, en quelques minutes de comptage. Ces conditions très favorables ont alors permis un test quantitatif des expressions théoriques.

../..

IV-A-2 - Paramètres expérimentaux

Ce paragraphe est consacré à une description plus précise des expériences réalisées, permettant d'aboutir à l'accord quantitatif apparent sur les courbes des Figures IV-3. Le schéma général de l'expérience est analogue à celui décrit au Chapitre II, et nous présenterons seulement les éléments pertinents pour la présente expérience.

a) Paramètres du jet atomique

La densité dans la zone source dans ces expériences est de l'ordre de $5\ 10^{10}$ at/cm^3. Dans notre configuration expérimentale, la diffusion multiple résonnante n'affecte pas de façon significative les corrélations de polarisation entre les photons ν_A et ν_B pour cette valeur de la densité (voir discussion dans le § II-D-1-c , et les références 26 et 70). En particulier, le rôle perturbateur éventuel de l'effet Faraday sera considéré comme négligeable.

Les lasers sont focalisés sur le jet avec un rayon à $1/e^2$ d'environ 30 µm ; le tableau IV-1 regroupe les valeurs des puissances laser et les ordres de grandeur des taux de comptages obtenus. Le taux d'excitation de la cascade est de l'ordre de $5\ 10^7\ s^{-1}$, ce qui correspond à un rapport entre le pic de corrélation et le fond de coïncidences fortuites environ égal à six. Dans ces conditions, des spectre-temps comme ceux des Figures IV-3 (a) et (b) sont obtenus en environ une heure de comptage.

P_{Dye}(mW)	P_{Kr}(mW)	$N_A(s^{-1})$	$N_B(s^{-1})$	$N_v(s^{-1})$	$N_f(s^{-1})$
30	100	10 000	20 000	4.5	3.5

Tableau IV-1 : Valeurs typiques des puissances lasers et des taux de comptage. N_A et N_B correspondent aux taux de comptages de ν_A et ν_B sur chaque sortie des polariseurs, et N_v, N_f aux taux de coïncidences vraies (signal de corrélation) et fortuites (fond plat) pour une fenêtre de 18 ns.

Le champ magnétique est obtenu à l'aide de deux bobines de 3.5 cm de diamètre, espacées de 3.1 cm, et situées dans l'enceinte à vide. Bien que des raisons d'encombrement empêche d'utiliser une configuration de Helmholtz, les défauts d'homogénéité du champ magnétique au niveau de la zone source (100 x 100 x 500 µm) sont très faibles. Les performances de la bobine ont été calculées numériquement, et

../..

le champ obtenu est de 31 Gauss/Ampère. Nous n'avons pas effectué de compensation du champ magnétique terrestre, qui perturbera légèrement les mesures pour les valeurs les plus faibles du champ appliqué.

b) Eléments optiques

Les photons ν_A, ν_B sont collectés par des lentilles asphériques de grande ouverture (f : 0,8, cône de demi-angle au sommet 32°). Ce grand angle solide de collection perturbe les corrélations temporelles, en mélangeant les différentes composantes de polarisation.

Le calcul détaillé est effectué dans l'Annexe I, et peut être mené à son terme analytiquement. Qualitativement, le résultat obtenu est une légère diminution du contraste des battements, et la réapparition d'un signal entre polariseurs croisés dans la configuration (b).

Afin de rendre compte quantitativement du contraste observé, on doit également prendre en compte les imperfections des polariseurs. Ceux-ci sont des cubes séparateurs de polarisation, formés à partir de deux prismes rectangles isocèles qui ont reçu sur leur face hypothénuse un traitement de 17 couches diélectriques. Les deux prismes sont ensuite collés pour reconstituer un cube, et ont reçu sur leurs faces d'entrée et de sortie des traitements antireflets.

Les performances de ces cubes sont caractérisés par les coefficients de réflexion et de transmission pour une lumière polarisée parallèlement ou perpendiculairement au plan d'incidence. Lorsque les voies de détections sont convenablement réglées, et qu'en particulier les rendements de détection des photomultiplicateurs sont correctement ajustés, on a :

$$T_A^{//} \cong R_A^{\perp} \cong 0.95 \pm 0.01 \qquad T_A^{\perp} \cong R_A^{//} \cong 0.007 \pm 0.005$$

$$T_B^{//} \cong R_B^{\perp} \cong 0.93 \pm 0.01 \qquad T_B^{\perp} \cong R_B^{//} \cong 0.007 \pm 0.005$$

où A et B correspondent respectivement aux deux longueurs d'ondes de travail 551.3 nm et 422.7 nm.

Finalement, la prise en compte de ces différents éléments permet d'obtenir les probabilités de détection suivantes, où nous avons notés par des indices supérieurs les directions d'analyse et par un indice inférieur la direction de détec-

tion (rappelons que $\vec{B}$ est toujours suivant O_z) :

. Configuration (a)

$$P_z^{xx} = P_z^{yy} = (1 + 0.955 \cos 2\omega_Z \tau)\, H(\tau)\, e^{-\Gamma_r \tau}$$

$$P_z^{xy} = P_z^{yx} = (1 - 0.955 \cos 2\omega_Z \tau)\, H(\tau)\, e^{-\Gamma_r \tau} \qquad \text{(IV-7-a)}$$

. Configuration (b)

$$P_x^{yy} = (1 + 0.73 \cos 2\omega_Z \tau)\, H(\tau)\, e^{-\Gamma_r \tau}$$

$$P_x^{yz} = P_x^{zy} = 0.01\,(1 - 0.58 \cos 2\omega_Z \tau)\, H(\tau)\, e^{-\Gamma_r \tau} \qquad \text{(IV-7-b)}$$

$$P_x^{zz} = 1.73\,(1 + 0.003 \cos 2\omega_Z \tau)\, H(\tau)\, e^{-\Gamma_r \tau}$$

où la constante multiplicative est arbitraire, mais reste inchangée pour les quatre cas de chaque configuration.

c) Electronique de comptage

Les mesures du spectre-temps sont faites suivant les principes exposés au Chapitre II. On utilise un seul CTA, associé à une logique d'identification des paires d'impulsions détectées ; chaque évènement est rangé suivant sa provenance dans un des quatre quadrants de l'analyseur multicanal. Comme nous l'avons déjà dit, la résolution temporelle de ce système est essentiellement limitée par la dispersion de temps de transit dans les photomultiplicateurs. On peut représenter la "réponse percussionnelle" du système par une gaussienne de largeur totale à mi-hauteur 2 ns. Cette valeur peut-être déduite des spectre-temps expérimentaux, mais sera obtenue plus directement au Chapitre V par l'analyse temporelle d'impulsions très courtes.

On peut alors considérer que les signaux expérimentaux résulteront de la convolution de cette gaussienne par les formules théoriques du paragraphe précédent ; comme nous l'avons déjà vu, l'accord théorie/expérience obtenu est excellent (Figure IV-3).

../..

Remarques :

- *Les modulations les plus rapides que l'on puisse espérer détecter avec ce système sont de l'ordre de 200 MHz, correspondant à un champ de l'ordre de 140 Gauss. Nous verrons au Chapitre V qu'il est possible de gagner un ordre de grandeur sur ces chiffres, en utilisant des photomultiplicateurs à galettes de micro-canaux dont nous ne disposions pas quand ces expériences ont été réalisées.*

- *Une des motivations de la présente expérience était l'insuccès d'une expérience analogue, réalisée en utilisant les corrélations temporelles entre les paires de photons de fréquences ($2\omega_L - \omega_o$, ω_o) émis dans les bandes latérales du triplet de fluorescence de résonance*[25,27]*. La détection du photon ($2\omega_L - \omega_o$) "prépare" une superposition linéaire des sous-niveaux Zeeman d'un niveau J = 1, de façon exactement similaire à la détection du photon ν_A de la cascade. L'accord théorie-expérience étant très bon dans le cas de la cascade, nous n'avons pas trouvé d'explication des problèmes rencontrés dans l'autre expérience, si ce n'est que pour les temps d'intégration très longs qui étaient nécessaires ($\sim$ 50 h), les dérives de l'électronique de comptage (moins performante à l'époque où cette expérience a été réalisée) provoquaient sans doute une dégradation supplémentaire du temps de résolution.*

IV-B - DISCUSSION

IV-B-1 - Battements quantiques et interférences

a) Introduction

Plusieurs travaux théoriques[71], ont été consacrés à une comparaison des prédictions quantiques et semi-classiques en ce qui concerne les battements quantiques "usuels", en régime d'excitation pulsée. Ces prédictions diffèrent considérablement, en particulier lorsqu'on considère le cas d'un atome diffuseur unique. En effet, la théorie quantique prédit des battements lorsque le niveau supérieur de la transition étudiée est non-dégénéré ; la non-dégénérescence du niveau inférieur ne peut pas à elle seule donner lieu à un signal de battement. Au contraire, la théorie semi-classique prédit qu'une non-dégénérescence de l'un des deux niveaux suffit à entrainer l'apparition d'une modulation dans le signal de fluorescence. Plutôt que de reproduire ces calculs ici, nous allons en donner une interprétation simple, basée sur le fait que le signal de battement est un signal d'interférence ; nous étendrons ensuite ce raisonnement à la situation expérimentale décrite dans le paragraphe précédent.

b) Battements quantiques et interférences (excitation pulsée)

Le calcul quantique du signal de battements[65] conduit directement à considérer ce signal comme le résultat d'une interférence entre les différents "chemins" de diffusion, associés aux sous-niveaux de l'état excité. Les sous-niveaux de l'état fondamental ne jouent aucun rôle dans le phénomène d'interférence proprement dit, car ce sont des "états finals orthogonaux" ; il faudra donc sommer les probabilités correspondant à ces états, alors qu'il faut sommer les amplitudes pour les sous-niveaux excités. En d'autres termes, le fait que l'atome soit laissé après l'interaction dans un sous-niveau particulier de l'état fondamental permet d'identifier le "chemin" conduisant à ce sous-niveau, ce qui exclut l'observation d'interférences.

c) Cas de la cascade

Dans notre configuration expérimentale, l'impulsion laser est remplacé par la détection du premier photon de la cascade. Il est aisé de vérifier que les battements n'apparaissent que si cette détection est faite de manière à rendre plusieurs chemins indiscernables. Par exemple, le quadrant 4 de la Figure IV-3-b correspond à une

../..

désexcitation via le seul niveau m = 0 : il n'y a pas d'interférences. Au contraire, les quatre quadrants de la Figure IV-3 (a) correspondent à des superpositions des états $|r, m = \pm 1\rangle$: les battements apparaissent clairement.

Remarque :

Si l'excitation de la cascade était pulsée, on pourrait espérer observer un signal de battement en détectant un seul des deux photons, par exemple ν_B. En fait, le raisonnement ci-dessus montre qu'il ne peut y avoir de battements sur le signal de photodétection simple, puisque l'information sur le chemin suivi est accessible en principe en effectuant une mesure d'énergie ou de polarisation du photon ν_A. Remarquons que dans le cas d'un schéma de niveaux plus complexe que notre cascade $J_e = 0 \rightarrow J_r = 1 \rightarrow J_g = 0$, une mesure sur ν_A peut être insuffisante pour identifier le chemin suivi : les battements sur le signal d'intensité pourront alors être observés. Ce raisonnement élémentaire est en accord avec des études théoriques[72] et expérimentales[73] récentes de battements dans des cascades excitées par une impulsion laser.

IV-B-2 - Discussion et conclusion

a) "Gomme quantique" et "choix retardé"

Il a été proposé dans la littérature[74] un certain nombre d'expériences, désignées sous le nom de "quantum eraser experiments". Le principe de ces expériences est le suivant : un processus d'interaction crée un état quantique impliquant plusieurs chemins susceptibles d'interférer, dans des conditions où le chemin suivi pourrait être identifié en effectuant une mesure auxiliaire : on ne doit donc pas observer d'interférences. Cependant, si on "efface" l'information permettant d'identifier le chemin suivi, les interférences pourront réapparaitre.

Remarque : En pratique, ce raisonnement est applicable lorsque le signal d'interférence apparait sur une probabilité conditionnelle ; le choix d'observer ou d'effacer l'information relative au chemin suivi revient donc à modifier la "condition" de la mesure.

Notre situation expérimentale est évidemment très proche de ce schéma : les battements n'apparaitront dans l'état "préparé" par la détection de ν_A que si celle-ci est faite de façon à "effacer" l'information relative au chemin suivi. A titre d'exemple, considérons le cas où le champ magnétique est orienté suivant les voies de détection. Si on mesure la polarisation circulaire de ν_A, on pourra déterminer le sous-niveau Zeeman impliqué dans la désexcitation ; au contraire, une mesure de polarisation linéaire "détruit" cette information et permet l'apparition des interférences. Ce

raisonnement est directement relié aux effets de "gomme quantique" proposés dans la littérature[74].

Un autre argument souvent cité dans ce contexte est le "choix retardé" ("delayed choice") proposé par Wheeler[53]. Cet argument s'applique aux situations où un choix est possible entre, d'une part une information relative au chemin suivi, et d'autre part l'apparition d'un phénomène d'interférence ; dans l'expérience de battements quantiques, comme dans l'expérience d'interférences discutée dans le § III-D, ce choix s'effectue par l'orientation du polariseur placé devant le photomultiplicateur PMA. Le principe des "delayed-choice experiments" est d'effectuer ce choix <u>après</u> l'émission de ν_B (battements quantiques), ou <u>après</u> la traversée par ν_B de la première lame séparatrice (interféromètre). On se trouve alors dans une situation paradoxale <u>d'un point de vue classique</u>, puisque les deux "images classiques incompatibles" d'onde et de corpuscule doivent être maintenues simultanément, tant que le "choix" n'est pas effectué. Cette situation est, pour Wheeler, au coeur des difficultés conceptuelles que l'on peut éprouver face à la théorie quantique. Des expériences de ce type ont été réalisées récemment[52m,n], à partir d'impulsions lasers très atténuées. Il est aisé de se convaincre qu'une expérience réellement démonstrative devrait utiliser une source d'états à un seul photon", analogue à celle décrite dans ce travail.

b) <u>Conclusion</u>

Les nombreuses expériences de pensée que l'on peut concevoir autour de notre schéma expérimental montrent que celui-ci met en jeu plusieurs des propriétés physiques qui sont à la base de la théorie quantique : caractère non-local des états quantiques "non-factorisables", caractère "complémentaire" de l'existence des phénomènes d'interférences et de la connaissance du chemin suivi, et bien sûr propriétés "non-classiques" d'un photon unique.

Nous nous sommes attachés à obtenir des mises en évidence expérimentales très directe de certaines de ces propriétés, et à les accompagner de tests quantitatifs précis. Pour toutes les expériences réalisées, nous avons obtenu un très bon accord avec les prédictions quantiques : plus de cinquante ans après leur formulation, quelques unes des expériences "de pensée" qui ont accompagné le développement des concepts quantiques sont devenues des expériences réelles.

Chapitre 5

EFFET D'INTERFERENCE POUR DEUX ATOMES EMETTANT UN SEUL PHOTON.

Ce chapître est consacré à l'étude expérimentale et théorique d'un système différent de la cascade radiative considérée dans les chapîtres précédents. Il s'agit de deux atomes de Calcium, préparés dans un état quantique "non factorisable" par photodissociation d'une molécule Ca_2. Dans cet état, un seul quantum d'excitation est partagé entre les deux atomes, et on va observer un effet d'interférence associé aux deux "chemins" correspondant à l'émission par l'un ou l'autre atome. On va donc retrouver un effet d'interférence à un seul photon, qui présente certaines analogies avec une expérience de fentes d'Young "élémentaire" (deux atomes et un seul photon).

Contrairement au cas de la cascade, cette expérience ne donne pas lieu à un effet d'anticorrélation, car on ne dispose pas d'une information permettant de garantir qu'une seule molécule va être dissociée pendant un intervalle de temps donné. Nous montrerons néanmoins, par un argument relié à celui présenté dans le § II-D-3, que les théories quantiques et semi-classiques conduisent à des prédictions divergentes si l'on s'intéresse aux corrélations d'intensité de la lumière émise.

Dans la partie V-A, nous présenterons de façon élémentaire le principe de l'effet d'interférence et les résultats bruts de l'expérience. La partie V-B reprend un article, dans lequel nous effectuons le calcul quantique de l'effet d'interférence et analysons quantitativement les résultats obtenus.

V-A - PRINCIPE DE L'EXPERIENCE

V-A-1 - Contexte expérimental et théorique

a) Photodissociation de molécules Ca_2

A haute température, les atomes de Calcium présents dans le four de notre jet atomique forment des dimères Ca_2.

La présence de ces molécules dans le jet atomique a été mise en évidence en observant que l'irradiation du jet par un laser à 406 ou 413 nm, produisait un signal de fluorescence à 422.7 nm, longueur d'onde de résonance du calcium atomique. Ce signal étant en première approximation proportionnel au carré de la densité atomique, on a recherché un phénomène à deux corps compatible avec les ordres de grandeurs observés. Le seul processus possible s'est avéré être la photodissociation de molécules Ca_2, produisant un atome Ca excité dont la fluorescence était observée.

En étudiant ce signal de fluorescence et en particulier sa polarisation, il a été possible d'identifier les niveaux mis en jeu[75] : le niveau moléculaire excité est un niveau $^1\Pi_u$, correspondant asymptotiquement à un atome dans l'état fondamental $4s^2\ ^1S_o$ et un atome dans l'état excité $4s\ 4p\ ^1P_1$. De plus, la forte polarisation du signal de fluorescence ne peut s'interpréter que si cet état $^1P_1$ est en fait dans une superposition correspondant à un dipole excité perpendiculairement à l'axe interatomique de la molécule Ca_2[76].

Le schéma des niveaux mis en jeu est résumé sur la Figure V-1. Insistons sur le fait que cette configuration est la seule compatible avec l'ensemble des résultats expérimentaux obtenus (polarisation et variations d'intensité du signal de fluorescence avec la puissance du laser excitateur[76]).

b) Calcul semi-classique de l'effet d'interférence

L'état quantique décrivant les deux atomes après la photodissociation doit respecter la symétrie (u ou g) de l'état moléculaire initial. En notant $|e\rangle$ le sous-

(V-1)

../..

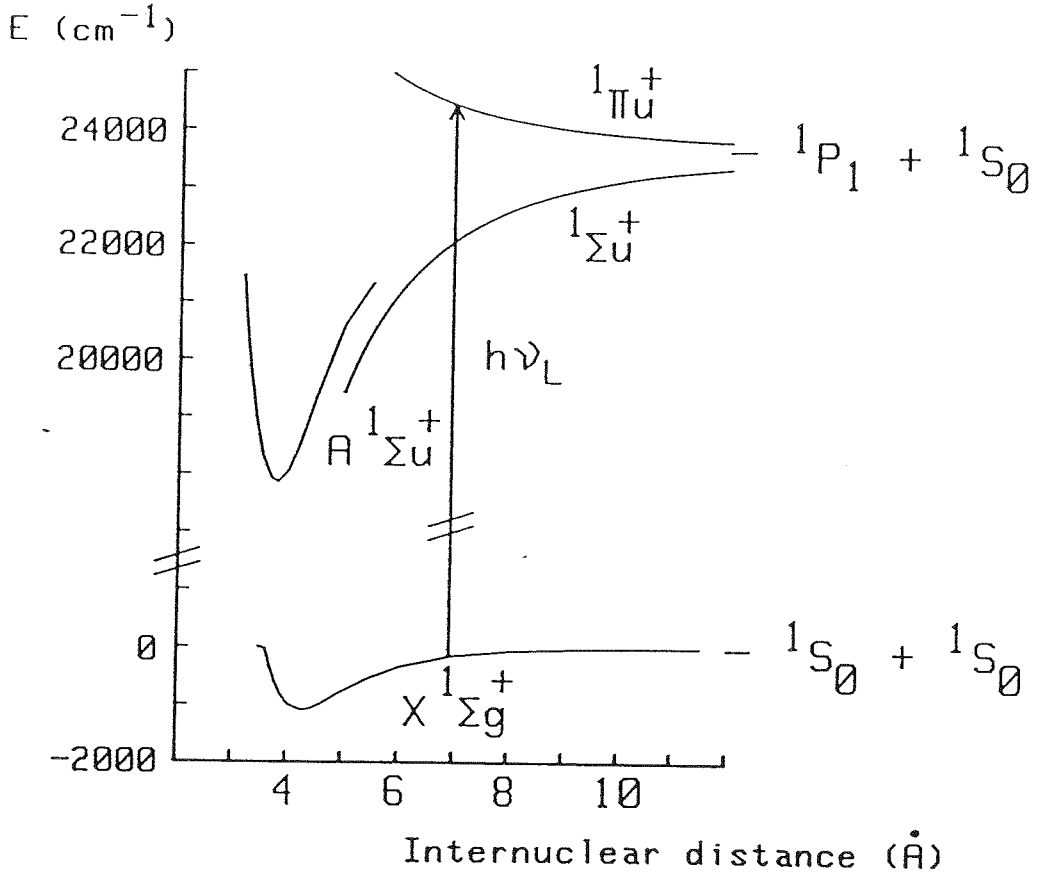


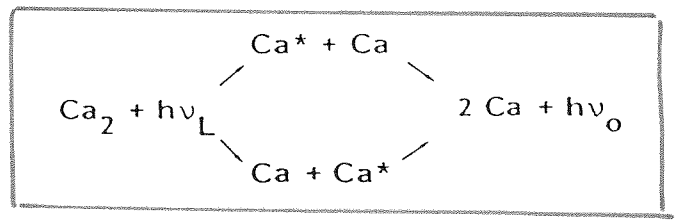
Figure V-1 : Schéma des niveaux de la molécule Ca_2 mis en jeu dans le processus de photodissociation. Les courbes notées A et X résultent de données spectroscopiques (V-B, Ref. 12), et les courbes notées $^1\Pi_u^+$ et $^1\Sigma_u^+$ sont calculées [76].

niveau excité du niveau $^1P_1$, et $|g\rangle$ l'état fondamental, l'état décrivant les degrés de libertés internes des deux atomes est donné par la relation :

$$|\psi_{at}\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} \left(|e_a\rangle\ |g_b\rangle + \varepsilon\ |g_a\rangle\ |e_b\rangle \right) \qquad (V\text{-}1)$$

../..

où a et b désignent les deux atomes, et ε est égal à $\pm$ 1 selon la symétrie u ou g de l'état moléculaire. Cet état décrit en fait l'existence de deux chemins possibles pour le processus photodissociation-fluorescence :



(V-2)

où Ca* désigne l'atome excité et $h\nu_L$, $h\nu_o$ représentent respectivement le photon laser et le photon de fluorescence. Ces deux chemins sont physiquement différents, puisque les deux atomes a et b sont séparés et s'éloignent dans des directions opposées.

En considérant "naïvement" que l'état $|\psi\rangle$ décrit deux sources cohérentes en mouvement, on peut prévoir l'existence d'interférences dans le processus décrit par les équations (V-1) et (V-2). Comme nous l'avons déjà vu plusieurs fois au cours de ce travail, un tel raisonnement revient à utiliser un modèle semi-classique du processus d'émission ; on peut donc s'attendre à un résultat correct pour le phénomène d'interférence lui-même, mais à des contradictions dans l'évaluation de propriétés du second ordre de l'intensité lumineuse.

Plus précisément, on peut considérer que l'intensité émise va inclure les contributions des deux dipôles a et b, dont les fréquences seront décalées par l'effet Doppler relatif à la direction d'observation Oz :

$$I(\tau) = \kappa \left| \exp\left\{ - i\omega_o \left(1 + \frac{v_z}{2c}\right) \tau - \frac{\phi_o}{2} \right\} + \exp\left\{ - i\omega_o \left(1 - \frac{v_z}{2c}\right) \tau + \frac{\phi_o}{2} \right\} \right|^2 e^{-\Gamma\tau}$$

$$= 2\kappa \left(1 + \cos(\Omega\tau + \phi_o)\right) \exp(-\Gamma\tau) \qquad \text{(V-3)}$$

où $\Omega = \frac{\omega_o v_z}{c}$. Dans cette expression, v_z représente la composante de la vitesse relative des deux atomes selon la direction d'observation Oz, et ϕ_o le déphasage initial des deux dipôles émetteurs. On peut montrer en utilisant l'expression de $|\psi_{at}\rangle$ que $\phi_o = 0$ pour $\varepsilon = 1$ et $\phi_o = \Pi$ pour $\varepsilon = -1$. La durée de vie $1/\Gamma$ est ici introduite phénoménologiquement et ne pourra être calculée que dans le cadre d'un modèle plus rigoureux (voir § V-B). L'interprétation correcte de l'éq. V-3 est que

../..

la probabilité de détection est modulée en fonction de τ, qui représente un temps retardé depuis l'instant de la photodissociation : cet instant pourra être déterminé expérimentalement si la photodissociation est effectuée par une impulsion laser de durée très inférieure à la période $2\Pi/\Omega$ de la modulation attendue.

c) Moyenne angulaire

La relation V-3 met en évidence une difficulté pour observer l'effet d'interférence. En effet, dans l'hypothèse où le module v de la vitesse relative des deux atomes est suffisamment bien déterminée par le processus de photodissociation, la fréquence $\Omega = \omega_o v_z/c$ peut prendre n'importe quelle valeur entre 0 et $\Omega_o = \omega_o v/c$, selon l'orientation de la vitesse $\vec{v}$ relativement à la direction d'observation.

Dans l'approximation de recul axial[76], la direction de $\vec{v}$ est simplement celle de l'axe moléculaire initial, dont la distribution est à priori isotrope ; on peut donc craindre que la moyenne angulaire sur les directions de $\vec{v}$ entraine la disparition de l'effet d'interférence. En fait, comme nous l'avons déjà dit, les effets de polarisation jouent un rôle important dans le processus de photodissociation, et vont effectuer une sélection angulaire, qui privilégiera certaines valeurs de Ω. Plus précisément, nous montrerons dans le § V-B que lorsqu'on place devant le détecteur un polariseur parallèle à la polarisation du laser (Fig. V-2), on favorise les directions de $\vec{v}$ parallèles à la direction d'observation. On sélectionne ainsi une bande de fréquences proches de Ω_o, et la dégradation du contraste de la modulation est réduite au minimum ; ce résultat est confirmé par le calcul exact pour les molécules Ca_2, correspondant à $\varepsilon = +1$ (Figure V-3).

Au contraire, les directions de $\vec{v}$ perpendiculaires à la direction d'observation sont favorisées lorsque le polariseur est dirigé selon Oy (Figure V-2). L'effet d'interférence se réduit alors à un pic au voisinage de $\tau = 0$ (Figure V-3).

Remarque :

Dans les deux configurations de polarisation, intervenant dans notre expérience ($\varepsilon = +1$), la valeur en $\tau = 0$ est double de ce qu'elle serait pour un atome unique ; ceci correspond au fait que l'interférence est constructive lorsque les deux atomes sont très proches. De plus, nous montrerons plus loin qu'au voisinage de $\tau = 0$ le facteur d'amortissement n'est pas $\exp(-\Gamma\tau)$ mais, $\exp(-2\Gamma\tau)$; l'ensemble de ces deux phénomènes correspond à une "superradiance" à deux atomes[77]. Au contraire, on aurait un effet de "subradiance" pour $\varepsilon = -1$.

../..

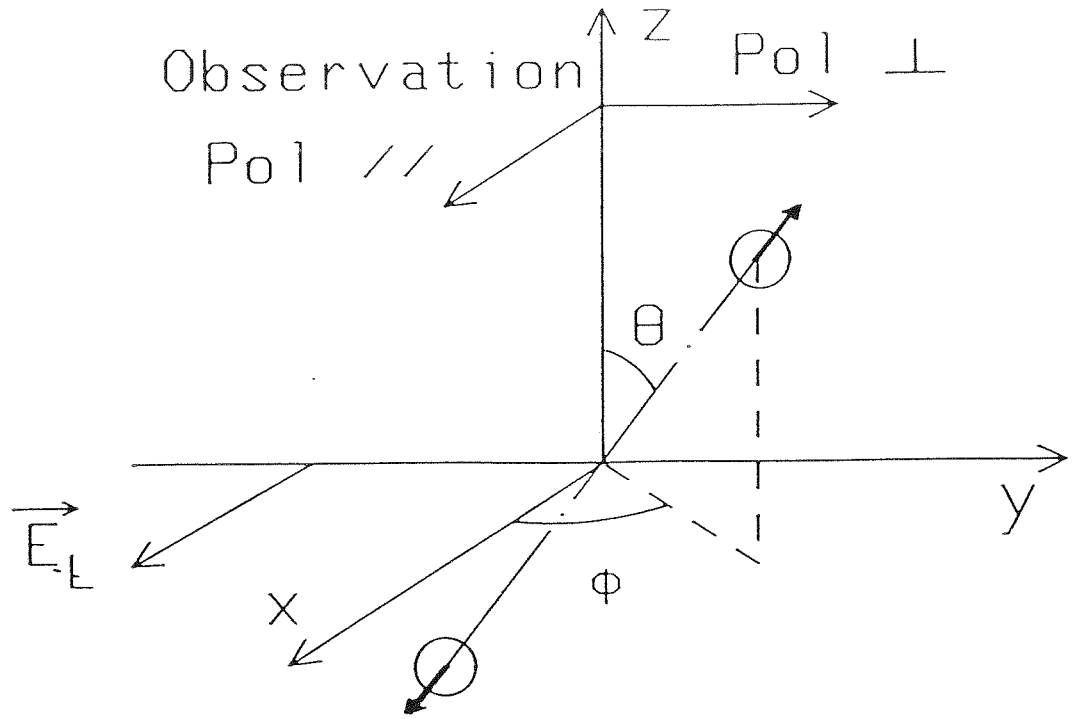


Figure V-2 : Schéma de la voie de détection. On peut placer un polariseur parallèlement (//) ou perpendiculairement (⊥) au champ $\vec{E}_L$ du laser. Les angles (θ , φ) repèrent la direction de la vitesse $\vec{v}$ de recul des atomes.

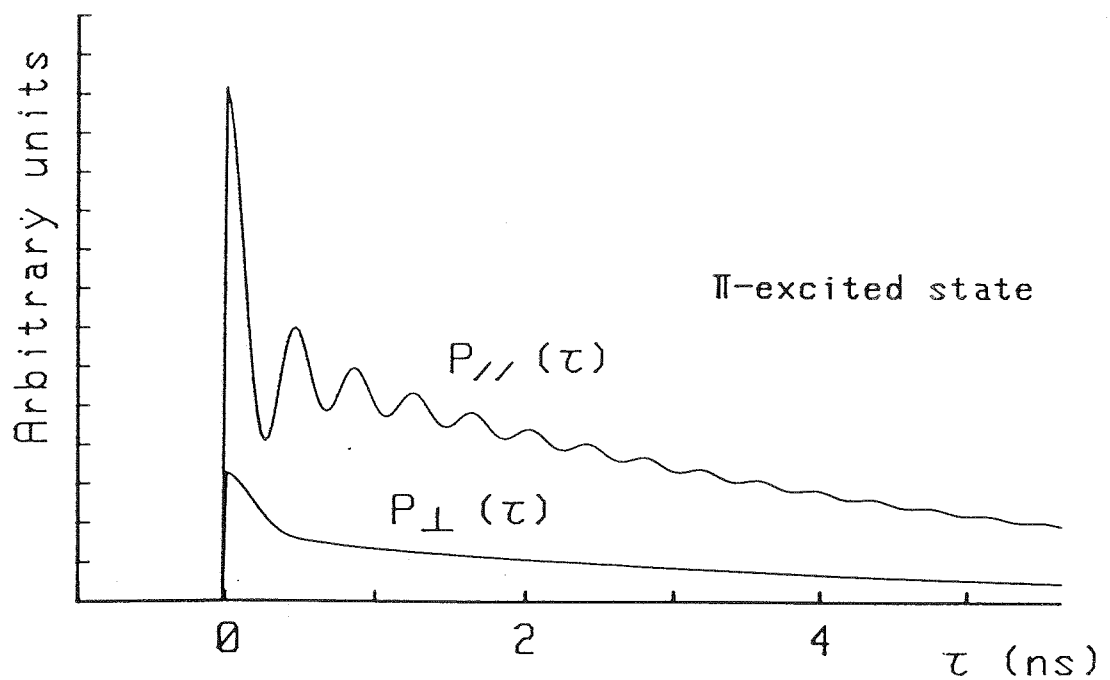


Figure V-3 : Probabilités de détection $P_{//}(\tau)$ et $P_{\perp}(\tau)$, moyennées sur les directions de $\vec{v}$. La configuration // favorise les directions de $\vec{v}$ proches de l'axe Oz, et la configuration ⊥ les directions de $\vec{v}$ perpendiculaires à Oz.

d) Limites du modèle semi-classique

Dans le cadre du modèle semi-classique, la formule (V-3) correspond à un "train d'onde" dont l'intensité est modulé à la fréquence Ω. Il a été proposé[78] d'observer cette modulation en recherchant un pic à Ω (ou plus précisément à Ω_o) dans le spectre de bruit du courant de photodétection. Cette expérience pourrait s'effectuer avec un laser dissociateur continu, car un analyseur de spectre peut en principe détecter une modulation indépendamment de l'instant initial de chaque "train d'onde". Plus précisément, le signal délivré par un analyseur de spectre est la transformée de Fourier de l'autocorrélation de l'intensité émise par la source c'est-à-dire, la transformée de Fourier du taux de comptage double $w^{(2)}(\tau)$ défini dans le Chapître I. Dans la logique du raisonnement semi-classique, le terme dominant dans $w^{(2)}(\tau)$ devrait correspondre à l'autocorrélation de chaque "train d'onde" avec lui-même ; nous avons déjà vu que ce terme n'existe pas, car chaque système atomique (ici chaque paire d'atomes dans l'état $|\psi_{at}\rangle$) n'émet qu'un seul photon.

Il est important de remarquer que par contre, une modulation peut apparaitre dans le terme suivant de $w^{(2)}(\tau)$, qui correspond aux effets à deux atomes. En effet pour une source "chaotique" stationnaire, les fonctions de cohérence du premier et du second ordre sont reliées par une relation simple (effet Hanbury-Brown et Twiss). En notant $w^{(2)}(\vec{\rho}, \tau)$ la probabilité de détections double aux instants t et $(t + \tau)$ en deux points $\vec{r}$ et $\vec{r} + \vec{\rho}$, on démontre la relation suivante (voir § V-B) :

$$w^{(2)}(\vec{\rho}, \tau) = K(|G^{(1)}(\vec{0}, 0)|^2 + |G^{(1)}(\vec{\rho}, \tau)|^2)$$

$$= K'(1 + |g^{(1)}(\vec{\rho}, \tau)|^2) \qquad (V-4)$$

où $g^{(1)}(\vec{\rho}, \tau)$ est la fonction de cohérence du premier ordre normalisée.

Le premier terme (indépendant de $\vec{\rho}$ et τ)correspond ici aux "coïncidences fortuites" entre deux émissions non corrélées, tandis que le second terme est associé à un effet d'interférence entre les champs émis par deux atomes différents.

La fonction $g^{(1)}(\vec{\rho}, \tau)$ vaut 1 en $\vec{\rho} = 0$ et $\tau = 0$, et s'annule lorsque τ est plus grand que le temps de cohérence τ_c, ou lorsque $|\vec{\rho}|$ est plus grand que le diamètre de l'aire de cohérence σ_c. Par ailleurs, si le spectre de la lumière émise comporte deux fréquences séparées de $\Omega_o/2\pi$, alors $|g^{(1)}(\vec{\rho},\tau)|$ sera modulé en fonction de τ avec une période $2\pi/\Omega_o$. Remarquons que pour $\vec{\rho} = 0$, cette modulation correspond exactement à la modulation du contraste des franges que l'on obtiendrait en utilisant un interféromètre de Michelson (analyse spectrale d'un "doublet") ; la différence est que la modulation apparait ici directement dans le domaine temporel, et disparait dès que $|\vec{\rho}|$ est plus grand que le diamètre de l'aire de cohérence.

Deux cas se présentent alors, suivant les valeurs relatives de σ_c et de la surface S du faisceau au niveau du photodétecteur.

- Si $S \leq \sigma_c$, le signal observé, obtenu en intégrant $w^{(2)}(\vec{\rho},\tau)$ sur la surface S, sera peu affecté et la modulation de $|g^{(1)}(\vec{\rho}, \tau)|$ pourra être observée ;

- Si $S >> \sigma_c$, le contraste de la modulation sera au plus égal à σ_c/S ; si ce rapport est très petit, il devient extrêmement difficile de détecter la modulation, qui disparait dans les fluctuations statistiques du "fond" de coïncidences fortuites.

Dans notre configuration expérimentale, σ_s/S est de l'ordre de 10^{-5}, et l'observation directe de la modulation est exclue en pratique.

Remarque :

Forrester, Gudmundsen et Johnson[78] *ont réalisé en 1955 une expérience fort analogue à celle discutée ici, en observant une modulation due à l'excitation de différentes composantes Zeeman d'une vapeur du mercure. Il est intéressant de calculer le rapport signal/bruit dans cette expérience d'analyse spectrale du photocourant, et de le comparer à une expérience de corrélation d'intensité.*

D'après les calculs de la Réf. 79, on a :

$$\frac{S}{B} \sim \frac{I}{e}\ \tau_c\ \frac{\sigma_c}{S}\ \sqrt{\frac{(\Delta\nu)\ in}{(\Delta\nu)\ out}} \qquad (V\text{-}5)$$

où I est le photocourant détecté, e la charge de l'électron, $(\Delta\nu)_{in} \sim 1/\tau_c$ *l'inverse du temps de cohérence, et* $(\Delta\nu)_{out}$ *la largeur spectrale d'un filtre très étroit (en*

../..

pratique une détection synchrone). Pour une expérience de comptage, on aurait :

$$\frac{S}{B} \sim N \tau_c \frac{\sigma_c}{S} \sqrt{\frac{T}{\tau_c}} \qquad (V-6)$$

où N est le taux de comptage du photodétecteur et T le temps d'intégration. Les deux expressions conduisent évidemment au même rapport S/B pour les deux techniques.

En pratique, l'expérience de la Ref. 79 a été extrêmement difficile à réaliser. La valeur élevée de la fréquence de modulation (10 GHz) exclut l'emploi d'un photomultiplicateur, pour des raisons de dispersion de temps de transit (voir § suivant). Par conséquent, les photoélectrons ont été directement accélérés et couplés à une cavité micro-onde résonnante à 10 GHz. Le signal en sortie de la cavité a pu être détecté par un dispositif super-hétérodyne, utilisant un klystron comme oscillateur local et un amplificateur de fréquence intermédiaire à 30 MHz. La sortie de cet amplificateur a ensuite été filtrée avec une constante de temps de 250 s, grâce à une détection synchrone obtenue par modulation basse fréquence (45 Hz) du signal à 10 GHz. Le rapport signal sur bruit résultant de ce dispositif complexe n'a finalement été que de l'ordre de 2, ce qui montre l'extrême difficulté de l'observation de la modulation lorsque $\sigma_c/S \ll 1$. ($\sigma_c/S \sim 10^{-8}$ dans la Ref. 79).

e) Résultats du calcul quantique

Le calcul quantique complet de l'effet d'interférence sera présenté dans le § V-B. Le résultat quantique pour la probabilité de détection du photon de fluorescence à l'instant τ après la photodissociation est très proche du résultat classique (eq. V-3). On obtient en effet, pour notre configuration expérimentale :

$$p(\tau) = A(\theta, \phi)\ (1 + \cos\Omega\tau)\ \exp(-D(\tau)) \qquad (V-7)$$

$A(\theta, \phi)$ est une fonction rendant compte des effets de polarisation, et $D(\tau)$ est le facteur d'amortissement prenant en compte le couplage radiatif entre les deux atomes. Si les atomes s'éloignent de plusieurs longueurs d'ondes optiques pendant une durée de vie $1/\Gamma$, le terme $\exp(-D(\tau))$ peut être assimilé à $\exp(-\Gamma\tau)$, et l'effet dominant est dû au terme d'interférence $(1 + \cos\Omega\tau)$.

../..

On peut alors considérer que l'effet observé est dû à une interférence entre les champs libres émis par les deux atomes, ce qui justifie l'image des deux sources cohérentes employée dans le modèle semi-classique.

Le phénomène lui-même est cependant de nature essentiellement quantique, puisque le raisonnement du paragraphe précédent établit encore une fois que la modulation $p(\tau)$ est due à une "interférence à un seul photon".

V-A-2 - Description de l'expérience

a) Le dispositif expérimental : généralités

Le schéma de principe de l'expérience est présenté sur la Figure V-4, et résulte naturellement des considérations qualitatives précédentes.

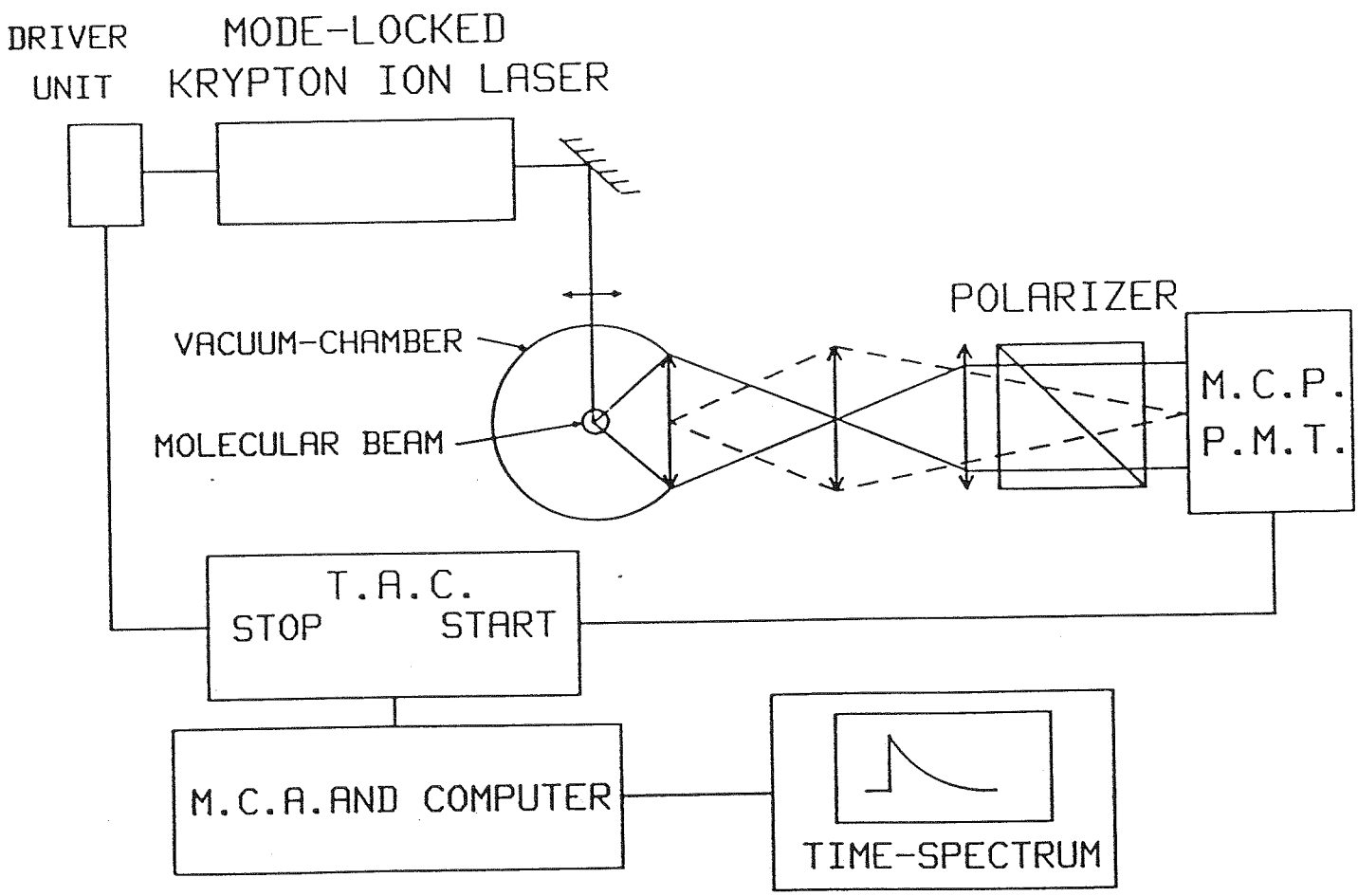


Figure V-4 : Schéma de principe de l'expérience. Pour des raisons technologiques, il est préférable d'envoyer les impulsions issues du photomultiplicateur à galettes de microcanaux (M.C.P. P.M.T.) sur l'entrée START du convertisseur temps-amplitude (T.A.C.), et le signal issu du laser mode-locké sur l'entrée STOP.

../...

Une première difficulté expérimentale est liée à la faible valeur $2\Pi/\Omega_o \sim 400$ ps de la période de modulation attendue. La durée de l'impulsion laser et le temps de résolution de l'électronique de comptage doivent donc être inférieurs à cette valeur.

La condition sur l'impulsion laser peut être satisfaite en utilisant un système commercial de verrouillage de modes ("mode-locking") du laser à Krypton ionisé utilisé dans nos expériences précédentes. Par contre, le temps de résolution de l'électronique doit être amélioré de près d'un ordre de grandeur ; ces modifications seront décrites dans le paragraphe suivant.

Une deuxième difficulté est le faible niveau du signal de fluorescence, qui était de l'ordre de quelques centaines de coups par seconde dans nos observations initiales de la photodissociation des molécules Ca_2 par un laser continu[75]. Un taux de comptage trop faible conduit à une dégradation appréciable des spectres-temps pour deux raisons d'ordre technologiques : d'une part, les coups d'obscurité des photomultiplicateurs augmentent les fluctuations statistiques de comptage sans augmenter le signal, donc dégradent le rapport signal sur bruit ; d'autre part, les dérives de l'électronique dégradent la résolution temporelle lorsque le temps de comptage devient trop important. Nous avons donc dû modifier également le four du jet atomique, ce qui nous a permis de gagner un ordre de grandeur sur le signal de fluorescence (voir ci-dessous).

Remarque :

L'intervalle entre deux impulsions lasers successives est égal à 12 ns en régime de mode bloqués (durée d'un aller-retour dans la cavité laser). La durée de vie de la cascade étant de 4.7 ns, le "rapport cyclique" de l'expérience est très bon, et seul le nombre de molécules présentes dans la zone d'interaction limitera le nombre d'évènements observés.

b) Modifications de l'électronique de comptage

Le temps de transit de l'impulsion électronique dans un photomultiplicateur rapide conventionnel est de l'ordre de 30 ns, et présente des fluctuations d'un coup sur l'autre dont l'écart-type peut difficilement être diminuée au-dessous de 0,7 ns ; en pratique, le temps de résolution du système (incluant l'électronique) utilisé dans le chapitre IV était de l'ordre de 1 ns. Si on convolue les courbes de la Fig. V-3 par une gaussienne de largeur totale à mi-hauteur 1 ns, les oscillations de $p_{//}(\tau)$ ne sont plus apparentes ; par contre, la "bosse" de $P_{\perp}(\tau)$ au voisinage de $\tau = 0$

../..

ne disparait pas complètement. Nous avons tenté d'observer cet effet ; les résultats sont illustrés sur la Figure V-5.

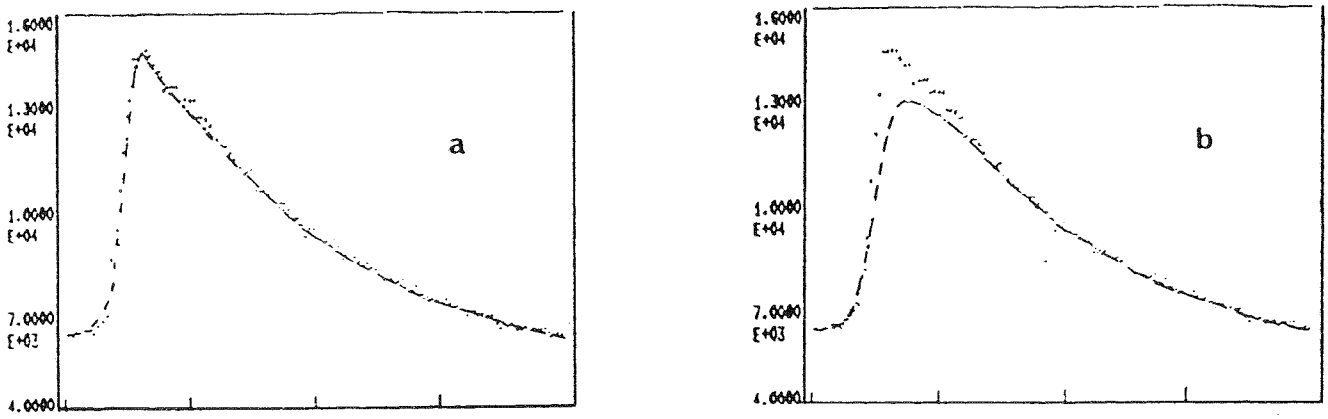


Figure V-5 : Comparaison des résultats expérimentaux pour $p_{\perp}(\tau)$ avec deux modèles théoriques. La figure (a) correspond à la courbe théorique de la Figure V-3, convoluée par une gaussienne de largeur totale à mi-hauteur 1 ns. La courbe (b) correspond à une exponentielle simple, convoluée par la même gaussienne. Les mêmes calculs effectués sur $p_{//}(\tau)$ ne donnent pas d'effet apparent.

Ces résultats n'étant pas entièrement convaincants, une amélioration de la résolution temporelle était nécessaire. Elle repose sur l'utilisation de photomultiplicateurs à galettes de microcanaux, dans lesquels l'amplification du photoélectron initial ne s'effectue pas le long d'une chaine de dynodes, mais dans un "microcanal" de quelques µm de diamètre, enduit intérieurement d'une couche semiconductrice. Ces micro-canaux forment des "galettes" d'environ 1 cm d'épaisseur, soumises à des différences de potentiel de plusieurs kV. Le temps de transit est ainsi réduit à environ 3 ns, et la fluctuation de temps de transit à moins de 0.1 ns.

Remarque :

Afin de bénéficier pleinement de ce gain de résolution, un discriminateur conventionnel devient insuffisant. On doit utiliser un discriminateur à fraction constante, qui sépare les fonctions de sélection des impulsions (par un seuil ajustable) et de prise d'information temporelle (voir Fig. V-6). L'intérêt principal de ce circuit est de délivrer une information temporelle relativement indépendante

../..

de l'amplitude de l'impulsion électrique. Le temps de résolution des circuits de comptage (discriminateur et CTA) peut alors descendre à quelques dizaines de ps.

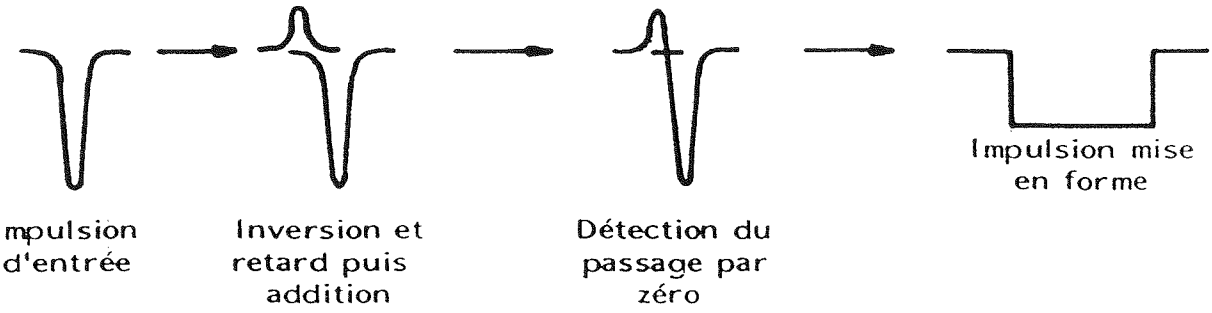


Figure V-6 : Principe d'un discriminateur à fraction constante. Le déclenchement du circuit s'effectue à l'instant du passage par zéro de l'impulsion "composite", le retard introduit sur l'impulsion atténuée est ajustable. Cette méthode rend la prise de l'information temporelle relativement indépendante de l'amplitude de l'impulsion (comparer avec la Figure II-9).

Finalement, le temps de résolution global obtenu a été estimé à 180 ps (voir V-B) ; il inclut les contributions de l'impulsion laser (120 ps), du photomultiplicateur (100 ps) et de l'électronique (80 ps). Nous verrons plus loin qu'une modulation de 400 ps de période, c'est-à-dire de fréquence 2.5 GHz, peut facilement être observée dans ces conditions.

c) Modifications du four

Les densités atomiques et moléculaires dans le four, notées respectivement n(Ca) et $n(Ca_2)$, obéissent à la loi d'action de masse :

$$\frac{n(Ca_2)}{(n\ (Ca))^2} = K(T) \qquad (V\text{-}8)$$

où K(T) est une constante qui peut facilement être calculée, en utilisant les données spectroscopiques connues sur la molécule Ca_2. Le point important est que la diminu-

nution de K(T) avec T est beaucoup moins rapide que l'augmentation de la pression de vapeur saturante de Calcium atomique, qui détermine la valeur de n(Ca). On en déduit que le rapport :

$$\frac{n(Ca_2)}{n(Ca)} = K(T)\, n(Ca) \qquad (V-9)$$

augmente avec T. On a donc intérêt à augmenter la température du four, et parallèlement à diminuer le diamètre d de l'orifice pour limiter le débit de Calcium. Cette procédure doit conduire à une augmentation de la densité de molécules dans la zone source, à densité atomique constante. La limitation est que l'on passe ainsi d'un régime effusif (d très inférieur au libre parcours moyen) à un régime supersonique (l.p.m. << d). Les collisions au voisinage de l'orifice du four réduisent alors beaucoup les densités dans la zone source, éloignée de 10 cm. Après divers essais expérimentaux, les conditions les plus favorables ont été obtenues pour d ∿ 0.5 mm et T ∿ 1 400 K ; on gagne environ un ordre de grandeur par rapport aux conditions précédentes[75], qui correspondaient à d ∿ 5 mm et T ∿ 1 000 K. Le taux de comptage sans polariseur dans ces conditions est de l'ordre de 5 000 cps/s, tandis que le taux d'obscurité du photomultiplicateur employé était de l'ordre de 1 000 cps/s.

Remarques :

- Les conditions expérimentales (d ∿ 0.5 mm, T ∿ 1400 K et pression dans le four ∿ 50 mbar) correspondent à un régime supersonique. Le débit de la pompe secondaire à diffusion d'huile (1200 l/s) aurait été insuffisant si le Calcium ne s'était pas collé efficacement sur les parties refroidies de l'enceinte à vide (en acier inoxydable NS 22 S).

- La durée de chaque expérience sera limitée en pratique par la durée de vie d'une charge de Calcium, qui est inférieure à 45 minutes dans les conditions citées ci-dessus.

d) Résultats bruts

Nous présentons sur la Figure V-7 quelques spectres-temps obtenus dans les conditions décrites ci-dessus. La "réponse percussionnelle" du système (Fig. V-7 (a)) est obtenue par diffusion Rayleigh des impulsions lasers sur l'air, lorsque l'enceinte

../..

est à la pression atmosphérique. La Figure V-7 (b) correspond à un spectre sans polariseur, et les Figures V-7 (c) et (d) à des spectres dans les configurations // et $\perp$ (voir Fig. V-2). Ces résultats sont en accord qualitatif évident avec les courbes théoriques de la Figure V-3, convoluées par la "réponse percussionnelle" du système. La vérification quantitative de l'accord avec les prédictions théoriques sera effectuée dans le § V-B. Remarquons simplement ici que chaque oscillation correspond à une augmentation de la distance interatomique d'une longueur d'onde optique. On observe donc l'effet d'interférence sur les distances de plusieurs µm, 10 000 fois plus grandes que la taille initiale de la molécule.

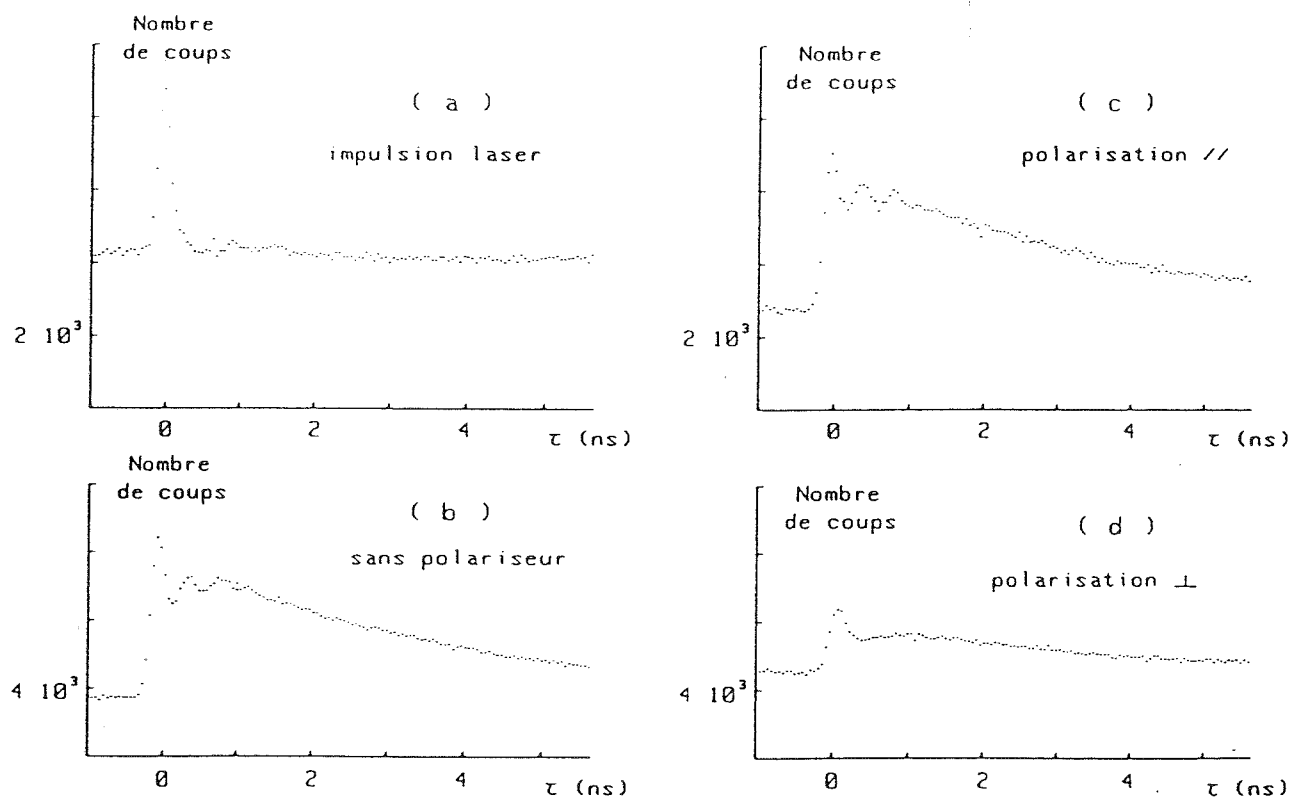


Figure V-7 : Spectres-temps obtenus dans l'expérience décrite dans ce chapitre. la Figure (a) permet de mesurer la résolution temporelle du système. Les Fig. (b) à (d) correspondent à la photodissociation de molécules Ca_2, pour différentes configuration de polarisation.

V-B - ANALYSE THEORIQUE ET INTERPRETATION QUANTITATIVE

Ce paragraphe reprend un article soumis au Journal de Physique.

QUANTUM INTERFERENCE EFFECT FOR TWO ATOMS EXCITED BY MOLECULAR PHOTODISSOCIATION : A THEORETICAL ANALYSIS

=====

P. GRANGIER
Institut d'Optique*, B.P. 43 - Centre Universitaire d'Orsay
F 91406 ORSAY Cédex

J. VIGUE
Laboratoire de Spectroscopie Hertzienne*, Ecole Normale Supérieure
24 rue Lhomond, F 75231 PARIS Cédex 05

=====

ABSTRACT

We present a theoretical analysis of a previous experiment, in which a modulation in the time-resolved atomic fluorescence light following the photodissociation of Ca_2 molecules by a pulsed laser was evidenced.

A calculation is performed first on a simple model, involving two atoms coupled to the quantized radiation field. Then the validity of this model is discussed on molecular physics grounds. Finally, a quantitative analysis of the experiment is presented ; good agreement is obtained if quasi-bound levels of the molecular ground state are taken into account.

* Laboratoires associés au C.N.R.S.

INTRODUCTION

In a recent paper [1], we presented experimental evidence for a quantum interference effect occurring in the photodissociation of a diatomic homonuclear molecule A_2. This photodissociation yields two atoms recoiling in opposite directions, one in an excited state (A*), and one in the ground state (A). Either of the two atoms can actually be excited, and subsequently reemit a photon at the atomic frequency ω_o, so one must consider two interfering paths for the whole process :

$$A_2 + \hbar\omega_L \begin{cases} \nearrow A + A^* \\ \searrow A^* + A \end{cases} \begin{cases} \searrow \\ \nearrow \end{cases} 2\,A + \hbar\omega_o \qquad (1)$$

(ω_L refers to the photodissociating laser light).

The interference effect appears as a modulation of the probability $P(\tau)$ of detecting the fluorescence photon $\hbar\omega_o$ at the delay τ after the dissociation effected by a laser pulse at $\tau = 0$ (τ is a retarded time with propagation delay substracted). The basic experimental setup (Figure 1) involves a molecular beam, at right angle to the dissociating laser beam. The fluorescent light is collected at right angle to both the atomic beam and the electric field $\vec{E}_L$ of the laser, through a polarizer that can be set parallel (//) or orthogonal ($\perp$) to $\vec{E}_L$ (see figure 1).

In this paper, we present a quantum mechanical calculation of the observed signal, quantizing the electromagnetic field and the motion of both atoms. In the first part of the paper, this calculation is performed on a somehow idealized model. In the second part, we discuss the validity of this model on molecular physics grounds, and in the third part some peculiar points relevant to experiments are considered. Our theoretical approach uses the Heisenberg equations for the field and atomic operators, which allows to exhibit the relationship between the classical and quantum treatments of the interference effect. On the other hand, we will analyze also some

../..

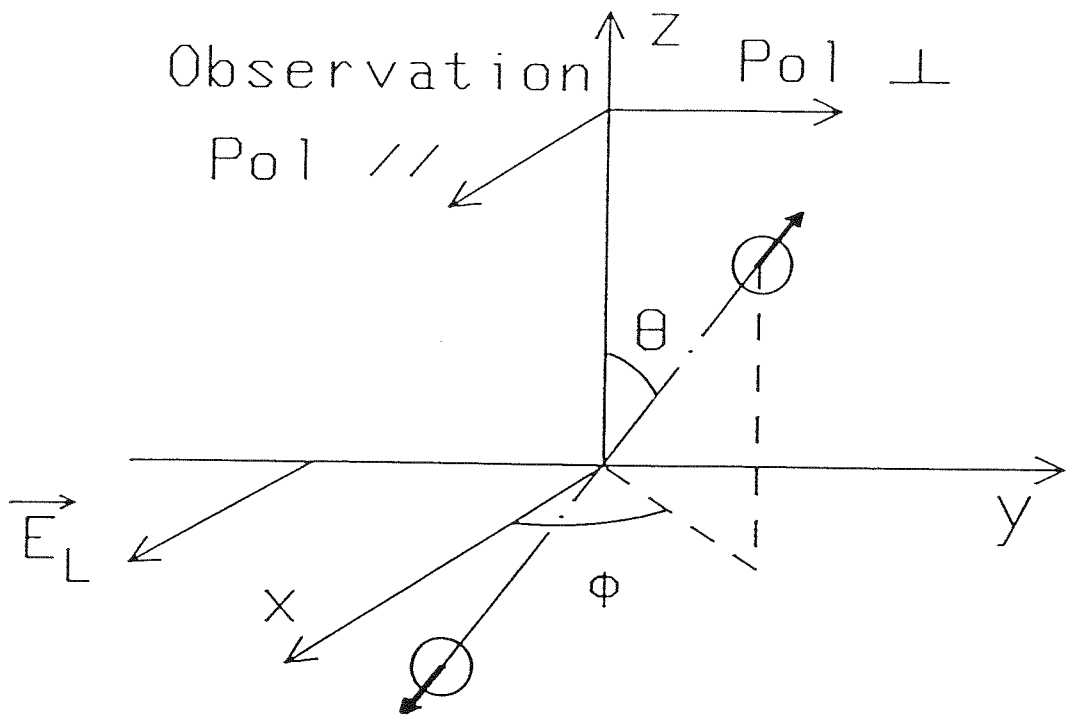


Figure 1 : Schematic experimental setup. The atomic and laser beams are respectively along Ox and Oy ; the fluorescence light is collected along Oz, through a polarizer that can be set parallel (//) or orthogonal (⊥) to the electric field E_L of the photodissociating laser. The angle θ and ϕ characterize the recoil direction of the atoms.

consequences of the fact that a single photon is involved in the process described by eq. 1 ; this step requires obviously a quantum treatment of the field.

1 - Quantum mechanical model

1-1 - Notations

We consider two identical atoms a and b, interacting with the quantized electro-magnetic field. The hamiltonian of this system is the sum of four parts :

$$H = H_a + H_b + H_R + V$$

where H_a and H_b are atomic hamiltonians, including kinetic energy terms, H_R is the radiation hamiltonian and V is the atoms-field coupling.

The atoms a and b are considered as two-levels systems, (excited state : $|e\rangle$, ground state : $|g\rangle$), and the operators $\vec{R}_a$ and $\vec{R}_b$ (resp. $\vec{P}_a$ and $\vec{P}_b$) are attributed to the positions (resp. momenta) of the centers of mass of both atoms. In this model, only radiative interactions between the atoms will be considered ; in particular, the internuclear distance δ will be assumed large enough to ignore chemical bindings.

We have thus :

$$H_a = \frac{\vec{P}_a^{\,2}}{2M} + \hbar\,\omega_o\,S_{z_a}$$

$$H_b = \frac{\vec{P}_b^{\,2}}{2M} + \hbar\,\omega_o\,S_{z_b} \qquad (2)$$

where ω_o is the atomic resonance frequency and S_{z_i} the z-component of the effective-spin operator for each atom (i = a or b) :

$$S_{z_i} = \frac{1}{2}\,(S_i^{+}\,S_i^{-} - S_i^{-}\,S_i^{+}) \qquad (3)$$

$$S_i^{+} = |e_i\rangle\langle g_i| \qquad S_i^{-} = |g_i\rangle\langle e_i|$$

The electromagnetic radiation field is quantized on a complete set of orthogonal field distribution $\vec{\xi}_\lambda(\vec{R})$, for example plane waves of wave vector $\vec{k}_\lambda$, angular frequency $\omega_\lambda = c\,|\vec{k}_\lambda|$, and polarization $\vec{\varepsilon}_\lambda$. The hamiltonian of the free radiation field is thus :

$$H_R = \sum_\lambda \hbar\omega_\lambda\, a_\lambda^+ \quad a_\lambda \tag{4}$$

where a_λ and a_λ^+ are respectively the destruction and creation operators of one photon in the mode λ.

The positive and negative frequency components of the electric field are given by :

$$\begin{cases} \vec{E}^+(\vec{R}) = \sum_\lambda \vec{\xi}_\lambda(\vec{R})\, a_\lambda \\ \vec{E}^-(\vec{R}) = \sum_\lambda \vec{\xi}_\lambda^*(\vec{R})\, a^+_\lambda \end{cases} \tag{5}$$

where

$$\vec{\xi}_\lambda(\vec{R}) = i\sqrt{\frac{\hbar\omega_\lambda}{2\varepsilon_o V}}\; \vec{\varepsilon}_\lambda\, e^{\,i\,\vec{k}_\lambda.\,\vec{R}}$$

The atoms-field coupling at the electric dipole approximation can then be shown to be[2] :

$$V = -\,\vec{D}_a.\,\vec{E}(\vec{R}_a) - \vec{D}_b.\,\vec{E}\,(\vec{R}_b) \tag{6}$$

where $\vec{D}_a$ (resp. $\vec{D}_b$) is the dipole operator of atom a (resp. atom b).

More precisely, we have for atom i :

$$\vec{D}_i = \vec{d}_{eg}\,(S_i^+ + S_i^-) \tag{7}$$

where $\vec{d}_{eg} = \langle e\,|\,\vec{D}\,|g\rangle$ is assumed to be a real vector depending on the levels $|e\rangle$ and $|g\rangle$. We define g_λ as the quantity :

.../...

$$\hbar g_\lambda = -\sqrt{\frac{\hbar\omega_\lambda}{2\varepsilon_o V}}\ \vec{\varepsilon}_\lambda \cdot \vec{d}_{eg} \tag{8}$$

and we get, using the rotating wave approximation, the normal-ordered coupling :

$$V = i \sum_\lambda \hbar g_\lambda \left[\{ e^{i\vec{k}_\lambda \cdot \vec{R}_a} S^+_a + e^{i\vec{k}_\lambda \cdot \vec{R}_b} S^+_b \} a_\lambda \right. \\ \left. - a^+_\lambda \{ e^{-i\vec{k}_\lambda \cdot \vec{R}_a} S_a^- + e^{-i\vec{k}_\lambda \cdot \vec{R}_b} S_b^- \} \right] \tag{9}$$

We will suppose that just after the end of the laser pulse, the initial state vector $|\psi_{in}\rangle$ describing the two atoms in vacuum radiation field can be factorized in three parts (see discussion in Part 2) :

$$|\psi_{in}\rangle = |\psi_{int}\rangle\ |\psi_{ext}\rangle\ |Vac\rangle$$

- the first part corresponding to the internal degrees of freedom of the atoms is given by :

$$|\psi_{int}\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} \{ |g_a\ e_b\rangle + \varepsilon |e_a\ g_b\rangle \} \tag{10}$$

where ε is equal to + 1 or - 1 according to the molecular parity (u or g) of the dissociating state.

- the second part corresponds to the external degrees of freedom. Actually, $|\psi_{ext}\rangle$ is a function of the ground molecular state involved in the photodissociation, and, due to the thermal populations of these states, the external degrees of freedom would be more adequately described by a density matrix. In this part of the paper, we shall consider the contribution of a single ground state level, i.e. we assume that the description by $|\psi_{ext}\rangle$ is valid. However, the average over the molecular ground state population will be carried out in Part II.

Without specifying explicitly $|\psi_{ext}\rangle$, we assume that the dispersion of the relative position $(\vec{R}_a - \vec{R}_b)$ of the atoms is very small compared to the wavelength λ_o of the emitted radiation. This hypothesis will be qualitatively justified in Part II.

- the third part is the vacuum state of the radiation field.

../..

1-2 - Heisenberg equations

To proceed further, we adopt the Heisenberg representation, which is very convenient for displaying the relationship between the classical and quantum descriptions of the electromagnetic field. The state vector is thus kept constant, and equal to $|\psi_{in}\rangle$, while the operators S^+, S^-, $\vec{P}$, $\vec{R}$, a^+, a are time dependent. The time evolution of these operators are (i = a or b) :

$$\frac{d}{dt}\,\vec{R}_i = \frac{\vec{P}_i}{M}$$

$$\frac{d}{dt}\,\vec{P}_i = \sum_\lambda g_\lambda \hbar \vec{k}_\lambda \left(S^+_i\, a_\lambda\, e^{i\vec{k}_\lambda.\vec{R}_i} + a^+_\lambda\, S^-_i\, e^{-i\vec{k}_\lambda.\vec{R}_i}\right) \qquad (11)$$

$$\frac{d}{dt}\,a_\lambda = i\omega_\lambda\, a_\lambda - g_\lambda \left(S^-_a\, e^{-i\vec{k}_\lambda.\vec{R}_a} + S^-_b\, e^{-i\vec{k}_\lambda.\vec{R}_b}\right)$$

$$\frac{d}{dt}\,S^-_i = -\,i\omega_o\, S^-_i - \sum_\lambda g_\lambda \left(2\,S^+_i\, S^-_i - 1\right) a_\lambda\, e^{i\vec{k}_\lambda.\vec{R}_i} \qquad (12)$$

These equations can be recasted in a simpler form by separating the rapidly varying part of the operators (due to the free terms in the Hamiltonian) from the slowly varying terms (due to the coupling) ; we thus write :

$$S^-_i = e^{-i\omega_o t}\,\tilde{S}^-_i$$

$$a_\lambda = e^{-i\omega_\lambda t}\,\tilde{a}_\lambda$$

and we get :

$$\frac{d}{dt}\,\tilde{a}_\lambda = -\,g_\lambda\, e^{i(\omega_\lambda-\omega_o)t} \left(\tilde{S}^-_a\, e^{-i\vec{k}_\lambda\vec{R}_a} + \tilde{S}^-_b\, e^{-i\vec{k}_\lambda.\vec{R}_b}\right) \qquad (13)$$

$$\frac{d}{dt}\,\tilde{S}^-_i = -\sum_\lambda g_\lambda \left(2\,S^+_i\, S^-_i - 1\right) a_\lambda\, e^{i(\vec{k}_\lambda.\vec{R}_i + (\omega_o - \omega_\lambda)t)}$$

../..

1-3 - Time evolution of atomic and field operators

Integration of the first equation of system (13) yields :

$$\tilde{a}_\lambda(t) = \tilde{a}_\lambda(0) - g_\lambda \int_0^t (\tilde{S}_a^-(t')\, e^{-i\vec{k}_\lambda.\vec{R}_a(t')} + \tilde{S}_b^-\, e^{-i\vec{k}_\lambda \vec{R}_b(t')}) \times e^{i(\omega_\lambda - \omega_o)t'} dt' \qquad (14)$$

Provided that this operator will be applied on the initial state $|\psi_{in}\rangle^3$, we can use the equality $a_\lambda(0)\ |\psi_{in}\rangle = 0$ (the field is in the vacuum state at t = 0) ; the second and third equations of system (13) then yield ((i,j) = (a,b) or (b,a)) :

$$\frac{d}{dt}\tilde{S}_i^-(t)\ |\psi_{in}\rangle = \sum_\lambda g_\lambda\ (2\,\tilde{S}_i^+\tilde{S}_i^- - 1)\, e^{i\vec{k}_\lambda.\vec{R}_i(t)} \times \int_0^t (\tilde{S}_i^-(t')\, e^{-i\vec{k}_\lambda.\vec{R}_i(t')} + \tilde{S}_j^-(t')\, e^{-i\vec{k}_\lambda.\vec{R}_j(t')}) \times e^{i(\omega_\lambda - \omega_o)(t'-t)} dt'\ |\psi_{in}\rangle \qquad (15)$$

Equations (15) are the main equations describing the desexcitation of the two-atoms system. Before solving this system, let us notice that in the single-atom case (i.e. a excited, b absent), we would obtain using standard approximations[4] :

$$\frac{d}{dt}\tilde{S}_a^-(t)\ |\psi_{in}\rangle = -\tilde{S}_a^-(t) \times (\pi \sum_\lambda g_\lambda^2\, \delta_D(\omega_\lambda - \omega_o))\ |\psi_{in}\rangle = -\frac{\Gamma}{2}\tilde{S}_a^-(t)\ |\psi_{in}\rangle$$

where the level shift has been omitted (see App. I) ; in these expressions $\delta_D(\omega_\lambda - \omega_o)$ is the Dirac distribution, and :

$$\Gamma = 2\pi \sum_\lambda g^2{}_\lambda \delta_D(\omega_\lambda - \omega_o)$$

is the inverse of the atomic radiative lifetime. In this case, we obtain simply the radiative damping of the excited atom.

../..

The calculations relative to the two-atoms case are detailed in Appendix I, and they yield eventually ((i, j) = (a, b) or (b, a)) :

$$\frac{d}{dt}\,\tilde{S}_i^-(t)\,|\psi_{in}\rangle = -\frac{\Gamma}{2}\,\tilde{S}_i^-(t)\,|\psi_{in}\rangle$$

$$+\frac{\Gamma}{2}\left[f(k_o\,\delta(t)) + ig(k_o\,\delta(t))\right]\,(2\,\tilde{S}_i^+\,\tilde{S}_i^- - 1)\,\tilde{S}_j^-(t)\,|\psi_{in}\rangle \qquad (16)$$

where $\delta(t) = |\vec{R}_a - \vec{R}_b|$ and $f(k_o\,\delta)$, $g(k_o\,\delta)$ are functions depending on the orientation of the atomic dipole $\vec{d}_{eg}$ in the molecular frame. The expressions of $f(k_o\delta)$ and $g(k_o\delta)$ are given in App. I, for two cases relevant to experiments : Σ - excited molecular state ($\vec{d}_{eg}$ parallel to the internuclear axis) or, π - excited molecular state ($\vec{d}_{eg}$ perpendicular to the internuclear axis).

We shall see below that $f(k_o\delta)$ contributes to a modification of the radiative lifetime $1/\Gamma$, while $g(k_o\delta)$ appears as an interaction potential between the two atoms.

The general solution of system (16) is given in Appendix II. We shall restrict ourselves here to results useful for the following, i.e. expectation values in the state $|\psi_{in}\rangle$:

$$\langle \tilde{S}_i^+\,\tilde{S}_i^- \rangle\,(\tau) = \frac{1}{2}\,e^{-\int_0^\tau \Gamma(1 + \varepsilon f(k_o\delta))\,dt}$$

$$\langle \tilde{S}_i^+\,\tilde{S}_j^- \rangle\,(\tau) = \frac{\varepsilon}{2}\,e^{-\int_0^\tau \Gamma(1 + \varepsilon f(k_o\delta))\,dt} \qquad (17)$$

1-4 - Forces between the two atoms

By substituting eq. (14) in system (11), we get (omitting $|\psi_{in}\rangle$ on the right side)

$$\frac{d\vec{P}_i}{dt} = -\sum_\lambda g^2{}_\lambda\,\hbar\,\vec{k}_\lambda\,\tilde{S}_i^+(t)\,e^{i\,\vec{k}_\lambda.\vec{R}_i(t)}$$

$$\int\left(\tilde{S}_i^-(t')\,e^{-i\,\vec{k}_\lambda.\vec{R}_i(t')} + \tilde{S}_j^-(t')\,e^{-i\,\vec{k}_\lambda.\vec{R}_j(t')}\right)e^{i(\omega_\lambda - \omega_o)(t'-t)}\,dt' + c.c.$$

../..

Using the same techniques than previously, this system can be integrated in the general case (see Appendix III). The results for the expectation values in the initial state $|\psi_{in}\rangle$ are :

$$\frac{d}{dt} \langle \vec{P}_a + \vec{P}_b \rangle = 0$$

$$\frac{d}{dt} \langle \vec{P}_a - \vec{P}_b \rangle = - \hbar\Gamma \langle \psi_{in} | (\tilde{S}_a^+ \tilde{S}_b^- + \tilde{S}_b^+ \tilde{S}_a^-) \, \vec{grad}_\delta (g(k_o\delta)) \, |\psi_{in}\rangle \quad (19)$$

The first equation means that the center of mass of the pair of atoms does not experiment any recoil on the average. The second equation gives the force between the two atoms. This force can be considered as deriving from a pseudo-coupling term :

$$\langle V_{dd} \rangle = \langle \frac{\hbar\Gamma}{2} (\tilde{S}_a^+ \tilde{S}_b^- + \tilde{S}_b^+ \tilde{S}_a^-) \, g(k_o\delta) \rangle$$

The sign and value of $\langle V_{dd} \rangle$ for $k_o\delta \ll 1$ will determine the behaviour (attraction or repulsion) of the two atoms in the excited state $|\psi_{in}\rangle$. Using the values of $g(k_o\delta)$ calculated in Appendix I, we have :

$$\langle \psi_{in} | \; V_{dd} \; |\psi_{in}\rangle_\Pi \cong \frac{\hbar\Gamma}{2} \; \varepsilon \; (\frac{3}{2} \; \frac{1}{(k_o\delta)^3}) \qquad (\Pi - \text{state})$$

$$\langle \psi_{in} | \; V_{dd} \; |\psi_{in}\rangle_\Sigma \cong \frac{\hbar\Gamma}{2} \; \varepsilon \; (-3 \; \frac{1}{(k_o\delta)^3}) \qquad (\Sigma - \text{state}) \qquad (20)$$

Thus the $\Pi_u (\varepsilon = +1)$ and $\Sigma_g (\varepsilon = -1)$ states are strongly repulsive, while the Π_g and Σ_u states are attractive. This is the well-known resonant dipole-dipole interaction [26].

In our experiment, $|\langle V_{dd} \rangle|$ diminishes very rapidly as δ increases (by a factor 10^{-3} between 10 Å and 100 Å), and is less than 1 cm^{-1} for $\delta > 100$ Å, while the recoil energy is a few hundred cm^{-1}. For values of δ greater than 100 Å, the variations of $\langle V_{dd} \rangle$ are therefore completely negligible compared to the kinetic energy ; we can thus consider that after 100 Å (about 10 ps after the photodissociation) the relative motion

../..

of the two atoms is uniform, and we can take as average value of $\delta = |\vec{R}_a - \vec{R}_b|$ the simple expression vt, where the recoil velocity v is estimated from the available energy in the photo-dissociation. A spread of v is due to the fact that the wave-packet associated to the relative positions of the atoms in the excited state $|\psi_{ext}\rangle$ must satisfy the Heisenberg relation $\Delta(R_a - R_b)\,\Delta(P_a - P_b) \geq h$. This point will be discussed in Part II of this paper.

1-5 - Probability of detection

The delay between the laser pulse initiating the photodissociation and the detection time of the fluorescence photon is measured by a time-to-digital converter. The signal given by this device is the probability $p(\vec{r}, \vec{\varepsilon}_D, \vec{t})\,dt$ for detecting a photon polarized along $\vec{\varepsilon}_D$ at the point $\vec{r}$ between t and t + dt, following the photodissociation at time t = 0 and point $\vec{r} = \vec{R}_o$. This probability is[5] :

$$p(\vec{r}, \vec{\varepsilon}_D, t) = C \langle \psi_{in} | E^-_D(\vec{r},t)\, E^+_D(\vec{r},t) \, |\psi_{in}\rangle \qquad (21)$$

where C is some multiplicative constant and :

$$E_D^+(\vec{r},t) \, |\psi_{in}\rangle = i \sum_\lambda \sqrt{\frac{\hbar\omega_\lambda}{2\varepsilon_o V}}\, \vec{\varepsilon}_D \cdot \vec{\varepsilon}_\lambda \, a_\lambda(t)\, e^{i\vec{k}_\lambda \cdot \vec{r}} \, |\psi_{in}\rangle$$

The geometry of the detection channel is shown on Figure 1. The polarizer can be set parallel ($\vec{\varepsilon}_D = \vec{\varepsilon}_{//}$) or orthogonal ($\vec{\varepsilon}_D = \vec{\varepsilon}_\perp$) to the laser polarization.

Using eq. (5) and (14), we obtain :

$$E_D^+(\vec{r},t) \, |\psi_{in}\rangle = i \sum_\lambda \sqrt{\frac{\hbar\omega_\lambda}{2\varepsilon_o V}}\, \vec{\varepsilon}_D \cdot \vec{\varepsilon}_\lambda \, a_\lambda(t)\, e^{i\vec{k}_\lambda \cdot \vec{r}} \, |\psi_{in}\rangle$$

$$= i \sum_\lambda \sqrt{\left(\frac{\hbar\omega_\lambda}{2\varepsilon_o V}\right)} (\vec{\varepsilon}_D \cdot \vec{\varepsilon}_\lambda)(\vec{d}_{eg} \cdot \vec{\varepsilon}_\lambda)\, e^{i(\vec{k}_\lambda \vec{r} - \omega_\lambda t)}$$

$$\times \int_0^t \left(\tilde{S}_a^-(t')\, e^{-i\vec{k}_\lambda \cdot \vec{R}_a(t')} + \tilde{S}_b^-(t')\, e^{-i\vec{k}_\lambda \cdot \vec{R}_b(t')} \right) e^{i(\omega_\lambda - \omega_o)t'} \, dt' \, |\psi_{in}\rangle$$

../..

Defining $\vec{R}_o = \frac{\vec{R}_a + \vec{R}_b}{2}$, we have $\vec{R}_a = \vec{R}_o + \frac{\vec{\delta}}{2}$ and $\vec{R}_b = \vec{R}_o - \frac{\vec{\delta}}{2}$

Using the same techniques as previously, but retaining only the farfield terms (in $\frac{1}{|r - \vec{R}_o|}$) we get :

$$E_D^+(r,t)\ |\psi_{in}\rangle = \frac{\omega_o^2(\vec{d}_{eg}\cdot\vec{\varepsilon}_D)}{4\pi\ \varepsilon_o\ c^2\ |\vec{r} - \vec{R}_o|}\ e^{-i\ \omega_o\ \tau} \qquad (22)$$

$$x(\tilde{S}_a^-(\tau)\ e^{i\frac{k_o}{2}\delta(\tau)\ \cos\Theta} + S_b^-(\tau)\ e^{-i\frac{k_o}{2}\delta(\tau)\ \cos\Theta})\ |\psi_{in}\rangle$$

where :

$$\tau = t - \frac{|\vec{r} - \vec{R}_o|}{c}$$

is the retarded time since the photodissociation.

Eq. 22 exhibits clearly the interference between the emissions by the two dipòles which is responsible for the observed effect.

Using eq. 17, we get :

$$\langle\psi_{in}|\ E_D^-(\vec{r},\ t)\ E_D^+(\vec{r},\ t)\ |\psi_{in}\rangle = \left(\frac{\omega_o^2(\vec{d}_{eg}\cdot\vec{\varepsilon}_D)}{4\pi\ \varepsilon_o\ c^2\ |\vec{r} - \vec{R}_o|}\right)^2$$

$$x\ \langle\psi_{in}|\ \tilde{S}_a^+\tilde{S}_a^- + \tilde{S}_a^+\tilde{S}_b^-\ e^{-i\ k_o\ \delta(\tau)\ \cos\Theta}$$

$$+\tilde{S}_b^+\tilde{S}_a^-\ e^{i\ k_o\ \delta(\tau)\ \cos\Theta} + \tilde{S}_b^+\tilde{S}_b^-\ |\psi_{in}\rangle = \left(\frac{\omega_o^2(\vec{d}_{eg}\cdot\vec{\varepsilon}_D)}{4\pi\ \varepsilon_o\ c^2\ |\vec{r} - \vec{R}_o|}\right)^2$$

$$\{1 + \varepsilon\cos(k_o\ \delta(\tau)\ \cos\Theta)\}\exp(-\int_0^\tau \Gamma\ (1 + \varepsilon f(k_o\ \delta(\tau'))\ d\tau')$$

It is convenient to define :

$$D_{\varepsilon}(\tau) = \Gamma \int_0^{\tau} (1 + \varepsilon f(k_o \delta(\tau'))) \, d\tau' \qquad (23)$$

$$= \Gamma \int_0^{\tau} (1 + \varepsilon f(\Omega_o \tau')) \, d\tau'$$

where $\Omega_o = \omega_o \frac{v}{c}$, and we get eventually :

$$p(\vec{r}, \vec{\varepsilon}_D, t) = p_{\theta\ \phi}(\tau) = A(\theta,\phi)\ (1 + \varepsilon \cos(\Omega_o \tau \cos\theta)) e^{-D_{\varepsilon}(\tau)} \qquad (24)$$

This equation was the main result used in Ref. 1. We have implicitly assumed here that the dispersion $\Delta |R_a - R_b| = \Delta(\delta)$ is much smaller than λ_o, otherwise the average value $\langle \psi_{in} | \exp(i k_o \delta \cos\theta) | \psi_{in} \rangle$ would yield a zero result. This inequality was taken as an assumption in our simplified model (§ 1.1), but will be discussed in Part II of this paper.

1-6 - Angular averaging

In the preceding sections, we calculated the probability of detection for a given orientation of the recoil axis ; we must then average this result on the angular distribution of the photofragments. This approach is justified in Ref. 6, for the cases relevant to this paper.

In the axial recoil approximation, the recoil velocities are aligned with the molecular axis, and the angular distribution of the photofragments is simply the distribution of the molecular axis due to the excitation process. This distribution can be easily evaluated in each particular case, yielding analytical expressions for the averaged probabilities (see Appendix IV).

In Ref. 6, the situation where the excited molecular axis are isotropically distributed was also considered, and gave a better agreement with polarization measurements. Therefore we will consider the averaged probabilities for the

repulsive $^1\Pi_u$ and $^1\Sigma_g$ states, in the case of isotropic distribution of the photofragments. Let us notice that, in our actual experimental situation, a direct excitation from the ground $^1\Sigma_g^+$ state to a $^1\Sigma_g$ state is impossible ; nevertheless, we also consider this can for the sake of generality.

In the case of a $^1\Pi_u$ excited state, Eq. (24) becomes, after averaging, for $\vec{\varepsilon}_D = \vec{\varepsilon}_{//}$ or $\vec{\varepsilon}_D = \vec{\varepsilon}_\perp$:

$$p^{\pi}_{//}(\tau) = A^{\pi}\left(\frac{2}{3} + \left(\frac{1}{\Omega_o\tau} - \frac{1}{(\Omega_o\tau)^3}\right)\sin(\Omega_o\tau) + \frac{1}{(\Omega_o\tau)^2}\cos(\Omega_o\tau)\right)$$

$$\times \exp\left(-\Gamma \int_0^{\tau} (1 + f^{\pi}(\Omega_o\tau))\, d\tau'\right) \qquad (25\text{-a})$$

$$p^{\pi}_{\perp}(\tau) = A^{\pi}\left(\frac{1}{6} - \frac{1}{(\Omega_o\tau)^3}\sin(\Omega_o\tau) + \frac{1}{(\Omega_o\tau)^2}\right)$$

$$\times \exp\left(-\Gamma \int_0^{\tau} (1 + f^{\pi}(\Omega_o\tau'))\, d\tau'\right) \qquad (25\text{-b})$$

where A^{π} is a multiplicative constant. Note that for the limits $\tau \to 0$ or $\tau \to \infty$ the polarization of the emitted light is 0.6, though the distribution of the photofragments is isotropic (see Ref. 6 and 14).

We can also calculate the total emission probability (in any direction with any polarization) which is obviously :

$$p^{\pi}_{tot}(\tau) = \Gamma\,(1 + f^{\pi}(\Omega_o\tau))\exp\left(-\Gamma \int_0^{\tau} (1 + f^{\pi}(\Omega_o\tau'))\, d\tau'\right)$$

such that the integral over τ of $p^{\pi}_{tot}(\tau)$ is equal to unity :

$$\int_0^{\infty} p^{\pi}_{tot}(\tau)\, d\tau = \left[-\exp\left(-\Gamma \int_0^{\tau} (1 + f^{\pi}(\Omega_o\tau'))\, d\tau'\right)\right]_0^{\infty} = 1$$

../..

Considering now the case of a Σ_g excited state, we obtain :

$$p^{\Sigma}_{//}(\tau) = p^{\Sigma}_{\perp}(\tau) = A^{\Sigma}\left(\frac{1}{3} - \frac{\sin(\Omega_o\tau)}{(\Omega_o\tau)^3} + \frac{\cos(\Omega_o\tau)}{(\Omega_o\tau)^2}\right)$$

$$\times \exp\left(-\Gamma\int_0^{\tau}(1 - f^{\Sigma}(\Omega_o\tau'))\,d\tau'\right) \qquad (26\text{-a})$$

where A^{Σ} is a multiplicative constant. In this case the emitted light is unpolarized, with isotropic intensity. For the total emission probability, we have :

$$p^{\Sigma}_{tot}(\tau) = \Gamma(1 - f^{\Sigma}(\Omega_o\tau))\exp\left(-\Gamma\int_0^{\tau}(1-f^{\Sigma}(\Omega_o\tau'))\,d\tau'\right) \qquad (26\text{-b})$$

The equations (25-c) and (26-b), corresponding respectively to Π_u and Σ_g excited states, make clear that the initial state is "superadiant" or "subradiant", according to the molecular parity of the state ($\varepsilon = \pm 1$)[27]. Indeed, we obtain if $\Omega_o\tau \ll 1$:

$$p^{\Pi}_{tot}(\tau) \cong 2\Gamma\exp(-2\Gamma\tau)$$

$$p^{\Sigma}_{tot}(\tau) \cong 0$$

The "subradiant" case corresponds to the forbidden $\Sigma_g \rightarrow \Sigma_g$ transition at short distance. Obviously, this selection rule does not hold any more when the distance between both atoms increases to about half a wavelength.

p^{Π} and p^{Σ} are plotted respectively on Fig. 2(a) and (b). Let us remark again that the main features of this curves (modulation, differences between $p_{//}$ and $p_{\perp}$) are due to the first bracket of eq. (25) or (26), and not to the exponential term. Therefore, they can be understood as interferences between the free fields emitted coherently by the two atoms. Since the phase difference of the two interfering fields can be derived by considering two recoiling dipoles at a distance $\delta = v\tau$, with an initial phase lag 0 or π according to the sign of ε, we see that a

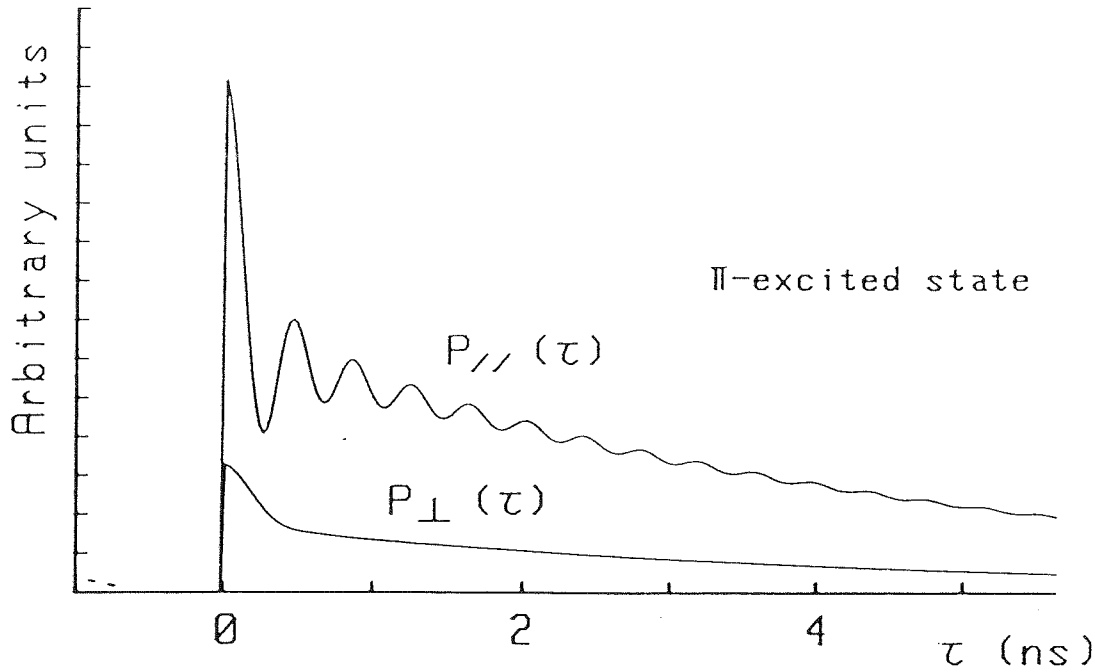


Fig. 2-a : Theoretical probabilities of detection of a fluorescence photon, with a delay τ, after averaging on the molecular orientations. The atomic lifetime is 4.7 ns, and the relative recoil velocity is v = 1000 m/s. The plotted values correspond to the excitation of a Π-state and an isotropic distribution of the photofragments.

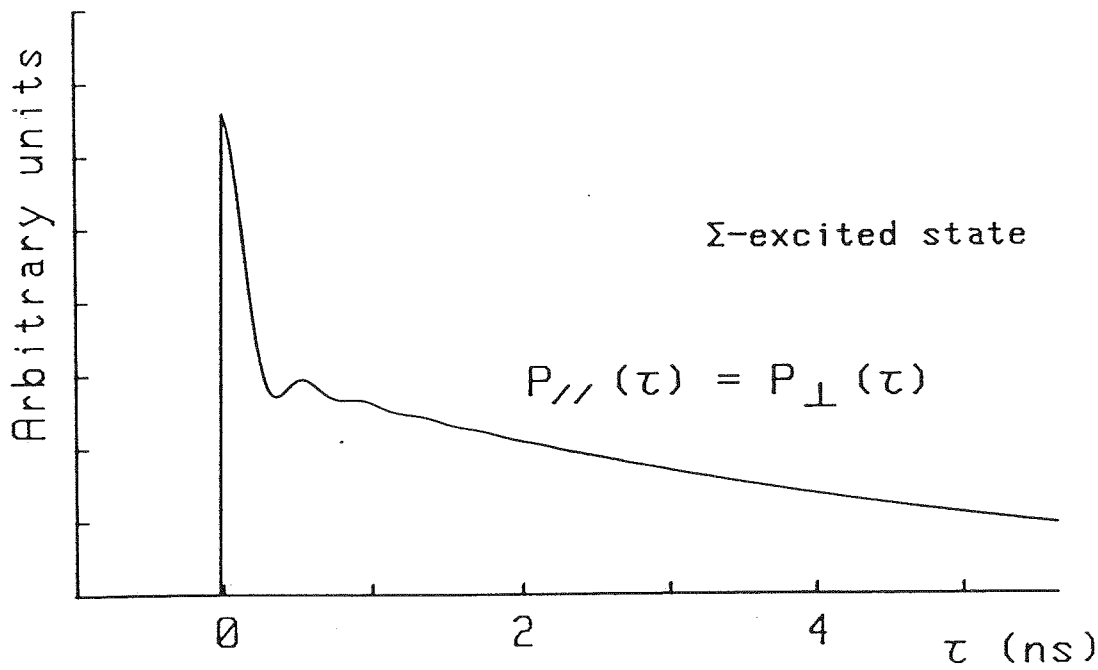


Fig. 2-b : Same quantities as (a) in similar conditions, except that the dissociating state is now a Σ-state.

semi-classical picture of "moving Young slits" gives an interesting insight in to the effect[1]. However, we are now to calculate the intensity correlation of the emitted light : in this case, dramatic differences between the quantum and semi-classical treatments appear.

1-7 - Intensity correlation of the emitted light

In this section, we shall consider an experiment different from the previous one, but close to a proposal by Diebold[7]. The main change is that the photodissociation is now effected by a C.W. laser. In this case, photodissociations occur randomly in time, but some information can be sought in second-order properties of the intensity of the emitted light, i.e. intensity correlations or equivalently noise-power spectrum of the photoelectric current. For instance, due to the modulation at Ω_o of the emitted intensity (Fig. 2), one could hope to find the "beat note" at Ω_o in the noise power spectrum of the detected photocurrent[7]. However, it was recognized that such a modulation would not exist, due to the single-photon character of the dissociation process[20,22]. In this part, we want to elaborate further on this point : in our approach, we can show that the single-photon modulation actually does not appear, but that a modulation can nevertheless be observed, due to contributions from different molecules to the emitted light. However, stringent conditions about the spatial coherence of the source will appear, which are very for from being satisfied in our experimental configuration.

To be more quantitative, let us recall that a spectrum analyzer yields the Fourier transform of the intensity correlation of the detected light ; this latter quantity, which can be also directly measured with a time-to-digital converter, is the joint probability density $P_{12}(t_1, t_2)$ for detecting two photons with a time delay $(t_2 - t_1)$ (this joint probability does not depend on $(t_1 + t_2)$ for a stationnary light). One shows that[5] :

../..

$$P_{12}(t_1, t_2) = \int_{S_1} d\vec{r}_1 \int_{S_2} d\vec{r}_2\, p_{12}(\vec{r}_1, t_1, \vec{r}_2, t_2) \qquad (27)$$

where :

$$p_{12}(\vec{r}_1, t_1, \vec{r}_2, t_2) = \langle E_D^-(\vec{r}_1, t_1)\, E_D^-(\vec{r}_2, t_2)\, E_D^+(\vec{r}_2, t_2)\, E_D^+(\vec{r}_1, t_1)\rangle$$

The integrals over $\vec{r}_1$ and $\vec{r}_2$ over the detecting area S_1 and S_2 of the photomultipliers PM1 and PM2 (Fig. 3). We shall assume that these detecting areas are images of each other in the beamsplitter BS, such that $S_1 = S_2 = S$.

$E_D(\vec{r}, t)$ is given as a sum over the emitting pairs of atoms, labelled by k[8] :

$$E_D^+(\vec{r}, t) = \sum_k E_{Dk}^+(\vec{r}, t)$$

$E_{Dk}^+(\vec{r}, t)$ is the contribution of an individual pair of atoms ; assuming that a photodissociation occurs at time t_k and point $\vec{R}_k$, $E_{Dk}^+(\vec{r}, t)$ is given by an expression similar to eq. 22, in which $\vec{R}_o$ is changed into $\vec{R}_k$ and τ into $(\tau - t_k)$.

$p_{12}(\vec{r}_1, t_1, \vec{r}_2, t_2)$ thus appears as a quadruple sum, which must be averaged over the random position $\vec{R}_k$ and time t_k. Due to the random phases of the different emitters, this sum can be written[4] :

$$p_{12}(\vec{r}_1, t_1, \vec{r}_2, t_2) = \sum_k \langle E_{Dk}^-(\vec{r}_1, t_1)\, E_{Dk}^-(\vec{r}_2, t_2)\, E_{Dk}^+(\vec{r}_2, t_2)\, E_{Dk}^+(\vec{r}_1, t_1)\rangle$$

$$+ \sum_{l \neq m} \Big\{ \langle E_{Dl}^-(\vec{r}_1, t_1)\, E_{Dl}^+(\vec{r}_1, t_1)\rangle \langle E_{Dm}^-(\vec{r}_2, t_2)\, E_{Dm}^+(\vec{r}_2, t_2)\rangle$$

$$+ \langle E_{Dl}^-(\vec{r}_1, t_1)\, E_{Dl}^+(\vec{r}_2, t_2)\rangle \langle E_{Dm}^-(\vec{r}_2, t_2)\, E_{Dm}^+(\vec{r}_1, t_1)\rangle \Big\} \qquad (28)$$

In a semi-classical theory, i.e. with a non-quantized field, the first term of this sum can be written as an autocorrelation function of the emitted intensity, and is

../..

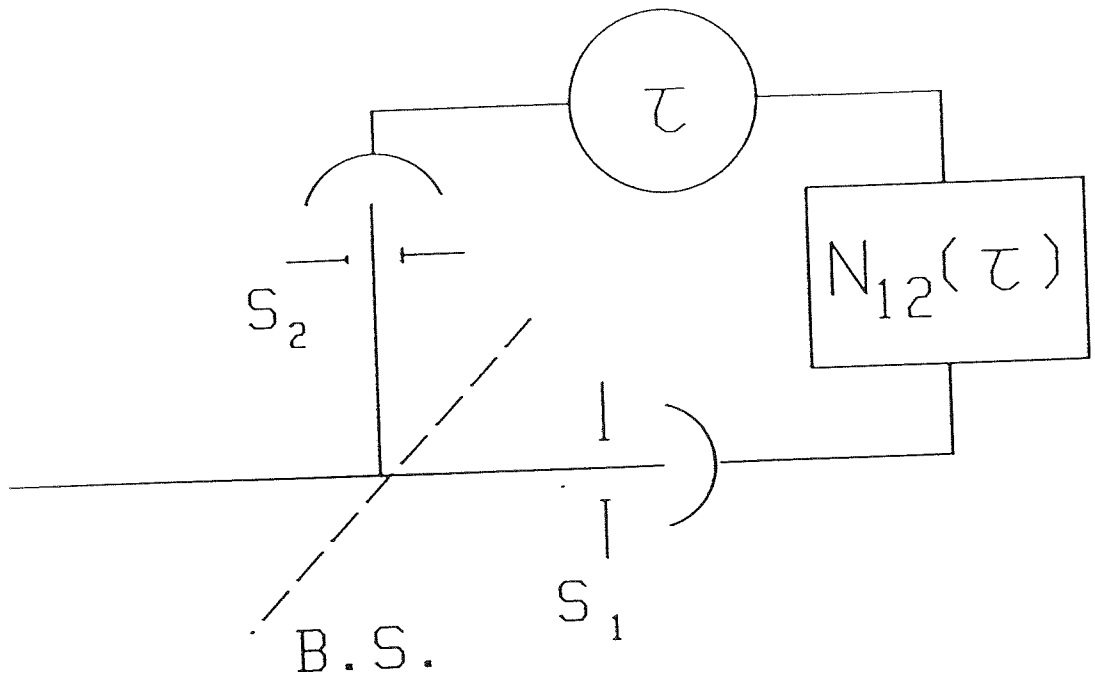


Figure 3 : Possible intensity correlation set-up for the measurement of the joint probability density $P_{12}(t_1, t_2)$. The experimental quantity is the coincidence rate $N_{12}(\tau)$ as a function of $\tau = t_2 - t_1$. The detection areas S_1 and S_2 are images of each other through the beamsplitter B.S..

modulated if the intensity is modulated. Here the result is completely different since $E^{+}_{Dk}(r_2, t_2)\, E^{+}_{Dk}(r_1, t_1)\, |\psi_i\rangle = 0$ (see eq. 22) ; one molecule emits only one photon[20], which can only be detected once.

Thus the contribution of the first term in eq. 28 in zero. After averaging over t_k, the second term appears to be constant (independant of $(t_1 - t_2)$) : it is the usual "accidental coïncidences" term of photon counting experiments, and we denote it C_{12}.

The third term depends on $(t_1 - t_2)$ and also on $(\vec{r}_1 - \vec{r}_2)$; it is convenient to introduce the normalized first-order coherence $g^{(1)}(\vec{r}_1 - \vec{r}_2, t_1 - t_2)$[4], and we obtain :

$$p_{12}(\vec{r}_1, t_1, \vec{r}_2, t_2) = C_{12}(1 + |g^{(1)}(\vec{r}_1 - \vec{r}_2, t_1 - t_2)|^2) \qquad (29)$$

To proceed further, let us recall some basic properties of the function $|g^{(1)}(\vec{r}_1 - \vec{r}_2, t_1 - t_2)|$. This function has non-negligible value in an area σ_c around $(\vec{r}_1 - \vec{r}_2) = \vec{0}$, and in a time interval τ_c around $(t_1 - t_2) = 0$. The quantities σ_c and τ_c are respectively the coherence area and the coherence time of the emitted light. From eq. 28 and 29, we see that $|g^{(1)}(\vec{0}, 0)| = 1$; the function $|g^{(1)}(\vec{r}_1 - \vec{r}_2, t_1 - t_2)|$ is therefore decreasing from 1 to 0 as $|\vec{r}_1 - \vec{r}_2|$ or $|t_1 - t_2|$ increase. Eventually, let us notice that $|g^{(1)}(\vec{0}, t_1 - t_2)|$ is nothing but the Fourier transform of the frequency spectrum of the emitted light ; when several spectral components are involved, some modulations may be expected during the coherence time τ_c.

However, the visibility of these modulations will depend on spatial coherence conditions. Indeed, let us now calculate the measured quantity $P_{12}(t_1, t_2)$ given by eq. 27. Assuming $\sigma_c \ll S$, the spatial integration over $\vec{r}_1$ and $\vec{r}_2$ yields :

$$P_{12}(t_1, t_2) = C_{12}\, S^2 \left(1 + \frac{\sigma_c}{S} |g^{(1)}(\vec{0}, t_1 - t_2)|^2\right) \qquad (30)$$

../..

In the opposite case $S \ll \sigma_c$, we would get :

$$P_{12}(t_1, t_2) = C_{12} S^2 (1 + |g^{(1)}(\vec{0}, t_1 - t_2)|^2) \quad (31)$$

Using the relations $g^{(1)}(\vec{0}, 0) = 1$ and $g^{(1)}(\vec{0}, \infty) = 0$, we have :

$$P_{12}(t, t) = 2 P_{12}(t, t + \infty)$$

This is well-known Hanbury-Brown and Twiss effect. In this case, some modulations may be expected during the decrease of $|g^{(1)}(\vec{0}, t_1 - t_2)|^2$ from 1 to 0 ; note that some care must be taken to observe such modulations, since $|g^{(1)}(0, t_1 - t_2)|$ is sensitive to the inhomogeneous linewidth of the transition, via the coherence time τ_c.

However, if $\sigma_c \ll S$, the visibility of the modulation is at best $\sigma_c/S \ll 1$ (see Eq. 30). In this case, the modulation is likely to be overwhelmed by counting noise ; a quantitative discussion relevant to our experimental situation will be given in Part III.

2 - Molecular physics discussion

2-1 - Previous works about molecular states of Ca_2

A general quantum mechanical treatment of photodissociation by a C.W. laser has been presented in Ref. (6). However, the interference between the fields radiated by the two atoms was not taken into account then, and such a treatment should be quite intricate for describing the present experiment. Therefore, our aim here is to justify the initial state $|\psi_{in}\rangle$ used in the previous section. Moreover, we shall study more precisely the recoil speed distribution of the Calcium atoms after the excitation by the laser pulse.

In Ref. (6), the knowledge concerning the electronic states of Ca_2 was summarized. Some new results have been obtained since, concerning mainly the A and B $^1\Sigma_u^+$ states[9-11]. In fact we are mainly interested in the X $^1\Sigma_g^+$ ground state, well known thanks to the work of Vidal[12], and in the $^1\pi_u$ state dissociating in $Ca(^1S_0) + Ca(^1P_1)$, already known through an experiment performed on

Ca_2 trapped in rare gas matrices [13].

Our previous results [6, 14] concerning the polarization of the Ca atomic fluorescence (422.7 nm) excited by photodissociation of Ca_2 molecules by a C.W. laser at 406.7 nm have shown unambigously that the molecular excited state involved is this $^1\pi_u$ state (Fig. 4) . For large value of the internuclear distance[15], the part of this state corresponding to internal degrees of freedom is well approximated by a symmetrized product of atomic wavefunctions for atoms a and b (see Eq. 10) :

$$|^1\pi_u\rangle_{\delta\to\infty} = \frac{1}{\sqrt{2}} \{|g\rangle_a |e\rangle_b + |e\rangle_a |g\rangle_b\}$$

where $|g\rangle$ is the $4s^2\ ^1S_o$ atomic ground state, and $|e\rangle$ a coherent superposition of the $m_J = \pm 1$ sublevels of the excited 4s 4p $^1P_1$ state[6, 14].

2-2 - External degrees of freedom

The wavepacket describing the relative motion of the two atoms is essentially a superposition of levels of the continuum of the $^1\pi_u$ state, depending on the dynamics of the photodissociation process. For the nearly Fourier-transform pulses used in our experiment, a reasonable assumption for the initial dispersion of the relative position $\Delta|R_a - R_b|$ is the distance $(v\,\tau_L)$, where v is the recoil velocity and τ_L the pulse duration. Correspondingly, one shows easily that :

$$\Delta|P_a - P_b| \sim \frac{\hbar\omega_o}{c} \frac{(\delta\omega)_L}{\Omega_o} \qquad (32)$$

where $\tau_L(\delta\omega)_L \sim 1$, and $\Omega_o = \omega_o \frac{v}{c}$.

We have assumed in Part I that $\Delta|R_a - R_b|$ was much smaller that λ_o. One can easily check that eq. 32 gives in that case $\Delta|P_a - P_b| \gg h/\lambda_o$; our hypothesis are therefore consistent with the Heisenberg relation $\Delta|R_a - R_b|\ \Delta|P_a - P_b| \geq \hbar$.

../..

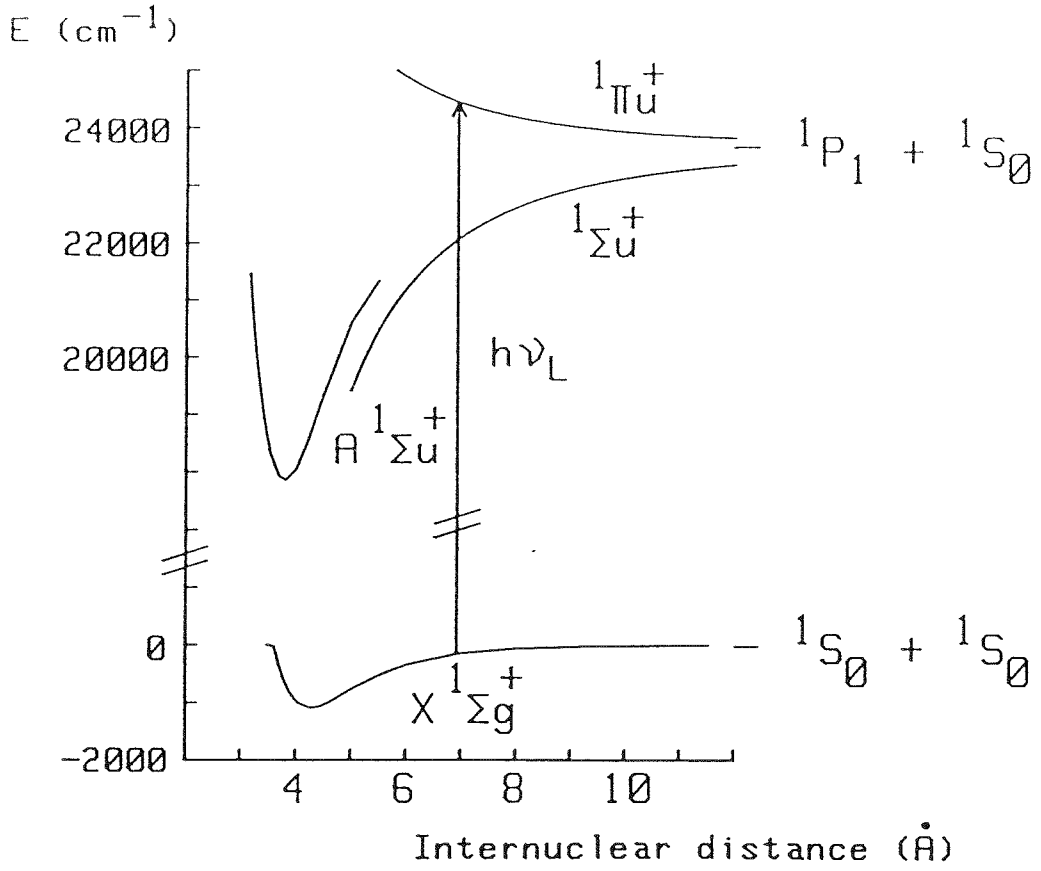


Figure 4 : Potential curves for the $X\,^1\Sigma^+_g$, $A\,^1\Sigma^+_u$, $^1\Sigma^+_u$ and $^1\Pi_u$ states discussed in the text. The arrow corresponds to the vertical transition with an energy equal to the energy of the laser photons (at 406.7 nm). This graphical representation clearly exhibits the fact that the experiment involves only the relatively long range part of the X and $^1\Pi_u$ potential curves.

There is also an upper limit on $\Delta |P_a - P_b|$, in order not to wash out the modulation by an excessive velocity spread ; the corresponding limit on $(\delta\omega)_L$ is $(\delta\omega)_L << (\omega_L - \omega_o)$. It is clearly satisfied in our experiment.

Eventually, a practical limiting factor to be considered is the velocity spread, due to the initial distribution in the rovibrational levels of the X-state. This point is discussed in the next sections, and we shall obtain both a mean value and a r.m.s. deviation of the recoil velocities in the actual experiment.

2-3 - Excitation process

During their flight across the laser beam, the molecules are irradiated by a train of a few (up to 5 or 6) pulses, with a pulse peak power about 60 kW/cm^2. Since the time between pulses (12 ns) is much longer than the times relevant to the experiment (a few ns), the effects of the various pulses add incoherently. We can describe this excitation process by an excitation rate γ (v", J", M") as long as the Rabi frequency describing the $X\ ^1\Sigma_g^+ - {}^1\Pi_u$ coupling is not too large ; this conditions is satisfied here as discussed in Ref. 6. The excitation rate of the level X(v", J", M") is :

$$\gamma(v''\ J''\ M'') = \frac{2\Pi}{\hbar} \sum_{JM} |\langle X(v''\ J''\ M'')\ |\vec{D}\ .\ \vec{E}_L|\ ^1\Pi_u\ \varepsilon_c\ J\ M\rangle|^2$$

where $\vec{D}.\ \vec{E}_L$ is the molecule-laser field coupling, and the energies ε_c (continuum level) and $E_{v''\ J''\ M''}$ (ground level) satisfy $\varepsilon_c = E_{v''\ J''\ M''} + h\nu_L$. This excitation rate is a function of M". After averaging over M", in the high J" limit, one gets :

$$\gamma(v''\ J'') = \frac{2\Pi}{3\hbar}\ E_L^{\ 2}\ |\langle X(v''\ J'')\ |\ D_1^{\ 1}\ |\ ^1\Pi_u\ \varepsilon\rangle|^2$$

This expression involves the Franck-Condon density (FCD) $|\langle X(v''J'')|\ ^1\Pi_u\varepsilon\rangle|^2$ (the matrix element of the dipole is assumed to be independant of δ in the important range of internuclear distance).We have calculated the FCD, using the approximation formula given by Child[16], which seems sufficient here.

../..

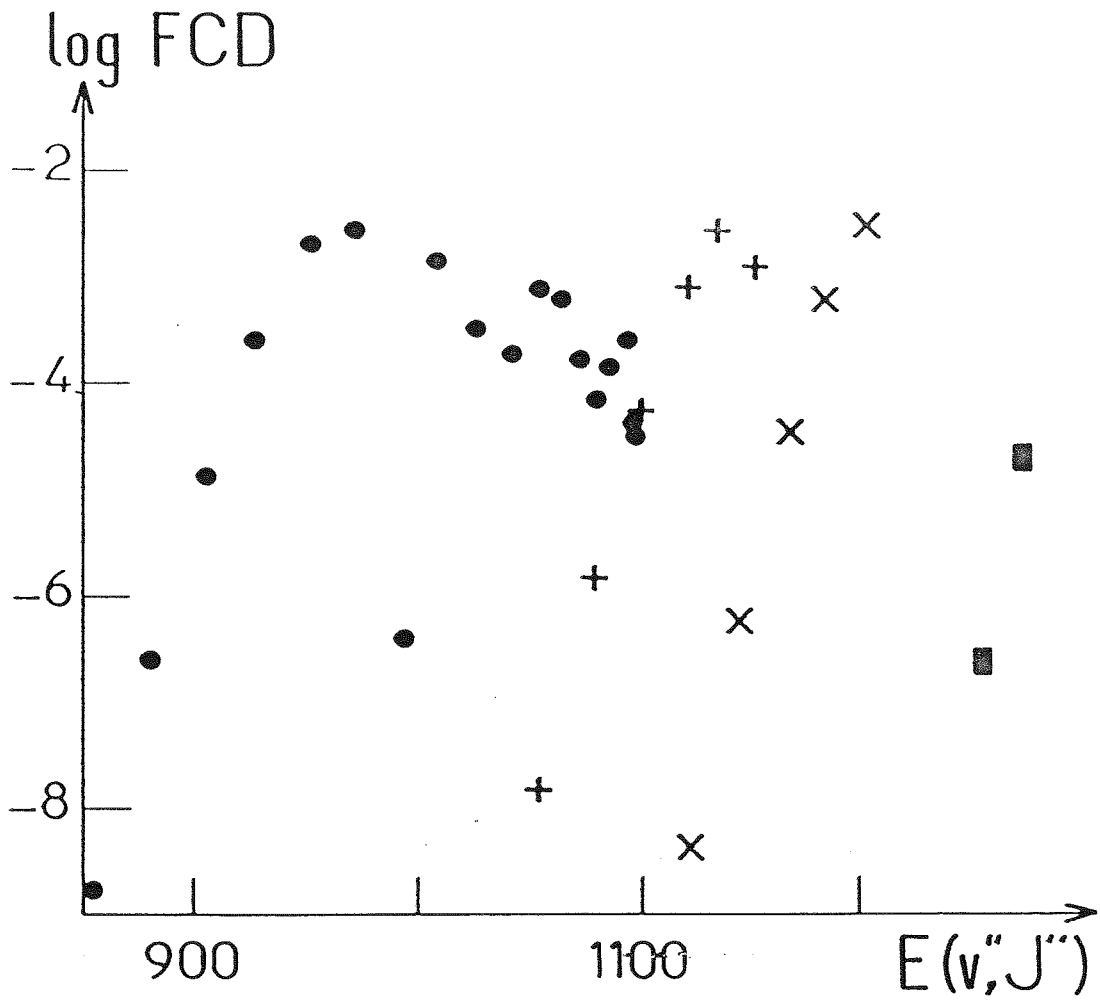


Figure 5 : Plot of $\log_{10}$ FCD (in cm) as a function of the energy of the state X(v" J") for various values of J" (. J" = 0, + J" = 100 x J" = 118, □ J" = 141). The spread of the data for J" = 0 is explained by the fact that the FCD is a rapidly oscillating function of E for low J" values.

In Figure 5 the FCD is plotted as a function of the energy of the level X(v" J"), for some selected values of J". Using the molecular dipole moment deduced from the atomic value, we can obtain the excitation rate corresponding to the maximum value of the FCD :

$$\gamma_{max} \sim 6\ 10^{10}\ s^{-1}$$

As the molecules are submitted to several pulses of 120 ps each, the number of excited molecules, at the maximum of the F.C.D., is not linear as a function of the laser power ; however, the linear regime may be considered as a reasonable approximation, since it applies to most of the rovibrational levels. In this approximation, the photodissociation signal due to the level X(v" J") is simply proportionnal to the product of the population of this level P(v" J") by the corresponding FCD. It is then easy to calculate the repartition of recoil energies if we know P(v" J"). The next paragraph discuss this point.

2-4 - Ca_2 molecular beam

Our beam works in a supersonic regime. The source pressure p_o and the oven diameter D are sufficient (D ≅ 0.5 mm ; p_o = 67 mbar for T ∿ 1 400 K). Moreover, Meiwes-Broer[17] has produced and characterized a supersonic Calcium beam in similar conditions (D ≅ 0.8 mm ; p_o ≅ 12 mbar for T ∿ 1250 K). He has measured the translational temperature by time of flight analysis, and the rovibrational temperature of low lying levels by laser induced fluorescence, with the same result T = 150 K.

Unfortunately, these measurements are not sensitive to the population of the states close to the dissociation limit, which are responsible for our photodissociation process. Usually, in a supersonic expansion the relaxation is not complete and the population of highly excited rovibrational levels is not described by the temperature measured for the first levels. Moreover, we are going to see that high J" quasibound levels, above the dissociation limit of the J" = 0 ground state, seem to contribute to the observed signal ; such states can be created by 3 body collisions in the first stages of the expansion.

The lifetime of these states can be estimated by a simple tunnel effect model, involving the energy of the state and the "thickness" of the rotational barrier. We shall assume that a given quasibound level will contribute if its lifetime is greater than the time of flight between the aperture of the oven and the interaction region (0.1 ms).

In any case, the FCD is important only for levels at less than 250 cm^{-1} from the dissociation limit ; a reasonable assumption is thus to take the population P(v" J") proportional to the statistical weight (2 J" + 1).

2-5 - Recoil energy distribution

To summarize previous discussions, the contribution of an "enough bound" level X(v" J") to the signal is taken proportionnal to the product of the FCD by (2 J" + 1) ; knowing the energy of this level, it is then easy to calculate the recoil energy distribution. The result is plotted on Fig. 6 ; we have gathered the contributions of all the levels inside a given 10 cm^{-1} interval.

We see that levels above the dissociation limit D_e contribute appreciably to the signal, and the mean energy E_m of the contributing levels is very close to D_e.

The average recoil energy is :

$$\bar{E}_r = 912 \text{ cm}^{-1}$$

and its r.m.s. deviation is small :

$$\Delta E_r = \left| \overline{(E_r - \bar{E}_r)^2} \right|^{1/2} = 64 \text{ cm}^{-1}$$

The corresponding recoil speed and r.m.s. deviation are :

$$\bar{v} = 1045 \ (\pm 40) \text{ ms}^{-1}$$

../..

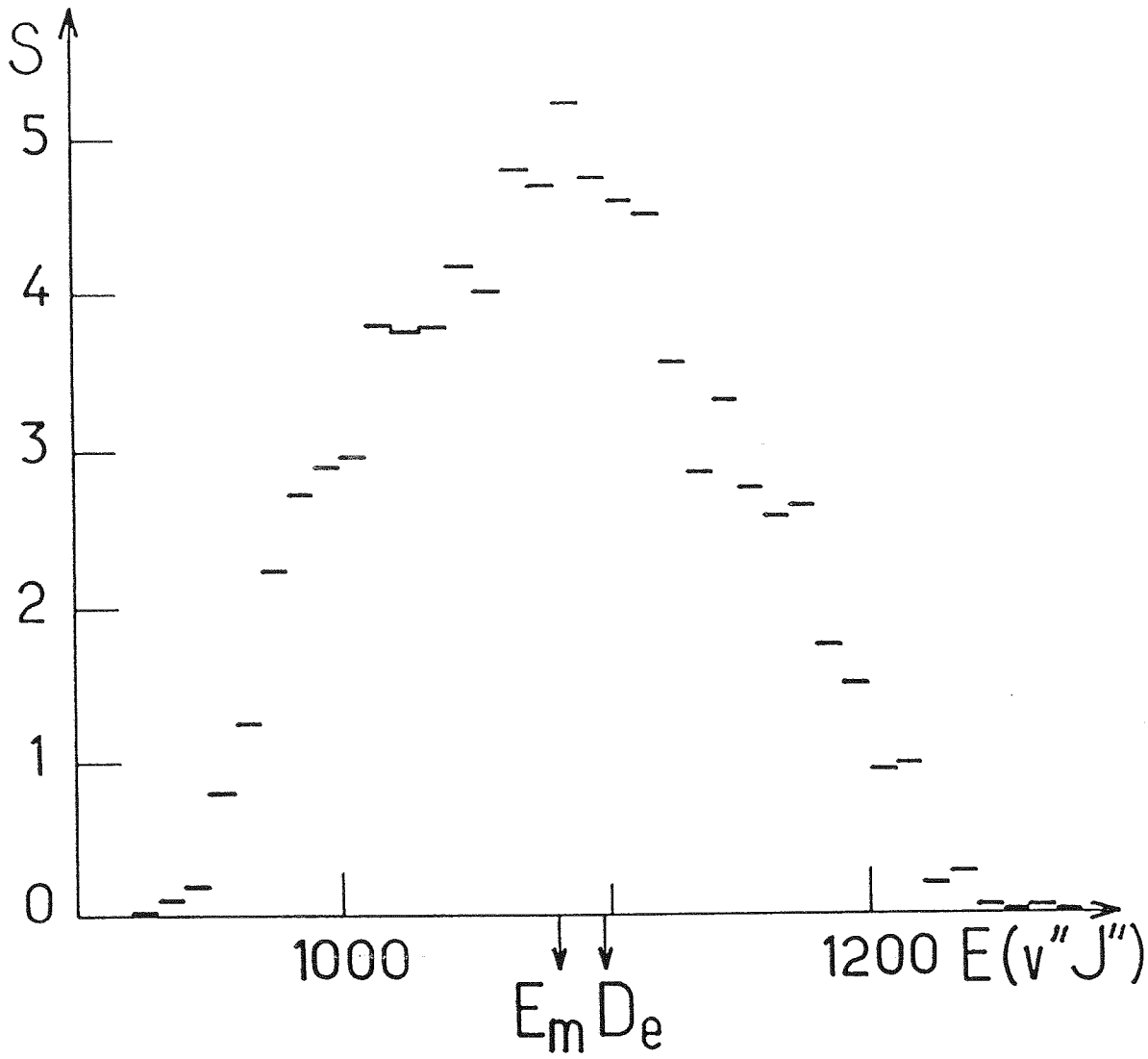


Figure 6 : Photodissociation signal as a function of the energy E(v" J") of a level X(v" J") ; each horizontal bar indicate the contribution of a given 10 cm^{-1} interval. The mean energy E_m of this distribution is very close to the dissociation limit D_e, due to the contribution of quasi-bounds levels.

The value deduced from the beat frequency is :

$$v_{exp} = 1100 \pm 70 \text{ ms}^{-1}$$

which is in agreement with the calculated value within one standard deviation. If quasi-bound levels were not taken into account, the calculated value would be 1020 ($\pm$ 20) ms^{-1}, increasing the discrepancy to more than one standard deviation.

Though this difference is not fully conclusive, this result gives an indication that quasibound states cannot be excluded "a priori" when levels close to the dissociation limit are involved.

Eventually, let us notice that the Franck-Condon density has an effect on the transition probability strong enough to select only a narrow range of velocities ($\Delta\bar{v}/\bar{v} < 5$ %) ; such a circumstance is very favourable from the point of view of our experiment.

3 - Discussion of the Ca_2 experiment

3-1 - Experimental set-up

The experimental set-up, already described elsewhere[1], is sketched on Fig. 7. A molecular beam of Calcium is irradiated by the 406.7 nm violet line of a mode-locked Krypton ion laser (Spectra-Physics 171-01). Mode-locking is achieved by standard techniques (intracavity acousto-optical modulation) and yields pulses with 120 ps full width half maximum, at a repetition rate 82.3 MHz. The average power is 60 mW.

The laser beam is focused at the interaction region (beam waist radius at $1/e^2 \cong 30$ µm). The fluorescent light is collected by a wide aperture aspherical lens (f/0.8) with its axis in a direction perpendicular to both the atomic beam and the laser polarization (see Fig. 1) ; the lens is followed by an interference filter

../..

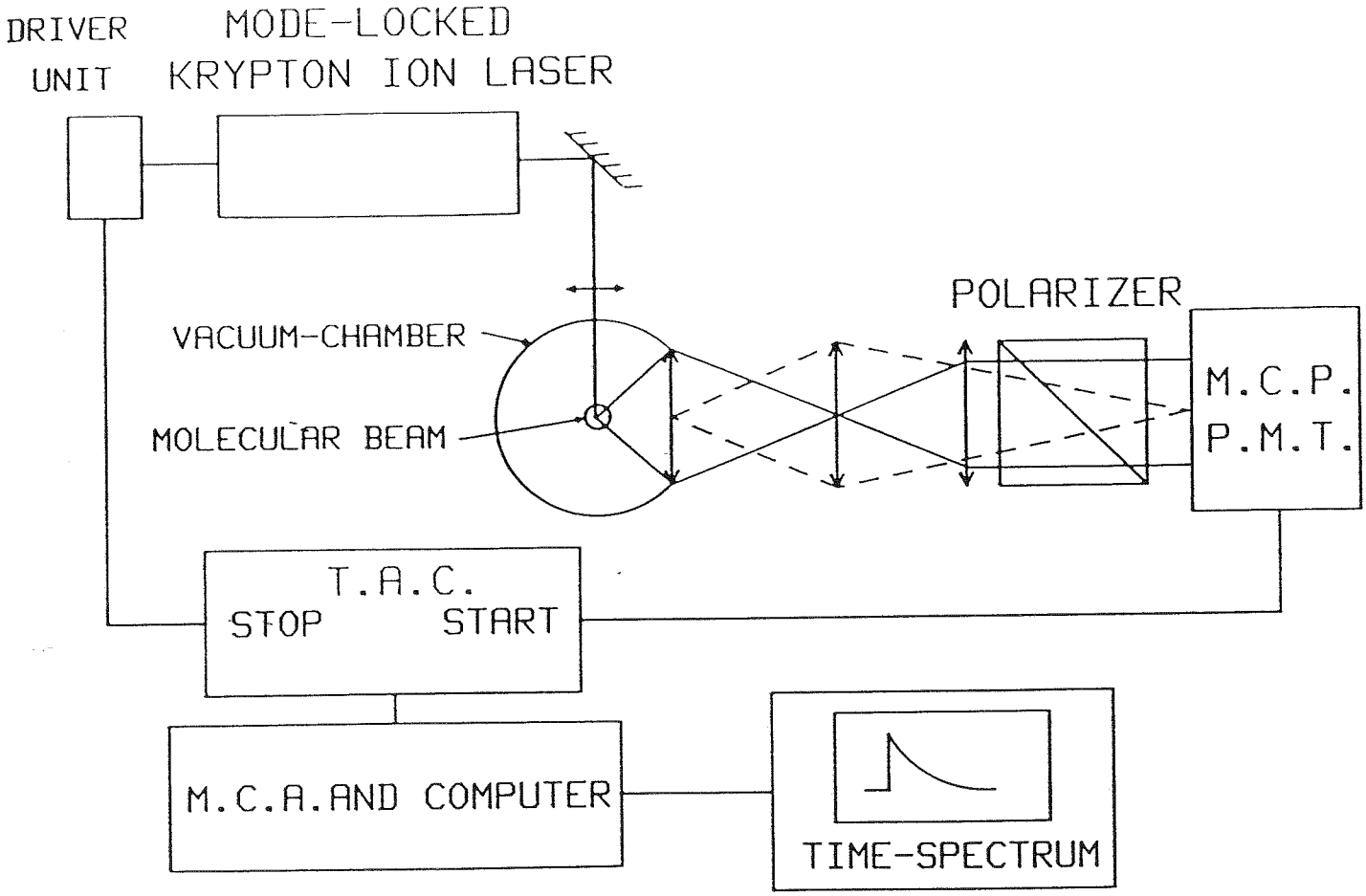


Figure 7 : Experimental set-up (see text).

centered at 422.7 nm (2 nm FWHM), a polarizer with an orientation // or $\perp$, (Fig. 1), and the detector.

The overall detection efficiency of the detection channel is about 10^{-3}. In order to achieve a sufficient time resolution, we have used a micro-channel photomultiplier tube (Hamamatsu R 1645 U or ITL CPP M3) ; the transit-time-spread of these tubes, which limits intrinsically the time resolution in the single photoelectron counting mode, is about 100 ps (full width at half maximum).

The pulse from the M.C.P. PMT is shaped by a constant-fraction discriminator, then it feeds the START input of a time-to-digital converter. When a start pulse is present, a NIM logic module allows a pulse synchroneous with the radio frequency of the mode-locker to be fed to the STOP input of the T.D.C.. After accumulation of the data in the memory of a computer acting as a multichannel analyzer, we obtain a time-spectrum with 50 ps per channel.

The overall resolution of the system has been measured by allowing air to fill the vacuum chamber. The Rayleigh scattering of the mode-locked laser light by air about atmospheric pressure is sufficient to yield a time-spectrum of the laser pulse (Fig. 8). Some care had to be taken to avoid extra peaks, due to stray reflections onto some parts of the optics. A gaussian curve with 180 ps full width at half maximum can be fitted onto the laser pulse time-spectrum. It renders an account of the time resolution of the whole experimental system. Theoretical time-spectrum for the fluorescence of Ca_2 molecules are then derived by convoluating the formulas of § 1.6 by the laser pulse time-spectrum. Three parameters remain free for the final fitting :

(i) The time origin

(ii) The flat background due to dark counts of the PMT

(iii) The modulation frequency $\Omega_o/2\pi$

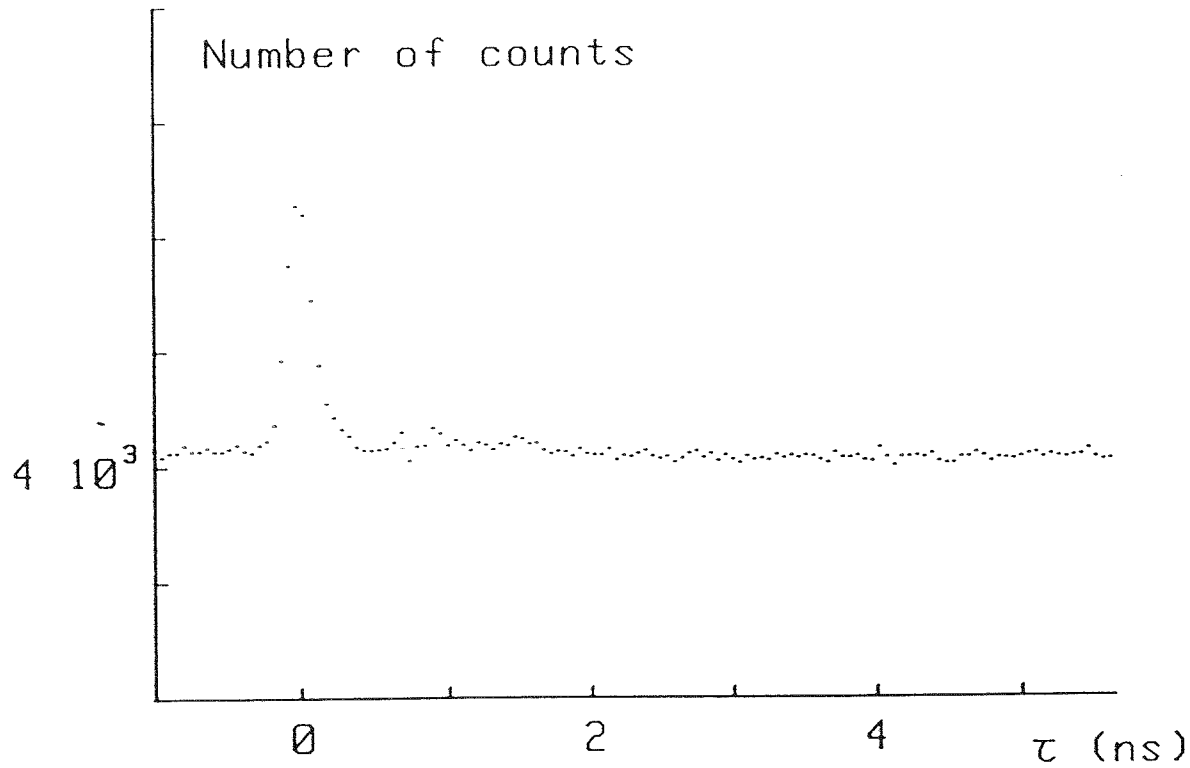


Figure 8 : Laser pulse time-spectrum obtained from Rayleigh scattering of the laser light by air at atmospheric pressure (50 ps per channel). The width of the signal (180 ps FWHM), includes contributions from the laser pulse (120 ps), the photomultiplier (100 ps) and the electronics (80 ps).

3-2 - Numerical fits

The result of this fitting procedure are shown on Fig. 9. The agreement for the // polarization is good, yielding the value of the modulation period :

$$\frac{2\pi}{\Omega_o} = 385 \pm 25 \text{ ps}$$

However, a discrepancy appears clearly for the $\perp$ polarization. In order to explain this discrepancy, one must notice that any phenomenon which creates an extra anisotropy among the angular distribution of the molecular axis can produce effects of this type. We consider such phenomena in the following, and discuss their relevance to the observed discrepancy.

(i) Molecular Rotation between excitation and dissociation

This effect has been considered in detail in Ref. 6. It was shown to be small in our experimental situation (overall rotation : less than one radian). Moreover, the first effect of such a molecular rotation would be a depolarization of the fluorescence light, which was not observed in the experiment.

(ii) Failure of the hypothesis leading to eq. 25

Eq. 25 have been obtained assuming an isotropic distribution of recoil axis. However, the other cases treated in Appendix IV have been considered, without reducing appreciably the discrepancy.

(iii) Finite detection solid angle

Some estimations have been made to take into account the collection solid angle (f/. 8 lens). The depolarization due to this wide angle appear to be small (less than 3 %, see Ref. 6), and the corresponding correction on $p_{//}$ or $p_{\perp}$ are not sufficient to get a better fit.

../..

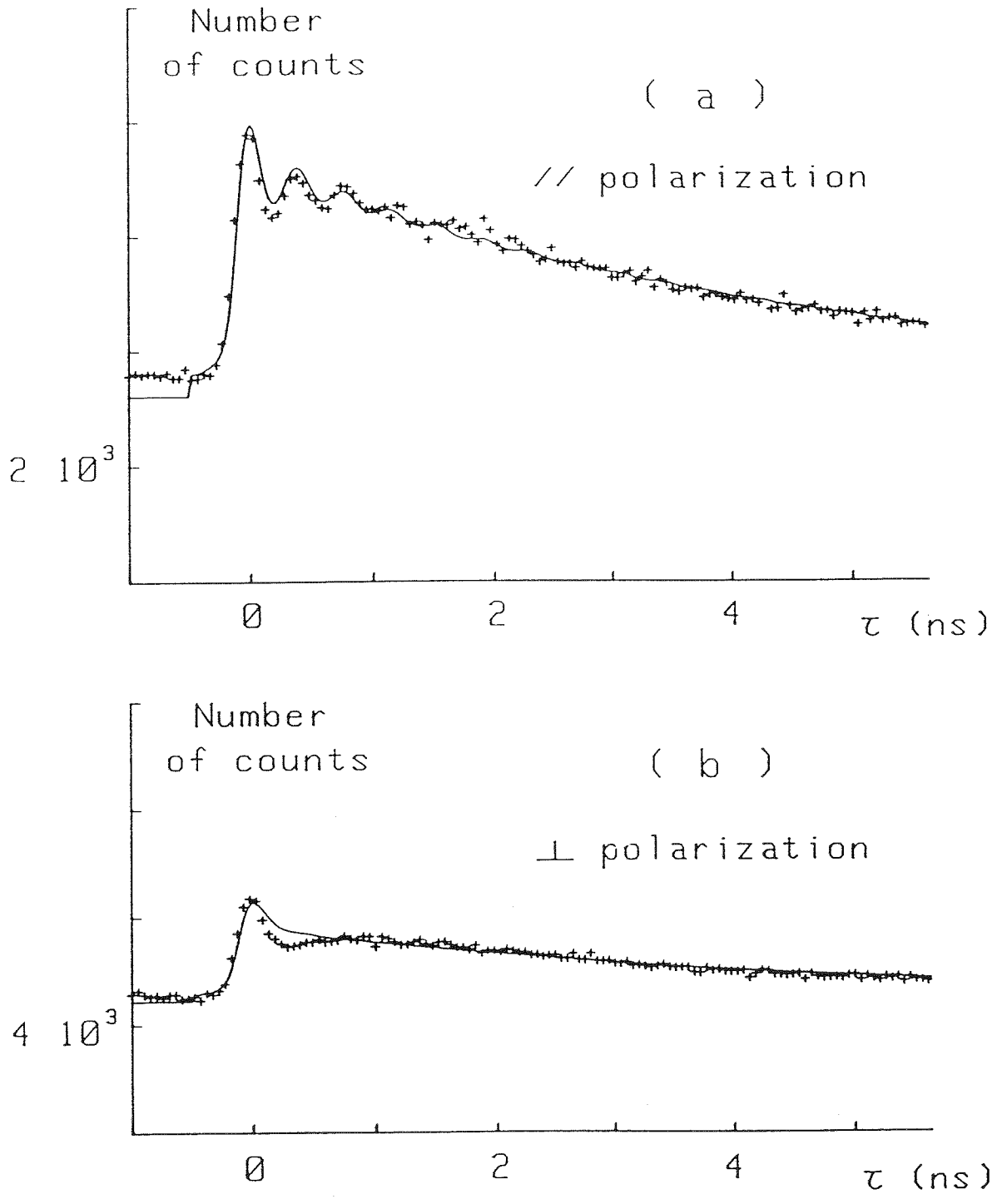


Figure 9 : Experimental data and fitted theoretical curves for parallel (a) and perpendicular (b) polarization configurations. A discrepancy appears mainly on $p_{\perp}$, as a hole around τ = 400 ps. (50 ps per channel).

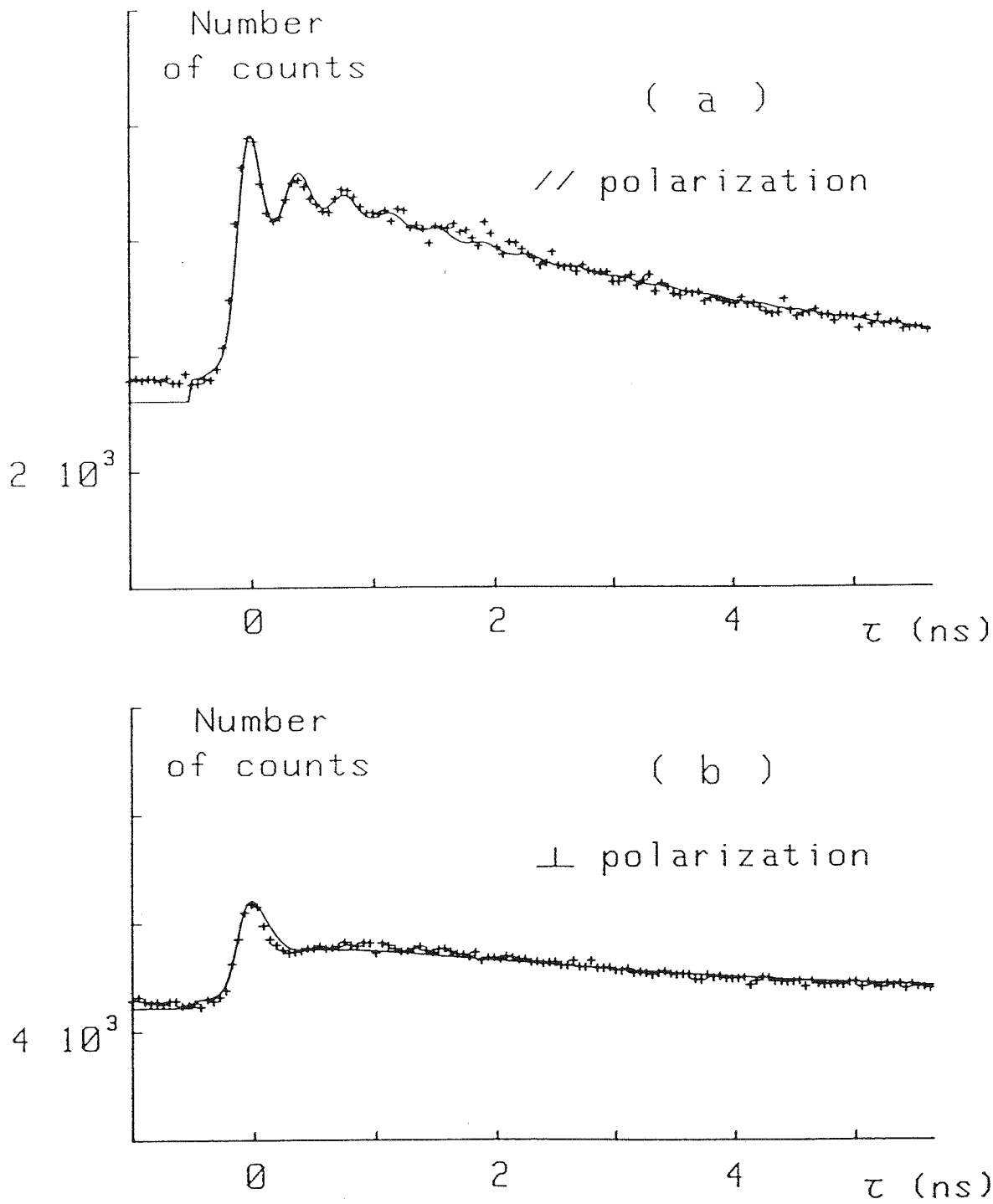


Figure 10 : A better agreement is obtained by including some effects of atomic resonant absorption in the calculations (compare with Fig. 9).

(iv) Resonant reabsorption at λ_o = 422.7 nm

The on-resonance optical thickness of the 0.5 mm atomic beam at a density about 5 10^{11} atoms/cm^3 is much greater than one. But reabsorption of the emitted light is mainly determined by Doppler effect. We have seen that the velocity of the dissociated atoms relative to the center of mass of the molecule is about 500 m/s. Hence the fluorescence light emitted towards the detection axis Oz (Fig. 1) is scattered if Θ is close to $\pi/2$, while it is sufficiently Doppler-shifted to go across the atomic beam if Θ is close to 0. The design of the detection channel makes that only a small fraction of the scattered light is detected[18], so that the net result is a loss of fluorescence light for molecules with Θ close 0.

The exact calculation of the modified angular distribution resulting from this effect is very difficult to handle ; we have taken it into account approximatively by "digging a hole" in the angular distribution for Θ close to $\pi/2$. We see on Figure 10 that this procedure was fairly successful. The previous discrepancy is thus attributed mainly to resonant absorption though other contributions cannot be excluded.

3-3 - Spatial coherence of the source

We have seen in § 1.7 that the visibility of the modulation in a C.W. experiment would be of the order σ_c/S, where σ_c is the coherence area of the source and S the surface of the illuminated part of the photocathode. However, this quantity is more easily evaluated at the source : if the size of the source is d, and the solid angle of collection is Ω_c, we have :

$$\frac{\sigma_c}{S} \sim \frac{\lambda_o^2}{d^2 \Omega_c}$$

Typical orders of magnitude for our experiment are $\lambda_o \sim 0.4\ \mu m$, $d \sim 100\ \mu m$, $\Omega_c \sim 1$ sr and thus $\sigma_c/S \sim 1.5\ 10^{-5}$. The resulting signal must be compared to the

../..

fluctuations of the background C_{12}, due to uncorrelated detections (eq. 30). Assuming that the counting rate of the photodetector is N(in s^{-1}), the fluctuations for a counting time T will be :

$$B \sim \sqrt{N^2 \tau_c T}$$

while the signal is :

$$S \sim \frac{\sigma_c}{S} N^2 \tau_c T$$

The signal-to-noise-ratio is thus :

$$\frac{S}{B} \sim N \tau_c \frac{\sigma_c}{S} \sqrt{\frac{T}{\tau_c}}$$

In our case, $N \sim 5\,000\ s^{-1}$, $\tau_c \sim 10^{-9}$ s, and $\sigma_c/S \sim 10^{-5}$; the counting time T corresponding to $S/B \sim 1$ would be 10 000 years ! On the other hand, the same values except $\sigma_c/S \sim 1$ yield $T \sim 1$ mn. Similar equations hold for spectrum-analyzing experiments[19].

In order to increase σ_c/S, it is not sufficient to reduce Ω_c, since the number of detected photons N would decrease, with no gain on the signal-to-noise ratio. Actually, one must increase the ratio $N/d^2\ \Omega_c$, i.e. the intensity and luminance of the source, without changing the coherence time τ_c. In conclusion, this kind of C.W. experiment appears hardly feasible, and would require an experimental configuration completely different from the one described in this paper.

Conclusion

Since the completion of our experimental work[1], theoretical analysis of the time-resolved fluorescence induced by molecular photodissociation have been proposed by Kurizki and Ben-Reuven[21] and by Diebold[22], using formalisms different from the

../..

one proposed in this paper, but giving essentially the same results. However, let us emphasize that our Heisenberg equations approach gives some clear physical insights into the interference effect. In particular, the interference term between the contributions of the two dipoles appears very clearly ; in our experimental conditions, this term yields the main effect, and the modification of the radiative damping is not directly observed. Moreover, crossed effects involving several molecules were easily taken into account.

Further developments in our experiment would involve the use of a tunable laser, in order to analyse more precisely the molecular bound or continuum states ; such an analysis is beyond the scope of the present paper.

As a conclusion, we shall comment briefly about the symmetrization of the state for two Calcium atoms ; indeed, the initial state of the pair of atoms may be considered as a "delocalized" quantum state[23], with some analogy with non-factorizable states leading to Einstein-Podolsky-Rosen correlations. However, let us emphasize that in our case the complete symmetrization of the wavefunctions would not change any physical prediction : the interference effect is due to the original molecular symmetry, and not to the boson or fermion nature of the atoms. Moreover, the observed effect would be the same if we could perform the experiment by photodissociating a molecule formed of two non-identical atoms[24].

The authors adknowledge fruitful discussions with A. Aspect.

APPENDIX I - Equations for the evolution of the atomic operators

In this appendix we derive eq. (16) from eq.(15). Using standard methods for the calculation of spontaneous emission[3], we can write :

$$\frac{d}{dt}\,\tilde{S}_a^-(t)\,|\psi_{in}\rangle = \sum_\lambda g_\lambda^2\,(2\,\tilde{S}_a^+\tilde{S}_a^- - 1)(\tilde{S}_a^- + \tilde{S}_b^-\,e^{i\vec{k}_\lambda(\vec{R}_a-\vec{R}_b)})$$

$$\times\int_0^t e^{i(\omega_\lambda-\omega_o)(t'-t)}\,dt'\,|\psi_{in}\rangle \qquad (I\text{-}1)$$

$$\frac{d}{dt}\,\tilde{S}_b^-(t)\,|\psi_{in}\rangle = \sum_\lambda g_\lambda^2\,(2\,\tilde{S}_b^+\tilde{S}_b^- - 1)(\tilde{S}_a^-\,e^{i\vec{k}_\lambda(\vec{R}_b-\vec{R}_a)} + \tilde{S}_b^-)$$

$$\times\int_0^t e^{i(\omega_\lambda-\omega_o)(t'-t)}\,dt'\,|\psi_{in}\rangle$$

We then use the relation :

$$\lim_{t\to\infty}\int_0^t e^{i(\omega_\lambda-\omega_o)(t'-t)}\,dt' = \pi\,\delta(\omega_\lambda-\omega_o) - i\,P\,\frac{1}{\omega_\lambda-\omega_o}$$

$$= \lim_{\varepsilon\to 0}\;\frac{-i}{\omega_\lambda-\omega_o-i\varepsilon}$$

Two integral over λ must be calculated :

$$J_1 = \sum_\lambda g^2\left(\left(\pi\,\delta(\omega_\lambda-\omega_o) - i\,P\left(\frac{1}{\omega_\lambda-\omega_o}\right)\right) = \frac{\Gamma}{2} + i\,\Delta\right) \qquad (I\text{-}2)$$

Γ is the inverse of the atomic lifetime already given, and Δ is the level shift, which cannot be calculated correctly for a two-level system, and will be omitted in

../..

the following (Indeed, the total field radiated by a dipole at its own emplacement is not described correctly by our model). The second relevant integral is :

$$J_2 = \sum_\lambda g_\lambda^2 \, e^{i \vec{k}_\lambda \cdot (\vec{R}_a - \vec{R}_b)} \left(\pi \, \delta(\omega_\lambda - \omega_o) - i P \frac{1}{\omega_\lambda - \omega_o} \right)$$

$$= \lim_{\varepsilon \to 0} \sum_\lambda g_\lambda^2 \frac{-ie^{i \vec{k}_\lambda \cdot \vec{\delta}}}{(\omega_\lambda - \omega_o) - i\varepsilon}$$

where $\vec{\delta} = \vec{R}_a - \vec{R}_b$

The angular integrals may be calculated conveniently in the molecular frame, where the axis OZ is parallel to $\vec{\delta}$. Two cases are considered : $\sum$-excited state, where the dipole $\vec{d}_{eg}$ is also parallel to OZ, and π-excited state, where the dipole $\vec{d}_{eg}$ is parallel to some axis OX. We obtain :

$$J_2 = \lim_{\varepsilon' \to 0} \frac{i\Gamma}{2\pi k_o^3} \int dk \, k^3 \, f(k\delta) \left(\frac{1}{k - k_o - i\varepsilon'} \right)$$

where

$$f^\pi(u) = \frac{3}{2} \left(\frac{\sin u}{u} - \frac{\sin u}{u^3} + \frac{\cos u}{u^2} \right) \qquad f^\sum(u) = 3 \left(- \frac{\cos u}{u^2} + \frac{\sin u}{u^3} \right)$$

The above integral can easily be calculated using contour integration, and we obtain :

$$J_2 = \frac{\Gamma}{2} \{ f(k_o\delta) + i \, g(k_o\delta) \} \qquad (I-3)$$

where :

$$g^\pi(u) = \frac{3}{2} \left(- \frac{\cos u}{u} + \frac{\sin u}{u^2} + \frac{\cos u}{u^3} \right)$$

$$g^\sum(u) = - 3 \left(\frac{\sin u}{u^2} + \frac{\cos u}{u^3} \right)$$

../..

Note that :

$$\lim_{u\to 0} f^{\pi}(u) = \lim_{u\to 0} f^{\Sigma}(u) = 1$$

while :

$$\lim_{u\to 0} g^{\pi}(u) = -\frac{1}{2} \lim_{u\to 0} g^{\Sigma}(u) \sim \frac{3}{2} \frac{1}{u^3}$$

Using eq. I-2 and I-3 in I-1, we obtain easily eq. 16, which represent coupled equations for the evolution of $\tilde{S}_a^-(t)$ and $\tilde{S}_b^-(t)$.

APPENDIX II - Time evolution of the atomic operators

The general solution of eq. 16 may be obtained in the four-dimentional space with vector basis ($|e_a\ e_b\rangle$, $|e_a,\ g_b\rangle$, $|g_a,\ e_b\rangle$, $|g_a\ g_b\rangle$. It is more convenient to calculate the time evolution of the operators :

$$\tilde{\Sigma}^+ = \tilde{S}_a^+ + \tilde{S}_b^+$$

$$\tilde{\Delta}^+ = \tilde{S}_a^+ - \tilde{S}_b^+$$

From eq. 16, we obtain :

$$\frac{d}{dt}(\tilde{\Sigma}^+ \tilde{\Sigma}^-) = -\Gamma\,(1 + f(k_o\,\delta))\ \tilde{\Sigma}^+ \tilde{\Sigma}^- + \Gamma\ f(k_o\delta)\ \tilde{\Sigma}^+\tilde{\Sigma}^+\tilde{\Sigma}^-\tilde{\Sigma}^- \tag{II-2}$$

$$\frac{d}{dt}(\tilde{\Delta}^+ \tilde{\Delta}^-) = -\Gamma\,(1 - f(k_o\delta))\ \tilde{\Delta}^+ \tilde{\Delta}^- - \Gamma\ f(k_o\delta)\ \tilde{\Sigma}^+\tilde{\Sigma}^+\tilde{\Sigma}^-\tilde{\Sigma}^-$$

$$\frac{d}{dt}(\tilde{\Sigma}^+ \tilde{\Delta}^-) = -\Gamma\,(1 - ig(k_o\delta))\ \tilde{\Sigma}^+ \tilde{\Delta}^- \tag{II-3}$$

$$\frac{d}{dt}(\tilde{\Delta}^+ \tilde{\Sigma}^-) = -\Gamma\,(1 + ig(k_o\delta))\ \tilde{\Delta}^+ \tilde{\Sigma}^-$$

$$\frac{d}{dt}(\tilde{\Sigma}^+\tilde{\Sigma}^+\tilde{\Sigma}^-\tilde{\Sigma}^-) = -2\,\Gamma\ \ \tilde{\Sigma}^+\tilde{\Sigma}^+\tilde{\Sigma}^-\tilde{\Sigma}^- \tag{II-4}$$

We have cancelled products or combinations of operators which are equal to zero inside the considered space.

Eq. (II-4) yields immediately :

$$(\tilde{\Sigma}^+\tilde{\Sigma}^+\tilde{\Sigma}^-\tilde{\Sigma}^-)\ (t) = \sigma_o\ e^{-2\,\Gamma t}$$

../..

where σ_o is a constant depending on the initial state. We shall restrict ourselves in the following to a single excitation of the system, i.e. $\sigma_o = 0$.

The case of doubly excited systems has been considered in great detail by Richter[25], when the internuclear distance δ is fixed. Let us notice that Ref.25 uses a master equation approach and the quantum regression theorem. Obviously, the same results may be obtained using our Heisenberg equations approach.

Eq. (II-2) and (II-3) then yield :

$$(\tilde{\Sigma}^+\tilde{\Sigma}^-)(t) = (\tilde{\Sigma}^+\tilde{\Sigma}^-)_o \exp\left(-\Gamma\int_0^t (1 + f(k_o\delta))\, dt'\right)$$

$$(\tilde{\Delta}^+\tilde{\Delta}^-)(t) = (\tilde{\Delta}^+\tilde{\Delta}^-)_o \exp\left(-\Gamma\int_0^t (1 - f(k_o\delta))\, dt'\right) \qquad \text{(II-5)}$$

$$(\tilde{\Sigma}^+\tilde{\Delta}^-)(t) = (\tilde{\Sigma}^+\tilde{\Delta}^-)_o \exp\left(-\Gamma\int_0^t (1 - ig(k_o\delta))\, dt'\right)$$

$$(\tilde{\Delta}^+\tilde{\Sigma}^-)(t) = (\tilde{\Delta}\,\tilde{\Sigma})_o \exp\left(-\Gamma\int_0^t (1 + ig(k_o\delta))\, dt'\right) \qquad \text{(II-6)}$$

From these equations, any normal ordered combination of the operators can be easily obtained.

For the initial state $\frac{1}{\sqrt{2}}(|g_a\, e_b\rangle + \varepsilon\, |e_a\, g_b\rangle)$, we get easily $\langle\tilde{\Sigma}^+\tilde{\Sigma}^-\rangle_0 = (1+\varepsilon)$, $\langle\tilde{\Delta}^+\tilde{\Delta}^-\rangle_0 = (1-\varepsilon)$, while $\langle\tilde{\Sigma}^+\tilde{\Delta}^-\rangle_0$ and $\langle\tilde{\Delta}^+\tilde{\Sigma}^-\rangle_0$ are equal to zero ; these results may be recasted in the following form used in eq. 17 :

$$\langle S_a^+ S_a^-\rangle = \langle S_b^+ S_b^-\rangle = \frac{1}{2}\exp\left(-\Gamma\int_0^t (1 + \varepsilon\, f(k_o\delta))\, dt'\right)$$

$$\langle S_a^+ S_b^-\rangle = \langle S_b^+ S_a^-\rangle = \frac{\varepsilon}{2}\exp\left(-\Gamma\int_0^t (1 + \varepsilon\, f(k_o\delta))\, dt'\right) \qquad \text{(II-7)}$$

../..

APPENDIX III - Equations for the evolution of the impulsion operators.

System (18) can be rewritten using the approximations of App. I. Two new integrals appear :

$$J'_1 = \sum_\lambda g_\lambda^2 \hbar\vec{k} \int_0^t e^{i(\omega_\lambda - \omega_o)(t' - t)} dt'$$

$$J'_2 = \sum_\lambda g_\lambda^2 \hbar\vec{k}_\lambda e^{i\vec{k}_\lambda(\vec{R}_a - \vec{R}_b)} \int_0^t e^{i(\omega_\lambda - \omega_o)(t' - t)} dt'$$

The angular integration over $\vec{k}$ yields $J'_1 = 0$. We define $\vec{grad}_{\vec{\delta}}$ where $\vec{\delta} = \vec{R}_a - \vec{R}_b$ as the gradient relative to the composants of $(\vec{R}_a - \vec{R}_b)$; J'_2 can be transformed :

$$J'_2 = \frac{\hbar}{i} \vec{grad}_{\vec{\delta}} J_2$$

$$= \frac{\hbar\Gamma}{2i} \vec{grad}_{\vec{\delta}} (f(k_o\delta) + ig(k_o\delta))$$

where J_2, $f(k_o\delta)$ and $g(k_o\delta))$ have been defined in App. I.

Recombining the two equations of system (18), we obtain finally :

$$\frac{d}{dt}(\vec{P}_a + \vec{P}_b) = (\tilde{S}_a^+ \tilde{S}_b^- - \tilde{S}_b^+ \tilde{S}_a^-)\, i\hbar\Gamma \vec{grad}_{\vec{\delta}} (f(k_o\delta))$$

$$\frac{d}{dt}(\vec{P}_a - \vec{P}_b) = (\tilde{S}_a^+ \tilde{S}_b^- + \tilde{S}_b^+ \tilde{S}_a^-)\, \hbar\Gamma \vec{grad}_{\vec{\delta}} (g(k_o\delta))$$

The first equation means that the average recoil is not zero if the excitation is anisotropic (e.g. one excited atom, one ground state atom). The second equation gives the interaction between the two atoms, which is discussed in § 1-4 for our initial state $|\psi_{in}\rangle$.

APPENDIX IV - Angular averaging

The recoil direction of the atoms is characterized by the angle θ, ϕ defined on Fig. 1. The excited dipole is obtained as the projection of the dissociating electric field $\vec{E}_L$ onto the molecular axis for a Σ-state, and onto a plane orthogonal to the molecular axis for a Π-state. Taking $\vec{E}_L$ along Ox, the corresponding weighting function are :

$$W_e^{\Sigma}(\theta, \phi) = \sin^2\theta \cos^2\phi$$

$$W_e^{\Pi}(\theta, \phi) = \sin^2\theta \sin^2\phi + \cos^2\theta$$

The detected intensity if obtained as the projection of the excited dipole onto Ox (// polarization) or Oy ($\perp$ polarization). Denoting $W_d(\theta, \phi)$ the corresponding weighting function, the angular average of the interference term $(1 + \varepsilon \cos(\Omega_o \tau \cos\theta))$ is given by :

$$I(\alpha) = \frac{1}{4\Pi} \iint d\phi \, d\theta \, \sin\theta \, W_e(\theta,\phi) \, W_d(\theta,\phi) \, (1 + \varepsilon \cos(\alpha \cos\theta))$$

where $\alpha = \Omega_o \tau = \omega_o v \tau/c$.

We give below the expressions of $I(\alpha)$ for the states which are coupled to the $X\,^1\Sigma_g^+$ ground state by a dipolar transition, i.e. the $^1\Sigma_u$ and $^1\Pi_u$ excited states ($\varepsilon = +1$).

$$I_{//}^{\Sigma}(\alpha) = 3\, I_{\perp}^{\Sigma}(\alpha) = 3\left(\frac{1}{15} + \left(-\frac{1}{\alpha^3} + \frac{3}{\alpha^5}\right)\sin\alpha - \frac{3}{\alpha^4}\cos\alpha\right)$$

$$I_{//}^{\Pi}(\alpha) = \frac{8}{15} + \left(\frac{1}{\alpha} - \frac{5}{\alpha^3} + \frac{9}{\alpha^5}\right)\sin\alpha + \left(\frac{2}{\alpha^2} - \frac{9}{\alpha^4}\right)\cos\alpha$$

$$I_{\perp}^{\Pi}(\alpha) = \frac{1}{15} + \left(-\frac{1}{\alpha^3} + \frac{3}{\alpha^5}\right)\sin\alpha - \frac{3}{\alpha^4}\cos\alpha$$

../..

Note that the corresponding polarization $(I_{//} - I_{\perp})/(I_{//} + I_{\perp})$ is equal to 1/2 for a Σ-state, and oscillates slightly around the value 7/9 for a Π-state.

The values given in the text are obtained from a similar averaging, but taking $W_e(\theta, \phi) = 1$ (isotropic excited molecular state distribution).

Conclusion

Nous avons présenté dans ce mémoire plusieurs expériences, qui font explicitement intervenir l'ensemble des propriétés quantiques des phénomènes lumineux. Cette nature quantique de la lumière - qui n'est certes pas une nouveauté - n'est que très partiellement prise en compte en optique ondulatoire classique ; les nombreuses discussions à propos des "interférences à un seul photon" en portent le témoignage. Nos expériences ont en quelque sorte valeur de réalisations concrètes d'expériences de pensée, et établissent les points suivants :

- en utilisant une cascade radiative (ou une autre source de "paires de photons") il est possible de préparer un état du champ très proche d'un "état à un seul photon". Un tel état ne peut pas être décrit dans le cadre de l'optique ondulatoire classique, et donne lieu à un phénomène d'anticorrélation entre les photodétections observées de part et d'autre d'une lame semi-réfléchissante. Nous avons observé cet effet d'anticorrélation, pour une cascade radiative du Calcium, en employant des techniques de comptage rapide pour isoler dans le temps l'émission d'un atome unique.

- en effectuant une expérience d'interférence avec la même source et le même schéma de détection, et en utilisant un interféromètre à division d'amplitude au voisinage de la teinte plate, nous avons observé un contraste des franges d'interférence "à un seul photon" supérieur à 98 %.

- dans le cadre de la théorie quantique, les effets d'interférences apparaissent comme interférences entre les amplitudes de probabilités associées à différents "chemins" possibles pour l'évolution du système. On peut ainsi interpréter simplement deux autres expériences que nous avons réalisées, et qui généralisent la notion d'interférences à un seul photon. Dans la première de ces expériences, les "chemins" mis en un jeu correspondent au passage par différents sous-niveaux Zeeman d'un atome unique. Dans la seconde expérience, où on considère deux atomes issus de la photodissociation d'une molécule Ca_2, les chemins sont associés à l'émission par l'un ou l'autre atome.

Nous avons donc réalisé un ensemble d'expériences originales illustrant de façon très directe la dualité onde/corpuscule de la lumière. Ces expériences peuvent être rapprochées d'autres expériences d'interférences, réalisées avec des électrons[80] et des neutrons[81], qui sont des particules massives dont

le comportement (à l'approximation non-relativiste) est décrit par l'équation de Schrödinger. Plus de cinquante ans après la formulation des premières "expériences de pensée", l'unification quantique des notions "complémentaires" d'onde et de corpuscule a donc été illustrée dans tous les domaines de la physique.

Remarquons que d'autres expériences d'interférences utilisant une lumière "non-classique" peuvent être envisagées. On pourrait par exemple, utiliser une source constituée d'un atome ou d'un ion unique piégé[82] ; les propriétés "non-classiques" d'une telle source, qui n'ont pas encore été complètement étudiées expérimentalement, seraient de toute évidence très spectaculaires. Il est également possible de concevoir une expérience d'interférences à un seul photon, associée à un dispositif de "choix retardé" : il serait ainsi possible de se rapprocher encore de l'expérience de pensée proposée par Wheeler[53].

Au delà des expériences de principe, ce travail s'inscrit dans un contexte international très actif d'études de propriétés non-classiques de la lumière. Un des enjeux de ces travaux est la possibilité de contourner le "bruit de photons" ("shot-noise") qui limite actuellement la précision de toutes les mesures impliquant la détection d'un flux lumineux. Un des processus physiques qui semblent être à la base de cette possibilité est précisément l'aptitude de certains systèmes à émettre des paires de photons très fortement corrélées ; ce phénomène qui apparait dans plusieurs processus d'optique non-linéaire, semble donc appelé à jouer un rôle essentiel, non seulement dans les expériences de "mise en évidence" de propriétés non-classiques de la lumière, mais aussi dans celles qui auront pour but de rendre ces propriétés utilisables.

Annexe 1

INTEGRATIONS ANGULAIRES DES SIGNAUX DE CORRELATION

Cette annexe présente les calculs d'intégrations angulaires des signaux de corrélation.

I - Calcul des constantes de normalisation

a) Notations

Nous avons calculé dans le § I-B le signal de corrélation correspond à des détections en $(\vec{r}_A, t)$ et $(\vec{r}_B, t + \tau)$, pour les angles solides de collection infinitésimaux $d\Omega_1$ et $d\Omega_2$:

$$P_{AB}(\tau) = K_{AB} \left| f(\vec{\varepsilon}_A, \vec{\varepsilon}_B) \right|^2 H(\tau)\, e^{-\Gamma\tau}\, \frac{d\Omega_A}{4\pi}\, \frac{d\Omega_B}{4\pi} \qquad (A\text{-}I\text{-}1)$$

où on a posé :

$$f(\vec{\varepsilon}_A, \vec{\varepsilon}_B) = (\varepsilon_{xA}\, \varepsilon_{xB} + \varepsilon_{yA}\, \varepsilon_{yB}) \cos \omega_Z \tau$$

$$+ (\varepsilon_{xA}\, \varepsilon_{yB} - \varepsilon_{yA}\, \varepsilon_{xB}) \sin \omega_Z \tau + \varepsilon_{zA}\, \varepsilon_{zB} \qquad (A\text{-}I\text{-}2)$$

Par convention, $\vec{\varepsilon}_A$ et $\vec{\varepsilon}_B$ sont perpendiculaires aux directions d'observations $\vec{r}_A$ et $\vec{r}_B$, et le champ magnétique $\vec{B}$ est parallèle à Oz.

Pour déterminer la constante K_{AB}, il suffit de sommer $P_{AB}(\tau)$ sur les polarisations, et d'intégrer sur τ et sur toutes les directions de l'espace. Le résultat doit être égal à la probabilité totale de diffusion, calculée dans le § I-B. En fait, dans cet Appendice, nous normaliserons cette intégrale à un ; les taux de comptages expérimentaux s'obtiendront

alors en mutipliant les formules que nous allons obtenir par le taux d'émission total de la source, noté $\mathcal{N}(t)$.

Pour calculer K_{AB}, il suffit de se placer dans le cas $\vec{B} = \vec{0}$, puisque la probabilité d'émission totale est indépendante de $\vec{B}$; on calcule d'abord la somme sur les polarisations, en choisissant des orientations parallèles et perpendiculaires au plan $(\vec{r}_A, \vec{r}_B)$:

$$\sum_{\vec{\varepsilon}_A, \vec{\varepsilon}_B} (\vec{\varepsilon}_A \cdot \vec{\varepsilon}_B)^2 = 1 + \cos^2 (\vec{r}_A, \vec{r}_B) \qquad \text{(A-I-3)}$$

et il vient :

$$K_{AB} \int_0^\infty e^{-\Gamma \tau} d\tau \int \frac{d\Omega_A}{4\pi} \int \frac{d\Omega_B}{4\pi} (1 + \cos^2 (\vec{r}_A, \vec{r}_B)) = 1$$

d'où :

$$K_{AB} = \frac{3}{4} \Gamma \qquad \text{(A-I-4)}$$

Remarque : On peut vérifier qu'il suffit en fait d'intégrer sur un seul des deux détecteurs ; on a en effet :

$$\frac{3}{4} \sum_{\vec{\varepsilon}_A} \int d\Omega_A \, |f(\vec{\varepsilon}_A, \vec{\varepsilon}_B)|^2 = 1$$

quels que soient $\vec{\varepsilon}_B$ et $\vec{r}_B$. Cette propriété reste vraie pour tout mécanisme d'excitation du niveau supérieur ^1S_o, et correspond au fait qu'on ne peut pas observer de battements quantiques sur la probabilité de détection simple (voir discussion § IV-B).

b) Corrélations angulaires en champ magnétique nul

Dans le § I-C, nous avons introduit le facteur de corrélation angulaire C_{AB}, en l'absence de polariseurs mais pour des angles solides de détections finis. Ces angles

../..

solides sont définis par leur demi-angles au sommet u_A et u_B ; on a donc (i = A ou B) :

$$\Omega_i = 2\Pi\ (1 - \cos u_i) \qquad \text{(A-I-5)}$$

Le taux de corrélation sans polariseur est alors donné par :

$$N_{AB}(\tau) = \Gamma\ e^{-\Gamma\tau}\ \frac{3}{4} \int_{\Omega_A} \frac{d\Omega_A}{4\Pi} \int_{\Omega_B} \frac{d\Omega_B}{4\Pi}\ (1 + \cos^2(\vec{r}_A, \vec{r}_B))$$

$$N_{AB}(\tau) = C_{AB}\ \Gamma\ e^{-\Gamma\tau}\ \frac{\Omega_A}{4\Pi}\ \frac{\Omega_B}{4\Pi} \qquad \text{(A-I-6-a)}$$

où on a :

$$C_{AB} = 1 + \frac{1}{8} \cos u_A \cos u_B\ (1 + \cos u_A)\ (1 + \cos u_B) \qquad \text{(A-I-6-b)}$$

On a en pratique $u_A \cong u_B \cong 32°$; on obtient alors $C_{AB} = 1.31$. Remarquons que pour $u_A = u_B = 0$, on a $C_{AB} = 3/2$.

II - Calcul des signaux de corrélations de polarisation

1) Calcul en champ magnétique nul

a) Notations

Chaque direction de détection $\vec{r}$ est définie relativement à la position de l'atome 0 par les angles polaires Θ et ϕ. Les angles solides de détections sont des cônes d'axes Oz, définis par les demi-angles au sommet $u_A = u_B = u$. La polarisation de détection est définie par l'angle ψ dans le plan xOy. Pour chaque direction $\vec{r}$, on définit le vecteur

../..

$\vec{\varepsilon}$ dans la plan tangent ($\vec{e}_\theta$, $\vec{e}_\phi$), tourné d'un angle (ψ - ϕ) par rapport à $\vec{e}_\theta$. (Figure A-I-1). Cette transformation correspond à l'action d'une lentille de foyer 0, le polariseur étant placé à l'infini suivant l'axe Oz.

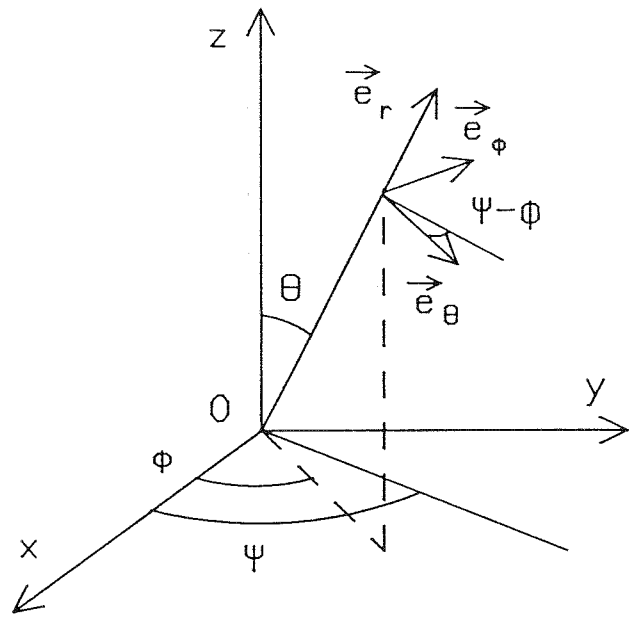


Figure A-I-1 : Géométrie des voies de détection.

b) Calcul de l'intégrale angulaire

Par intégration sur Ω_A et Ω_B, on obtient alors :

$$P_{AB}(\tau) = \frac{C_{AB}}{4}\left\{1 + F(u)\cos 2(\psi_A - \psi_B)\right\}\Gamma e^{-\Gamma\tau}\,\frac{\Omega_A}{4\pi}\,\frac{\Omega_B}{4\pi} \qquad (I\text{-}A\text{-}7)$$

avec :

$$\Omega_A = \Omega_B = 2\pi\,(1 - \cos u)$$

$$C_{AB} = 1 + \frac{1}{8}\cos^2 u\,(1 + \cos u)^2$$

$$F(u) = \frac{(4 + (1 + \cos u)\,(3 + \cos u))^2}{12\,(8 + \cos^2 u\,\,(1 + \cos u)^2)} \qquad (I\text{-}A\text{-}8)$$

La fonction F(u) diminue de la valeur 1 pour u = 0 à 0.984 pour u = 32° : l'ouverture angulaire diminue les corrélations de polarisation. Remarquons que par sommation sur deux polarisations orthogonales en A et en B on retrouve l'éq. I-A-6.

2) Champ magnétique suivant l'axe de détection

On considère maintenant le cas d'un champ magnétique orienté suivant l'axe Oz des voies de détections. Le résultat de l'intégration sur Ω_A et Ω_B est alors particulièrement simple, puisqu'il suffit de remplacer $(\psi_A - \psi_B)$ par $(\omega_Z \tau + \psi_A - \psi_B)$ dans l'éq. I-A-7 ci-dessus. Remarquons en particulier que la corrélation angulaire C_{AB} n'est pas perturbée par le champ magnétique, et que les polariseurs sont indispensables pour détecter les battements. Ces résultats sont cohérents avec l'image discutée dans le § IV-A d'un dipôle en précession autour de $\vec{B}$, confondu ici avec l'une de symétrie du système.

3) Champ magnétique perpendiculaire aux voies de détections

Lorsque $\vec{B}$ est perpendiculaire aux voies de détections, les expressions de $P_{AB}(\tau)$ pour ψ_1 et ψ_2 quelconques sont très lourdes et difficilement utilisables. Nous nous restreindrons aux cas particuliers où les polariseurs sont parallèles ou perpendiculaires à $\vec{B}$, toujours dirigé suivant Oz. L'angle d'ouverture u est défini relativement à l'une des voies de détections, que nous choisirons suivant Ox. En notant par des indices supérieurs les directions d'analyse, on obtient :

$$P^{ij}_{AB}(\tau) = (c^{ij} \cos^2 \omega_Z \tau + s^{ij} \sin^2_Z \omega\tau)\ \Gamma\ e^{-\Gamma\tau}\ \frac{\Omega_A}{4\pi}\ \frac{\Omega_B}{4\pi} \qquad \text{(I-A-9)}$$

où on a :

$$c^{yy} = c^{zz} = \frac{1}{4}\left\{1 + \frac{1}{8}(1 + \cos u)^2 \cos^2 u + \frac{1}{96}(4 + (1 + \cos u)(3 + \cos u))^2\right\}$$

$$= \frac{C_{AB}}{4}(1 + F(u)) \qquad \text{(I-A-10-a)}$$

$$c^{yz} = c^{zy} = \frac{C_{AB}}{4}(1 - F(u)) \qquad \text{(I-A-10-b)}$$

$$s^{zz} = \frac{1}{4}\left\{1 - \frac{1}{16}(1+\cos u)^2\cos^2 u + \frac{1}{192}(4 + (1+\cos u)(3+\cos u))^2 + \frac{1}{16}\cos u(1+\cos u)(4+(1+\cos u)(3+\cos u))\right\} \quad \text{(I-A-10-c)}$$

$$s^{yy} = \frac{1}{4}\left\{1 - \frac{1}{16}(1+\cos u)^2\cos^2 u + \frac{1}{192}(4 + (1+\cos u)(3+\cos u))^2 - \frac{1}{16}\cos u(1+\cos u)(4+(1+\cos u)(3+\cos u))\right\} \quad \text{(I-A-10-d)}$$

$$s^{yz} = s^{zy} = \frac{1}{4}\left\{1 - \frac{1}{16}(1+\cos u)^2\cos^2 u - \frac{1}{192}(4 + (1+\cos u)(3+\cos u))^2\right\} \quad \text{(I-A-10-e)}$$

En l'absence de polariseur, on obtient :

$$N_{AB}(\tau) = \left\{\left(1 + \frac{1}{8}(1+\cos u)^2\cos^2 u\right)\cos^2\omega_Z\tau + \left(1 - \frac{1}{16}(1+\cos u)^2\cos^2 u\right)\sin^2\omega_Z\tau\right| \Gamma e^{-\Gamma\tau}\frac{\Omega_A}{4\pi}\frac{\Omega_B}{4\pi} \quad \text{(I-A-11)}$$

Il est facile de vérifier que ces expressions se réduisent à l'équation (IV-4) lorsque u tend vers 0, et à l'équation (I-A-7) lorsque $\omega_Z = 0$.

Numériquement, pour u = 32°, tous les coefficients s'expriment en fonction de :

$$\cos u\,(1+\cos u) = 1.567$$

$$4 + (1+\cos u)(3+\cos u) = 11.111$$

On en déduit :

$$c^{yy} = c^{zz} = 0.648 \qquad c^{yz} = c^{zy} = 0.005$$

$$s^{zz} = 0.644 \qquad s^{yy} = 0.100 \qquad s^{yz} = s^{zy} = 0.051$$

et on obtient finalement :

$$p_{AB}^{zz}(\tau) = 0.646\,(1 + 0.003 \cos 2\omega_z \tau)\,\Gamma\, e^{-\Gamma\tau}\,\frac{\Omega_A}{4\Pi}\,\frac{\Omega_B}{4\Pi}$$

$$p_{AB}^{yy}(\tau) = 0.374\,(1 + 0.733 \cos 2\omega_z \tau)\,\Gamma\, e^{-\Gamma\tau}\,\frac{\Omega_A}{4\Pi}\,\frac{\Omega_B}{4\Pi}$$

$$p_{AB}^{yz} = p_{AB}^{zy} = 0.028\,(1 - 0.82 \cos 2\omega_z \tau)\,\Gamma\, e^{-\Gamma\tau}\,\frac{\Omega_A}{4\Pi}\,\frac{\Omega_B}{4\Pi}$$

Ces expressions sont utilisées dans le § IV-A, Figure IV-3.

Annexe 2

INTERFEROMETRE DE MACH-ZEHNDER

Cette Annexe présente quelques calculs relatifs à l'interféromètre de Mach-Zehnder : tout d'abord, les calculs relatifs à la lame séparatrice unique, ensuite l'étude des systèmes d'interférences parasites, et enfin l'analyse de quelques défauts d'alignement.

A - ETUDE DE LA LAME SEPARATRICE

A-1 - Compensation angulaire

a) Notations

Considérons le schéma de principe de la figure A-II-1. La différence de marche (correspondant à des interférences localisées à l'infini) est la somme de deux termes, correspondant respectivement aux trajets optiques dans l'air et dans les lames de verre :

$$\delta(\theta) = \delta_a(\theta) + \delta_v(\theta)$$

$$\delta_a(\theta) = 2(\ell - \ell') \cos\theta$$

$$\delta_v(\theta) = (e - e') (n \cos\theta_r - \cos\theta)$$

où ℓ, ℓ', e, e' sont définis sur la Figure A-II-1, et θ, θ_r sont respectivement l'angle d'incidence et de réfraction pour les lames d'indice n.

../..

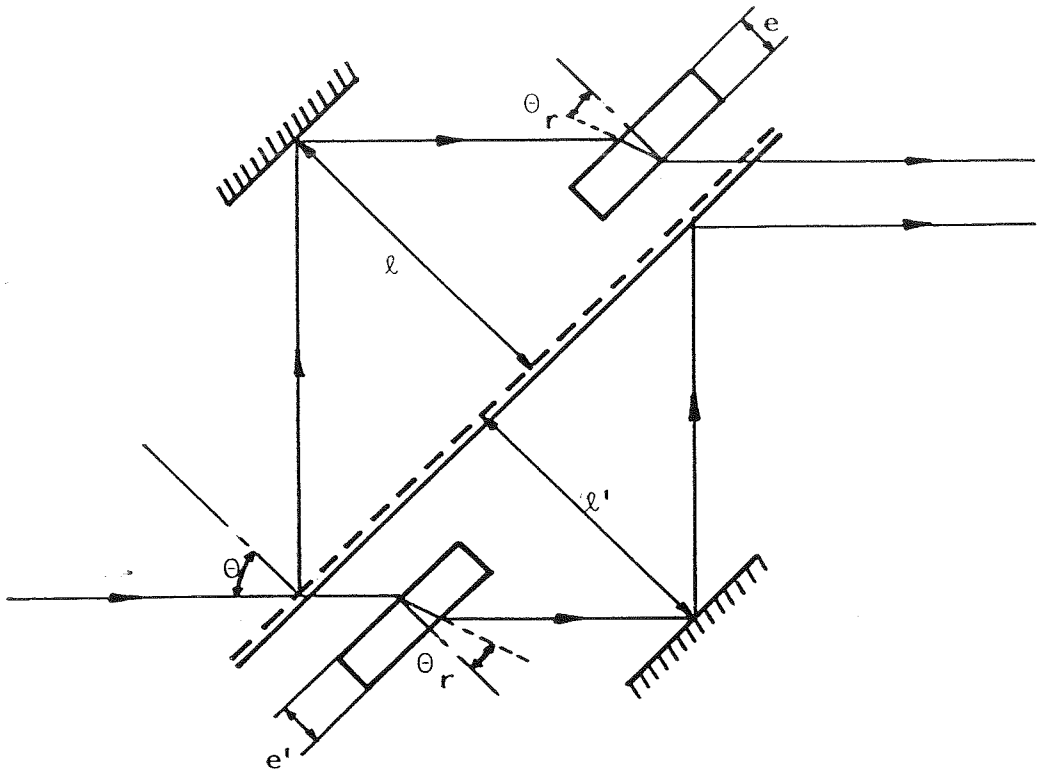


Figure III-A-1 : Influence de lames d'épaisseur e et e'.

L'angle d'incidence Θ varie entre $\Theta_o - \varepsilon$ et $\Theta_o + \varepsilon$, où Θ_o est l'angle d'incidence moyen (15° dans notre expérience) et ε la demi-divergence du faisceau (12.5 mrd dans notre expérience).

b) Compensation angulaire

Le flux total enregistré par un photomultiplicateur sera donné par :

$$I = \frac{I_o}{2\varepsilon} \int_{\Theta_o - \varepsilon}^{\Theta_o + \varepsilon} \left(1 + \cos \frac{2\pi\delta(\Theta)}{\lambda}\right) d\Theta$$

$$= I_o \left(1 + \frac{1}{2\varepsilon} \int_{-\varepsilon}^{+\varepsilon} \cos\left(\frac{2\pi\ \delta(\Theta_o + \varepsilon')}{\lambda}\right) d\varepsilon'\right)$$

Afin de calculer cette intégrale, on peut faire en développement limité de $\delta(\Theta)$ autour de Θ_o.

On obtient :

$$\delta(\theta_o + \varepsilon) = (\delta_a(\theta_o) + \delta_v(\theta_o)) + \varepsilon\left\{\delta_v(\theta_o)\ \mathrm{tg}\ \theta_{ro} - \delta_a(\theta_o)\ \mathrm{tg}\ \theta_o\right\}$$

$$+ \frac{\varepsilon^2}{2}\left\{\delta_v(\theta_o)\left(\frac{1 + \sin^2\theta_{ro}}{\cos^2\theta_{ro}}\right) - \delta_a(\theta_o)\right\} + \mathcal{O}(\varepsilon^3)$$

Lorsque $\delta_v(\theta_o)$ n'est pas nul, c'est à dire lorsque les épaisseurs de verre traversées dans les deux bras de l'interféromètre ne sont pas égales, $\delta(\theta)$ varie rapidement avec θ. Pour minimiser cette variation, on peut ajuster $\delta_a(\theta_o)$ de façon à annuler le terme du 1er ordre dans l'expression ci-dessus ; on obtient alors :

$$\delta_v(\theta_o)\ \mathrm{tg}\ \theta_{ro} = \delta_a(\theta_o)\ \mathrm{tg}\ \theta_o$$

et on en déduit :

$$\delta(\theta_o + \varepsilon) = \delta_v(\theta_o)\left(1 + \frac{\mathrm{tg}\ \theta_{ro}}{\mathrm{tg}\ \theta_{ro}}\right)$$

$$+ \frac{\varepsilon^2}{2}\ \delta_v(\theta_o)\left(\left(\frac{1 + \sin^2\theta_{ro}}{\cos^2\theta_{ro}}\right) - \frac{\mathrm{tg}\ \theta_{ro}}{\mathrm{tg}\ \theta_o}\right) + \mathcal{O}(\varepsilon^3)$$

$$\cong 1.7\ \delta_v(\theta_o) + 0.2\ \varepsilon^2\ \delta_v(\theta_o)$$

Si toutes les épaisseurs de verre sont rassemblées sur une même voie (interféromètre non compensé), $\delta_v(\theta_o)$ peut atteindre plusieurs centimètres. Le terme du second ordre dans l'expression varie alors de plusieurs longueurs d'ondes lorsque ε varie entre 0 et 12.5 mrd, ce qui entraine une dégradation considérable du contraste des franges. Il est donc nécessaire de compenser l'interféromètre,

../..

c'est-à-dire d'égaliser les épaisseurs de verre traversées sur chaque voie ; la solution la plus simple consiste à alterner les traitements séparateurs par moitié, sur une lame unique (Fig. A-II-2).

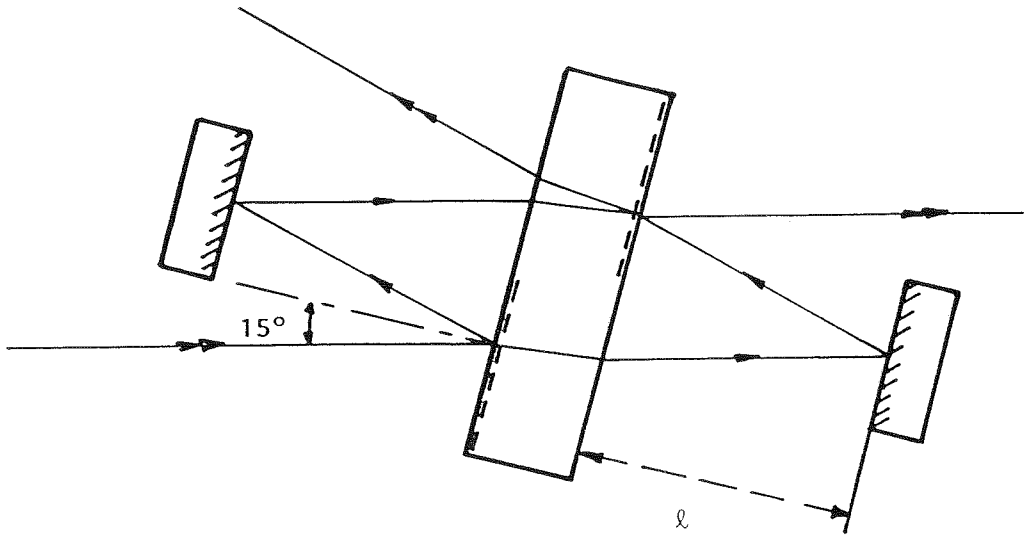


Figure A-II-2 : Schéma de principe de l'interféromètre.

Remarque : Nous n'avons ici considéré que les variations de Θ dans le plan de l'interféromètre ; l'étude des variations de Θ hors de ce plan conduit à la même conclusion.

Le paragraphe suivant est consacré au calcul de la tolérance sur le parallélisme de cette lame séparatrice unique.

A-2 - Parallélisme de la séparatrice

a) Configuration

On suppose maintenant que l'on a une séparatrice unique, à faces planes mais non nécessairement parallèles. L'angle du dièdre dans le plan d'incidence du rayon considéré est noté A. Les miroirs sont supposés ajustés pour obtenir des émergents parallèles : chaque miroir est donc parallèle au côté de la séparatrice qui lui fait face (Figure A-II-3) ; on observe les franges à l'infini.

../..

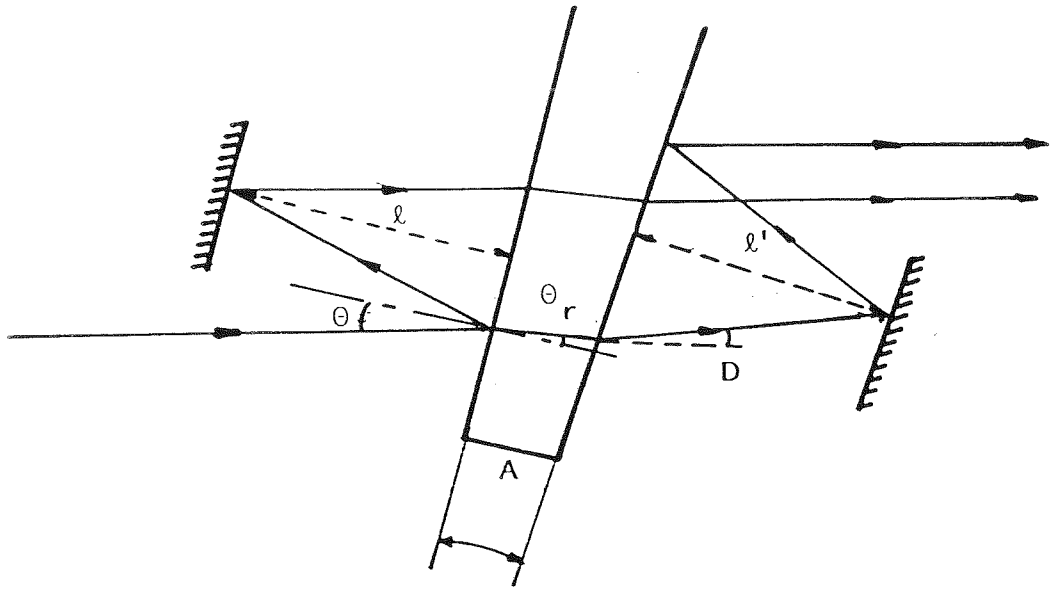


Figure A-II-3 : Influence d'un prisme de la séparatrice

b) Modification de la différence de marche.

Lorsque l'angle θ_o est petit (15° dans notre cas) le supplément de différence de marche introduit par le prisme s'écrit au premier ordre en A :

$$\delta_A \cong 2\ell\ n\ A\ \sin\theta$$

Les variations de δ_A lorsque θ varie entre $\theta_o - \varepsilon$ et $\theta_o + \varepsilon$ doivent demeurer très inférieures à une longueur d'onde ; la condition correspondant à un contraste de 0.995 est (voir eq. III-3) :

$$\frac{2\pi\varepsilon}{\lambda}\frac{d}{d\theta}\ \delta_A(\theta)\Big|_{\theta = \theta_o} < 0.173$$

On obtient ainsi $A < 3\ 10^{-6}$, ce qui correspond à une tolérance sur le parallélisme des faces d'environ $\lambda/2$; en pratique, on adoptera une valeur de $\lambda/4$.

../..

B - SYSTEMES D'INTERFERENCE PARASITES

a) Introduction

Le coefficient de réflexion ρ^2 des traitements antireflets déposés sur les faces non utilisées de la séparatrice est de l'ordre de 1 %. Il apparait donc des systèmes d'interférences parasites, qui sont schématisés sur la Figure A-II-4. Les différents faisceaux sont numérotés de 0 à 4. On peut calculer les intensités de ces différents faisceaux, en fonction de la différence de marche ϕ entre les deux bras du Mach-Zehnder, et les différences de marche ϕ_1 et ϕ_2 correspondant aux interférences entre les différents faisceaux d'un même bras. Pour simplifier les expressions ci-dessous, nous prendrons R = T = 0.5 dans les termes correctifs faisant intervenir ρ^2. On obtient alors :

$$I_1 = 2\,RT\,(1 + \cos\phi) - 0.5\,\rho^2\,(1 + \cos\phi)$$

$$I_3 = 0.5\,\rho^2 \left\{1 + 0.5\,(\cos(\phi + \phi_1) + \cos(\phi + \phi_2) - \cos\phi - \cos\phi_1 - \cos\phi_2 - \cos(\phi + \phi_1 + \phi_2))\right\}$$

$$I_o = 0.5\,\rho^2$$

$$I_2 = T^2 + R^2 - 2\,RT\cos\phi - \rho^2(1 - \cos\phi) + 0.5\,\rho^2\,(\cos\phi_2 - \cos(\phi + \phi_2))$$

$$I_4 = 0.5\,\rho^2 \left\{1 + 0.5\,(\cos(\phi + \phi_2) - \cos(\phi + \phi_1) - \cos\phi + \cos\phi_1 - \cos\phi_2 + \cos(\phi + \phi_1 + \phi_2))\right\}$$

../..

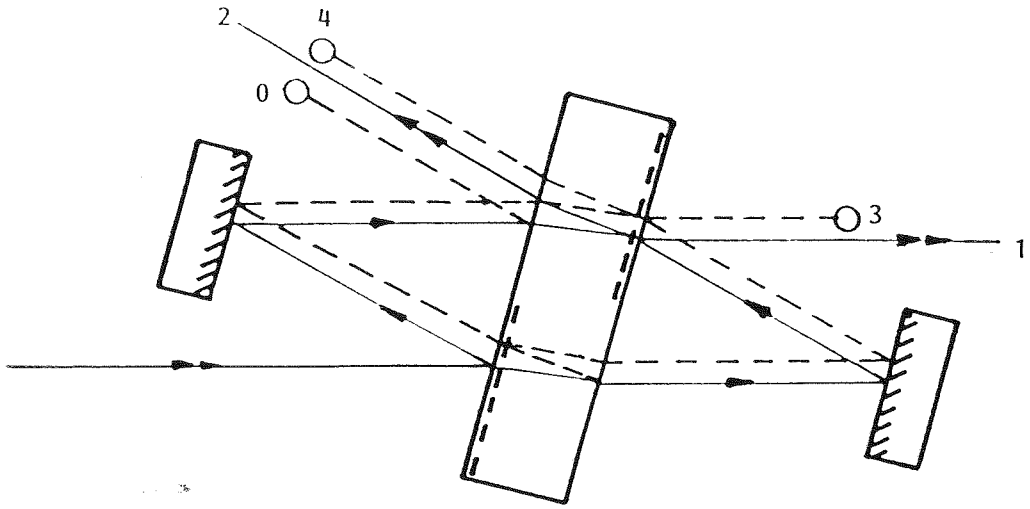


Figure A-II-4 : Systèmes d'interférences parasites.

Les faisceaux parasites n'étant en général pas séparés du faisceau principal, on obtient :

$$I_1 + I_3 = 2\,RT(1 + \cos\phi) + 0.25\,\rho^2 \left\{\cos(\phi + \phi_1) + \cos(\phi + \phi_2) - 3\cos\phi - \cos\phi_1 - \cos\phi_2 - \cos(\phi + \phi_1 + \phi_2)\right\}$$

$$I_o + I_2 + I_4 = T^2 + R^2 - 2\,RT\cos\phi - 0.25\,\rho^2 \left\{\cos(\phi + \phi_1) + \cos(\phi + \phi_2) - 3\cos\phi - \cos\phi_1 - \cos\phi_2 - \cos(\phi + \phi_1 + \phi_2)\right\}$$

On vérifie que l'on a bien $\sum_{j=0}^{4} I_j = 1$.

b) Calcul du contraste

A partir de ces expressions, on peut calculer les contrastes $\mathcal{C}_1$ (correspondant à $I_1 + I_3$) et $\mathcal{C}_2$ (correspondant à $I_o + I_2 + I_3$).

../..

On obtient :

$$\mathcal{C}_1 = 1 - 0.5\ \rho^2\ (3 - 2\cos\phi_1 - \cos\phi_2 + \cos(\phi_1 + \phi_2))$$

$$\mathcal{C}_2 = \frac{2RT}{R^2 + T^2} - 0.5\ \rho^2\ (3 + \cos(\phi_1 + \phi_2)$$

Lors du réglage de l'interféromètre, il est difficile en pratique de contrôler systématiquement les valeurs de ϕ_1 et ϕ_2. Nous avons néanmoins constaté que la méthode employée aboutissait le plus souvent à une valeur de $\mathcal{C}_1$ voisine de 0.987 (voir Tableau III-2). Cette valeur est en accord qualitatif avec les calculs ci-dessus, en supposant une compensation approximative entre les effets des trois termes en cosinus.

C - DEFAUTS D'ALIGNEMENT

a) Introduction

La méthode de réglage employée consiste essentiellement à rechercher visuellement la meilleure uniformité possible de la teinte plate, en agissant sur les réglages d'orientation de l'un des miroirs. Cette procédure peut ne pas aboutir, si l'autre miroir fait un angle notable avec la séparatrice. La disposition des lames est alors représentée sur la Figure A-II-5 : un miroir est parallèle à l'image de l'autre dans la séparatrice, mais les deux miroirs ne sont parallèles ni entre eux, ni avec la séparatrice. Désignons alors par α l'angle entre un miroir et la séparatrice. La différence $(\theta - \theta')$ entre les angles d'incidences sur les deux moitiés de la séparatrice sera égal à 2α.

b) Tolérance sur l'ajustement du parallèlisme des lames

La variation correspondante entre les différences de marches introduites par deux traversées de la séparatrice d'épaisseur e sera alors :

$$(\Delta - \Delta') = \left(\frac{d\Delta}{d\theta}\right) 2\alpha \qquad \text{où} \qquad \Delta = e\,(n \cos\theta_r - \cos\theta)$$

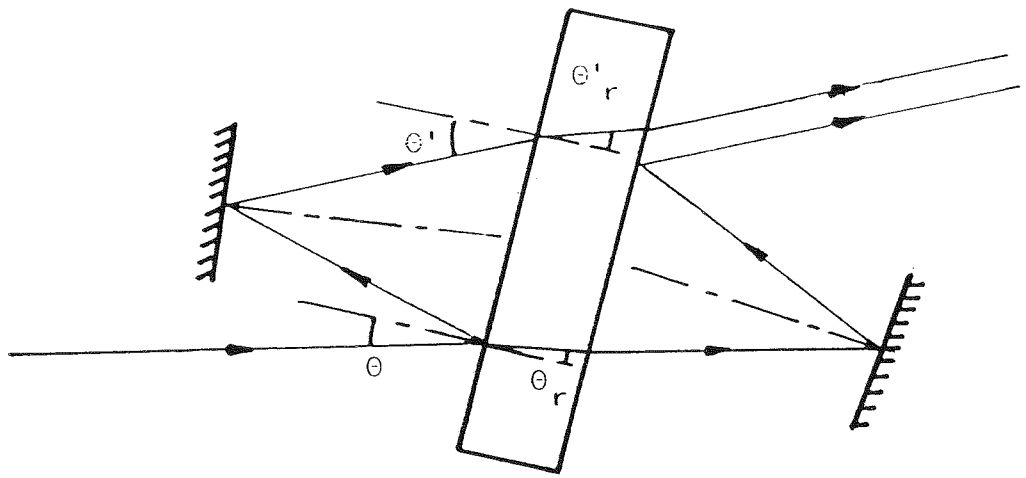


Figure A-II-5 : Influence d'un déréglage de l'orientation des miroirs.

On obtient ainsi :

$$(\Delta - \Delta') = 2\alpha\, e\, \left(1 - \frac{\cos\theta}{n \cos\theta_r}\right) \sin\theta$$

Finalement, en posant $\theta = \theta_o + \varepsilon$, il vient :

$$(\Delta - \Delta') \cong 0.16\ \alpha\, e\, (1 + 4\varepsilon)$$

Si l'on veut comme précédemment satisfaire le critère :

$$\frac{2\pi\varepsilon}{\lambda} \quad (0.64\ \alpha\, e) < 0.173$$

on trouve que α doit être inférieur à $6\ 10^{-5}$ rd, ce qui correspond à une tolérance sur le parallélisme des lames d'environ 15 λ. Cet ajustement est effectué à l'aide d'un laser hélium-néon auxiliaire, par la procédure décrite dans le § III-A-3-e).

Références

REFERENCES - Introduction

1 R. J. Glauber, Ecole d'Eté des Houches 1964, édité par C. De Witt, A. Blandin et C. Cohen-Tannoudji (Gordon and Breach, 1965).

2 Articles de revue :
R. Loudon, Rep. Prog. Phys. 43, 913 (1980)
M. Schubert, B. Wilhelmi, "Progress in Optics" vol. 17, ed. E. Wolf (North Holland, 1980).

3 C.K. Hong et L. Mandel, Phys. Rev. Lett. 56, 58 (1986).
J.G. Walker et E. Jakeman, Optica Acta 32, 1303 (1985).

4 Un ensemble de références récentes sur les statistiques non classiques et les états comprimés peut être trouvé dans :
A. Heidmann, Thèse de 3ème Cycle, Paris VI, 1984.
G. Leuchs, in "Frontiers of Non equilibrium Statistical Physics", eds G. T. Moore and M.O. Scully, Plenum, 1986.
D.F. Walls, Nature 306, 141 (1983).

5 J. Dalibard et S. Reynaud, J. Physique 44, 1337 (1984).

6 (a) R. Loudon, "The Quantum Theory of Light", 2^{d} edition, Clarendon, 1983)
(b) Références plus spécifiques à la fluorescence de résonance :
B.R. Mollow, Phys. Rev. 188, 1969 (1969).
B.R. Mollow, in "Progress in Optics", Vol. 19, ed. E. Wolf (North Holland, 1981).
C. Cohen-Tannoudji in "Frontiers in Laser Spectroscopy", ed. R. Balian, S. Haroche et S. Liberman (North Holland, 1977).

7 C. Cohen-Tannoudji, Ecole d'Eté des Houches 1982, édité par G. Grynberg et R. Stora, North Holland, 1984.

8 P. Grangier, G. Roger et A. Aspect, Europhysics Lett. 1, 173 (1986).

9 A. Aspect, J. Dalibard, P. Grangier et G. Roger, Opt. Commun. 49, 429 (1984).

10 P. Grangier, A. Aspect and J. Vigué, Phys. Rev. Lett. 54, 418 (1985).

11 P. Grangier, G. Roger, A. Aspect, A. Heidmann et S. Reynaud, Phys. Rev. Lett. 57, 687 (1986)

REFERENCES - Chapitre I

12 J. Dalibard, J. Dupont-Roc and C. Cohen-Tannoudji, J. Physique 43, 1617 (1982).

13 H.M. Titulaer and R. J. Glauber, Phys. Rev., 140 B, 676 (1965).

14 H. J. Kimble, M. Dagenais et L. Mandel, Phys. Rev. Lett. 39, 691 (1977).

15 J.D. Cresser, J. Häger, G. Leuchs, M. Rateike and H. Walther, Topics in Current Physics, Vol. 27, Springer, 1982.

16 R. Short and L. Mandel, Phys. Rev. Lett. 51, 384 (1983).

17 M. C. Teich and B.E.A. Saleh, J. Opt. Soc. Am. B2, 275 (1985).

18 J.G. Walker and E. Jakeman, Optica Acta 32, 1303 (1985).

19 R.E. Slusher, L.W. Hollberg, B. Yurke, J.C. Mertz and J.F. Valley, Phys. Rev. Lett. 55, 2409 (1985).

20 Y.Z. Wang, W.G. Huang, Y.D. Cheng and L. Liu, Laser Spectroscopy VII, eds T.W. Hänsch and Y.R. Shen, Springer, 1985.

21 D.F. Walls, Am. J. Phys. 45, 952 (1977).

22 A. Heidmann, Thèse de 3ème cycle, Paris VI, 1984.

23 M. Born, E. Wolf, "Principles of optics" (Pergamon, 1959).
L. Mandel, E. Wolf, Rev. Mod. Phys. 37, 231 (1965).

24 Ref. 6 (a), p. 217.

25 J. Dalibard, Thèse de 3ème Cycle, Paris VI, 1981.

26 A. Aspect, Thèse d'Etat, n° 2674, Paris XI, 1983.

27 A. Aspect, G. Roger, S. Reynaud, J. Dalibard, et C. Cohen-Tannoudji, Phys. Rev. Lett. 45, 617, (1980).

28 P.L. Knight et L. Allen, Opt. Commun. 7, 44 (1973).

29 B.E.A. Saleh, D. Stoler and M.C. Teich, Phys. Rev. A 27, 360 (1983).

30 L. Mandel, Phys. Rev. A 28, 929 (1983).

31 C. Cohen-Tannoudji, Cours du Collège de France, 1979-80.

32 H.J. Kimble, A. Mezzacappa and P.W. Milonni, Phys. Rev. A 31, 3686 (1985).

33 A. Al. Hilfy and R. Loudon, J. Phys. B : At. Mol. Phys. 18, 3697 (1985).

REFERENCES - Chapitre II

34 Pour une discussion complète des points évoqués dans ce paragraphe, voir Ref. 31.

35 I.R. Senitzky, Phys. Rev. Lett. 20, 1062 (1968).

36 L. Mandel, Phys. Rev. A 28, 929 (1983).

37 W.E. Lamb et M.O. Scully, dans "Polarisation, Matière et Rayonnement", édité par la Société Française de Physique, Presses Universitaire de France, 1969.

38 Pour une revue des théories "néo-classiques", voir : E.T. Jaynes, in "Proceedings of the 3rd. Rochester Conference on Coherence and Quantum Optics", eds. L. Mandel and E. Wolf (Plenum, 1973).

39 A.O. Barut and J.F. Van Huele, Phys. Rev. A 32, 3187 (1985).

40 A. Aspect, C. Imbert et G. Roger, Opt. Commun. 34, 46 (1980).

41 P. Grangier, Thèse de 3ème Cycle, Paris VI, 1982.

42 A. Brillet, Communication Privée.

43 S. J. Freedman, Ph. D. Thesis, Berkeley (1972).

44 J.F. Clauser, Phys. Rev. D 9, 853 (1974).

45 E. Brannen and H.I.S. Ferguson, Nature, 178, 481 (1956)
M.P. Givens, Philos. Mag. 37, 335 (1946).

46 A. Adam, L. Janossy and P. Varga, Acta Phys. Hung. 4, 301, (1955) ; Ann. Physik 16, 408 (1955).

47 Schrödinger, cité dans la Réf. 44.

48 B.E.A. Saleh and M.C. Teich., Opt. Commun. 52, 429 (1985).
S. Friberg, C.K. Hong and L. Mandel, Phys. Rev. Lett. 54, 2011 (1985) ; Opt. Commun. 54, 311 (1985).
J.G. Walker and E. Jakeman, Optica Acta 32, 1303 (1985)

49 Pour un traitement récent et de nombreuses références, voir :
C.K. Hong and L. Mandel, Phys. Rev. A 31 , 2409 (1985)

50 Voir Ref. 3 et Ref. in.

51 H.J. Kimble, Communication à l'IQEC, San Francisco (1986).

REFERENCES - Chapitre III

52 Références du tableau III-1

(a) G. I. Taylor, Proc. Cambridge Philos. Soc. 15, 114 (1909).

(b) R. Gans and P. Miguez, Ann. Phys. Leipzig 52, 291 (1917).

(c) P. Zeeman, Physica (The Hague) 5, 325 (1925)

(d) A. J. Dempster and H.F. Batho, Phys. Rev. 30, 644 (1927).

(e) S.I. Vavilov, "The microstructure of light", Akad. Nauk SSSR (1950)

(f) L. Janossy and Z. Naray - Acta Phys. Hungaria 7, 403 (1957).

(g) H.M. Griffiths, Princeton University Senior Thesis (1963)

(h) Y.P. Dontzov and A.I. Baz, Sov. Phys. JETP 25, 1 (1967).

(i) G.T. Reynolds et al, Advances in electronics and electron physics, 28 B, Academic Press, London, 1969, p. 939.

(j) G.T. Reynolds, K. Spartalian and D.B. Scarl, Nuovo Cim. B 61, 355 (1969).

(k) P. Bozec, M. Cagnet et G. Roger, C.R. Acad. Sci. 269, 883 (1969).

(l) A. Grishaev et al., Sov. Phys. JETP 32, 16 (1971).

(m) A.G. Zajonc, H. Walther, T. Hellmut, Communication à la conférence "New Ideas and Techniques in Quantum Measurement Theory", New-York, 1986

(n) C.O. Alley, ibid.

(p) J.D. Franson, ibid - Cette expérience est en cours de réalisation.

53 J.A. Wheeler in "Mathematical Foundations of Quantum Theory", ed. A.R. Marlow, Academic Press, 1978.

54 F.M. Pipkin, Adv. At. Mol. Phys. 14, 281 (1978).

55 O.R. Frish, Contemporary Physics, 7, 45 (1965).

56 P.H. Van Cittert, Physica, 1, 201 (1934).
F. Zernicke, Physica, 5, 785 (1938).
G. Fortunato, Thèse d'Etat, Orsay, 1976.

57 Voir par exemple :
F.E. Sure and E.C. Teague, Rev. Sci. Instrum. 49, 1735 (1978) et références in.

58 Y.V. Linnik, "Méthode des moindres carrés", Dunod, Paris, 1963.

(Chapitre III)

59 A. Heidmann et S. Reynaud, J. Physique 45, 873, (1984).

60 A. Aspect, P. Grangier et G. Roger, Phys. Rev. Lett. 47, 460 (1980) ; Phys. Rev. Lett. 49, 91 (1982).

61 J. Andrade e Silva, F. Selleri, J.P. Vigier, Lett. Nuovo. Cim. 36, 503 (1983).
Voir aussi Ref. 59, et : M. Ley and R. Loudon, Opt. Comm. 54, 317, (1985) ; Optica Acta 33, 371 (1986).

62 N. Imoto, H.A. Haus and Y. Yamamoto, Phys. Rev. A 32, 2287, (1985).

63 R.P. Feynman, Cours de Physique, Vol. III : Mécanique Quantique Bilingua Addison-Wesley, London (1970).
J.M. Lévy-Leblond et F. Balibar, "Quantique : Rudiments", Inter Editions, Paris, 1984.

64 P.A.M. Dirac, "The principle of Quantum Mechanics", Oxford University Press (1958).

REFERENCES : Chapitre IV

65 S. Haroche, Topics in applied physics, ed. K. Shimoda, (Springer-Verlag, Berlin, 1976), p. 253.

66 P. Schenk, R.C. Hilborn, H. Metcalf, Phys. Rev. Lett. 31, 189 (1973).

67 M.I. Podgoretskii and A.O. Khrustalev, Sov. Phys. Usp. 6, 682 (1964)

68 R. M. Steffen and H. Frauenfelder, in : Perturbed angular correlations Vol. 2, eds E. Karlsson, E. Mathias and K. Siegbahn (North-Holland, Amsterdam, 1964) p. 997.

69 A. M. Dumont, C. Camhy -Val, M. Dreux and R. Vitry, C.R. Acad. Sci. 271 B, 1021, (1970)
M. Popp, C. Schäfer and E. Bodenstedt, Z. Phys. 240, 71 (1970).
M.K. Simmons, Ph. D. Thesis, Berkeley (1972) (non publié).

70 A. Aspect and P. Grangier, Lett. Nuovo Cim. 43, 345 (1985).

71 W.W. Chow, M.O. Scully and I.O. Stoner, Phys. Rev. A 11, 1380 (1975).
R.M. Herman, H. Grotch, R. Kornblith, J.M. Eberly, Phys. Rev. A 11, 1389 (1975).

72 R. Luypaert and J. Van Craen, J. Phys. B : At. Mol. Phys. 12, 2613 (1979).
B.J. Dalton, J. Phys. B : At. Mol. Phys. 12, 2625 (1979).

73 B.J. Dalton, D.S. Gough, P. Hannaford and R.M. Lowe, J. Phys. B : At. Mol. Phys. 15, L 515 (1982).

74 M. O. Scully and K. Drühl, Phys. Rev. A 25, 2208 (1982).
A. Zajonc, Phys. Lett. 96 A, 61 (1983).

REFERENCES : Chapitre V

75 J. Vigué, P. Grangier, G. Roger and A. Aspect, J. Physique Lettres, 42, L. 531 (1981).

76 J. Vigué, J.A. Beswick and M. Broyer, J. Physique 44, 1225 (1983).

77 R. H. Dicke, Phys. Rev. 93, 99 (1954).

78 G. J. Diebold, Phys. Rev. Lett. 51, 1344 (1983).

79 A.T. Forrester, R.A. Gudmundsen and P.O. Johnson, Phys. Rev. 99, 1961, (1955).

Références de la partie V-B (publication)

p-1 - P. Grangier, A. Aspect and J. Vigué
Phys. Rev. Lett. 54, 418 (1985)

p-2 - This expression of the coupling is rigorously demonstrated in : C. Cohen-Tannoudji, Ecole d'Eté des Houches, 1982, eds. G. Grynberg and R. Stora North Holland, 1984).
It is shown in this reference that the interaction term involves the electric induction rather than the electric field. However, the mathematical operator associated with this electric induction is identical to the one defined by eq. 5 outside the dipoles own emplacements.

p-3 - Moreover, we must restrict ourselves to the calculation of normal-ordered products of operators. For a discussion, see Ref. 2, and :
R.R. Puri, J. Opt. Soc. Am. B 2, 447 (1985).

p-4 - R. Loudon, The Quantum Theory of Light, 2nd Edition (Clarendon, Oxford, 1983). See also Ref. 3.

p-5 - R.J. Glauber, in Quantum Optics and Electronics, eds. C. de Witt, A. Blandin and C. Cohen-Tannoudji (Gordon and Breach, 1965).

p-6 - J. Vigué, J.A. Beswick and M. Broyer
J. Physique 44, 1225 (1983).

p-7 - G.J. Diebold,
Phys. Rev. Lett. 51, 1344 (1983).

p-8 - This is true for an optically thin source (no reabsorption of the emitted field). Some consequences of reabsorption are discussed in Part III.

p-9 - M.E. Rosenkrantz, M. Krauss, J. Stevens
Chem. Phys. Letters 89, 4 (1982).

p-10- R.T. Hofmann, D.O. Harris
J. Chem. Phys. 81, 1047 (1984).

p-11- V.E. Bondybey, J.H. English
Chem. Phys. Lett. 111, 195 (1984).

p-12- C.R. Vidal
J. Chem. Phys. 72, 1864 (1980).

p-13- J.C. Miller, R.L. Mowery, E.R. Krausz, S.M. Jacobs, H.W. Kim, P.N. Schatz, L. Andrews
J. Chem. Phys. 74, 6349 (1981).

p-14- J. Vigué, P. Grangier, G. Roger and A. Aspect
J. Physique Lettres, 42, L 531 (1981).

../..

p-15- At long distance the potential curve of this $^1\Pi_u$ state is dominated by the (repulsive) long range resonance dipole interaction (see section 1.4 of the present paper or G.W. King, J.H. Van Vleck, Phys. Rev. 55, 1165 (1939)). But at shorter internuclear distance the $^1\Pi_u$ state may interact with a state of the same symmetry and of ionic nature, i.e. dissociating in $Ca^+(^2S) + Ca^-(^2P)$. The same phenomenon has been predicted in Mg_2 (W.J. Stevens, M. Krauss, J. Chem. Phys. 67, 1977 (1977)) and observed in Be_2 (V.E. Bondybey, Chem. Phys. Letters, 109, 436 (1984)). However, a rough estimation with zero electronic affinity for Ca^- yields an upper limit for the crossing point at an internuclear distance about 5 Å, and the $^1\Pi_u$ state is probably weakly affected in the range of interest (R. Grice, D.R. Herschbach, Mol. Phys. 27, 159 (1974)).

p-16- M.S. Child
Can. J. Phys. 53, 1830 (1975)

p-17- K.H. Meiwes-Broer
Thesis (Bielefeld University 1983) unpublished.

p-18- A. Aspect and P. Grangier
Lett. Nuovo Cim.

p-19- A.T. Forrester, R.A. Gudmundsen and P.O. Johnson
Phys. Rev. 99, 1961 (1955).

p-20- G. Nienhuis
Phys. Rev. A 31, 1929 (1985).

p-21- G. Kurizki and A. Ben-Reuven
Phys. Rev. A 32, 2560 (1985)

p-22- G.J. Diebold
Phys. Rev. A 32, 1458 (1985)

p-23- A.A. Horne, A. Zeilinger and H.J. Bernstein
Private Communication.

p-24- The two atoms should have the same dipole moment, and resonance frequencies differing by much less than the modulation frequency $\Omega_o/2\Pi = v/\lambda_o$; a possible system would be the $^{40}Ca - ^{42}Ca$ molecule, with an isotopic shift on the resonance line equal to 390 MHz (A. Andl et al. Phys. Rev. C 26, 2194 (1982)), while in our experiment $\Omega_o/2\Pi = 2500$ MHz. See also Ref. 21.

p-25- Th. Richter,
Ann. Physik Leipz. 36, 266 (1979).

p-26- C. Cohen-Tannoudji, B. Diu et F. Laloë,
"Mécanique Quantique", Hermann, Paris (1977) - p. 1128 and ref. there in.

p-27- R.H. Dicke,
Phys. Rev. 93, 99 (1954).

REFERENCES : Conclusion

80 H. Lichte, G. Möllenstedt et H. Wahl, Z. Physik 249, 456 (1972).
O. Donati, G.F. Missiroli et G. Pozzi, Am. J. Phys. 41, 639 (1973).
Article de Revue : S. Olariu et G. Popescu, Rev. Mod. Phys. 57, 339 (1985).

81 Articles de revue : D.M. Greenberger, A.W. Overhauser, Rev. Mod. Phys. 51, 43 (1979).
A. G. Klein, S. A. Werner, Rep. Progr. Phys. 46, 259 (1983).

82 H.G. Dehmelt, Adv. At. Mol. Phys. 3, 53 (1967) et 5, 109 (1969).
D.J. Wineland, W. M. Itano, R.S. Van Dyck, Adv. At. Mol. Phys. 19, 135, (1983).

Nom : GRANGIER

Prénom : Philippe

Sujet : Etude expérimentale de propriétés non-classiques de la lumière ; interférences à un seul photon.

Résumé :

Ce mémoire décrit plusieurs expériences pour lesquelles la quantification du champ électromagnétique joue un rôle essentiel dans la description théorique et la compréhension physique des phénomènes observés. En particulier, la nécessité de cette quantification apparaît à travers la mise en évidence d'un état d'un champ très proche d'un état de Fock, dans lequel un seul quantum est excité (état à un seul photon).

Un état à un seul photon peut-être caractérisé en utilisant deux photomultiplicateurs placés de part et d'autre d'une lame semi-réfléchissante : la probabilité d'observer deux photodétections pendant un temps w doit être beaucoup plus petite que le produit des probabilités de photodétections simples pendant le même temps. Cette propriété "non-classique", que nous désignons par le terme d'anticorrélation, est mise en évidence expérimentalement pour une cascade radiative du Calcium, en utilisant des techniques de comptages rapides.

Nous avons ensuite réalisé une expérience d'interférences, avec la lumière ayant permis d'observer l'effet d'anticorrélation. En utilisant un interféromètre de Mach-Zehnder réglé au voisinage de la teinte plate, le contraste mesuré des franges d'interférences a été supérieur à 98 %, en parfait accord avec les performances calculées de l'interféromètre.

Nous présentons enfin deux autres expériences, qui illustrent de façon plus générale la notion d'interférences à un seul photon : une expérience de battements quantiques dans une cascade radiative excitée de façon continue, et un effet d'interférence apparaissant dans la fluorescence d'un système de deux atomes, obtenus par photodissociation d'une molécule Ca_2 par une impulsion laser.

Mots Clés :

Optique Quantique, Photons (Optique), Photodétection (Théorie), Interférences (Optique), Corrélations d'intensité (Optique), Calcium (atomes, cascade radiative), Calcium (molécules, photodissociation).