



HAL
open science

Etude de l'orientation nucléaire par pompage optique des isotopes impairs stables du cadmium

Jean-Claude Lehmann

► **To cite this version:**

Jean-Claude Lehmann. Etude de l'orientation nucléaire par pompage optique des isotopes impairs stables du cadmium. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 1966. Français. NNT: . tel-00011799

HAL Id: tel-00011799

<https://theses.hal.science/tel-00011799>

Submitted on 8 Mar 2006

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.

UNIVERSITE DE PARIS

ECOLE NORMALE SUPERIEURE
LABORATOIRE DE PHYSIQUE



· T H E S E S

présentées A LA FACULTE DES SCIENCES

pour obtenir le grade de DOCTEUR ES SCIENCES PHYSIQUES

par

Jean-Claude LEHMANN

PREMIERE THESE :

"ETUDE DE L'ORIENTATION NUCLEAIRE PAR POMPAGE OPTIQUE DES ISOTOPES IMPAIRS STABLES DU CADMIUM".

DEUXIEME THESE :

Proposition donnée par la Faculté

Soutenues le Novembre 1966 devant la Commission d'Examen :

MM. A. KASTLER) Examineurs
P. JACQUINOT	
J. BROSSEL	
A. ABRAGAM	
	Président

T H E S E S

présentées

A LA FACULTE DES SCIENCES DE

L' UNIVERSITE DE PARIS

pour obtenir le grade de

DOCTEUR ES SCIENCES PHYSIQUES

par

Jean-Claude LEHMANN

PREMIERE THESE :

"ETUDE DE L'ORIENTATION NUCLEAIRE PAR POMPAGE OPTIQUE DES ISOTOPES
IMPAIRS STABLES DU CADMIUM"

DEUXIEME THESE :

Proposition donnée par la Faculté

Soutenues le

Novembre 1966 devant la Commission d'Examen :

MM. A. KASTLER	}	Président	
P. JACQUINOT		}	Examineurs
J. BROSEL			
A. ABRAGAM			

Ce travail a été effectué au Laboratoire de Physique de l'Ecole Normale Supérieure, au cours des années 1963-1966. Je suis heureux de remercier ici Monsieur le Professeur KASTLER de m'avoir accueilli dans son groupe de recherche où j'ai trouvé des conditions de travail excellentes.

Monsieur le Professeur BROSEL a dirigé mon travail et m'a constamment fourni une aide indispensable sur tous les plans. C'est un grand plaisir pour moi que de trouver dans ces quelques lignes l'occasion de lui exprimer une très grande reconnaissance.

Ce travail s'est déroulé dans l'ambiance stimulante d'un groupe et, sans pouvoir les nommer tous, je remercie ici mes camarades pour les fructueuses discussions que nous avons eues. Je remercie en particulier C. COHEN-TANNOUJJI qui m'a beaucoup aidé sur le plan théorique. Madame LEDUC a participé à l'étude du pompage optique par la raie $3261 \overset{\circ}{\text{Å}}$.

Je remercie l'équipe de techniciens électroniciens et mécaniciens qui n'a jamais hésité à effectuer les circuits les plus compliqués ou à travailler les matériaux les plus ingrats pour me venir en aide.

Je remercie Mademoiselle BRODSCHI d'avoir assuré la frappe de ce texte avec toute la compétence qui la caractérise.

J'adresse enfin à Monsieur Yves ROCARD, Directeur du Laboratoire, tous mes remerciements pour sa généreuse hospitalité.

TABLE DES MATIERES

	pages
INTRODUCTION GENERALE	1
<u>PREMIERE PARTIE - ETUDE THEORIQUE</u>	
INTRODUCTION	7
<u>CHAPITRE I - CONSIDERATIONS GENERALES</u>	10
A/ Sous-niveaux d'énergie du niveau 5^1P_1 Antic croisements de niveaux	10
B/ Calcul simplifié du cycle de pompage optique	15
<u>CHAPITRE II - RESULTATS OBTENUS DANS LE FORMALISME DE LA MATRICE DENSITE</u>	19
A/ Remarques préliminaires. Notations	19
B/ Equations générales d'évolution	21
C/ Evolution des populations	23
D/ Evolution des cohérences	32
<u>CHAPITRE III - LES SIGNAUX OPTIQUES DE LA RESONANCE MAGNETIQUE</u>	41
A/ Les signaux d'absorption	41
B/ Les signaux de fluorescence	42
<u>CHAPITRE IV - ORIENTATION NUCLEAIRE EN CHAMP TRES FAIBLE</u>	47
A/ Introduction	47
B/ Principe du calcul	48
C/ Hypothèse de calcul	49
D/ Equations du pompage optique	50
E/ Système d'équation complet	52
F/ Différentes solutions de ce système	54
G/ Signaux de détection	57
<u>DEUXIEME PARTIE - RESULTATS EXPERIMENTAUX</u>	
INTRODUCTION	63
<u>CHAPITRE V - ORIENTATION NUCLEAIRE DU CADMIUM PAR LA RAIE 2288 Å</u>	68
A/ Conditions expérimentales	68
B/ Présentation des résultats obtenus	74

.../...

C/ Efficacité du pompage optique. Taux de polarisation de la lumière de fluorescence	75
D/ Observation des déplacements de la raie de résonance	86
E/ Phase de la modulation de la lumière de fluorescence	89
F/ Remarques	103
<u>CHAPITRE VI - POMPAGE OPTIQUE EN CHAMP TRES FAIBLE</u>	107
A/ Effet Hanle dans l'état fondamental	107
B/ Résonance magnétique à fréquence nulle	110
<u>CHAPITRE VII - ORIENTATION NUCLEAIRE DU CADMIUM PAR LA RAIE 3261 Å</u>	115
A/ Conditions expérimentales	116
B/ Mesure du rapport des moments magnétiques nucléaires de ^{111}Cd et ^{113}Cd	119
<u>CHAPITRE VIII - ETUDE DE LA RELAXATION DE ^{111}Cd ET ^{113}Cd</u>	125
A/ Techniques de mesure	125
B/ Résultats expérimentaux	127
C/ Comparaison avec ^{199}Hg	132
D/ Orientation nucléaire de ^{67}Zn	133
<u>CONCLUSION</u>	135
<u>APPENDICE</u>	139
<u>BIBLIOGRAPHIE</u>	144

INTRODUCTION

A la suite d'un premier essai infructueux de BROSSEL et BITTER (1), CAGNAC et al. (2) ont pu observer pour la première fois, en 1958, l'orientation nucléaire par pompage optique des isotopes impairs du mercure : ^{199}Hg et ^{201}Hg . Ce fut le premier exemple de pompage optique d'atomes diamagnétiques dans leur état fondamental, permettant d'obtenir une orientation nucléaire à la température ordinaire.

De très nombreuses expériences furent alors réalisées sur les différents isotopes impairs du mercure (stables ou radioactifs), ainsi orientés :

- . Mesure des moments magnétiques nucléaires de ^{199}Hg , ^{201}Hg (3), ^{197}Hg (4), ^{195}Hg (5) etc.

- . Etude de la relaxation lors des collisions sur des parois de silice, des noyaux de ^{199}Hg (3) et ^{201}Hg (6).

- . Vérifications expérimentales de la théorie quantique du cycle de pompage optique et mise en évidence des effets nouveaux prévus (7).

- . Extension de la théorie précédente par quantification du champ de radiofréquence (8) etc.

A l'occasion de ces travaux, un formalisme fut élaboré pour traiter ces problèmes et de nombreuses techniques expérimentales furent mises au point.

De ce succès naquit rapidement l'idée d'étendre cette méthode de production d'une orientation nucléaire à d'autres atomes diamagnétiques de la même colonne du tableau de MENDELEIEV, en particulier le zinc et le cadmium.

.../...

Les premiers essais portèrent sur le zinc (^{67}Zn) qui possède deux raies de résonance : $4^1\text{S}_0 - 4^3\text{P}_1$ (3076 Å) et $4^1\text{S}_0 - 4^1\text{P}_1$ (2138 Å). Le niveau 4^3P_1 avait été longuement étudié par double résonance et sa durée de vie est très longue ($3 \cdot 10^{-5}$ sec.) (9). La probabilité d'absorption de la raie 3076 Å est donc très faible et cette situation peu favorable au pompage optique avait conduit à éliminer l'emploi de cette raie. Le pompage par la raie 2138 Å posait de nombreux problèmes liés en particulier à l'obtention de faisceaux lumineux polarisés de grande ouverture. Ce dernier problème fut résolu par l'apparition sur le marché, en 1961, de films polarisants donnant des taux de polarisation appréciables à cette longueur d'onde (10).

Il fallut attendre 1962 pour que les premières tentatives d'orientation nucléaire de ^{67}Zn par pompage optique par la raie 2138 Å soient sérieusement tentées (11). Ces tentatives se soldèrent rapidement par un échec. Une analyse critique de l'appareillage expérimental ne permit pas, pendant longtemps, d'expliquer cet échec : ni l'intensité lumineuse globale émise, ni la largeur des raies données par les lampes, ni le spin nucléaire élevé de ^{67}Zn (5/2), ne semblaient pouvoir être mis en cause. Il aurait fallu un temps de relaxation extrêmement court (de l'ordre de la milliseconde), pour expliquer le résultat négatif observé. Or il est probable que la relaxation de ^{67}Zn a pour origine, comme celle de ^{201}Hg , le moment électrique quadrupolaire nucléaire. Les mesures faites sur ^{201}Hg donnent des temps de relaxation beaucoup plus longs et semblaient écarter cette hypothèse.

L'origine de l'échec est en réalité la suivante : bien qu'inconnue, la structure hyperfine du niveau 4^1P_1 de ^{67}Zn est certainement très faible et très inférieure à la largeur naturelle de ce niveau. Ceci résulte du caractère singulet de ce niveau et du fait que le coupla-

.../...

ge spin-orbite dans le zinc est un couplage RUSSEL-SAUNDERS presque parfait (c'est aussi la raison de la très longue durée de vie du niveau 4^3P_1)

On peut se demander, de façon tout à fait générale, comment on parvient à provoquer (dans Hg par exemple) une orientation nucléaire par pompage optique à l'aide d'une transition dipolaire électrique qui n'agit pas directement sur \vec{I} . Comme l'analyse détaillée présentée au chapitre I le montrera clairement, cela est possible parce que l'interaction hyperfine $a\vec{I}\cdot\vec{J}$ existe dans l'état excité : l'absorption d'une raie dipolaire électrique polarisée en σ^+ (ou σ^-) oriente \vec{J} , \vec{J} oriente \vec{I} par l'intermédiaire du couplage $a\vec{I}\cdot\vec{J}$ et l'orientation nucléaire ainsi obtenue (dans l'état excité) est transférée intégralement à l'état fondamental par émission spontanée.

Cette image du cycle de pompage optique des éléments de la deuxième colonne est valable moyennant certaines hypothèses que nous préciserons par la suite. Nous l'avons donnée sous cette forme car elle rend intuitif le fait que l'orientation nucléaire n'est susceptible de se produire dans ce cas que dans la mesure où le couplage hyperfin $a\vec{I}\cdot\vec{J}$ a le temps de s'établir au cours de la durée de vie de l'état excité, τ . En langage du modèle vectoriel, il faut que \vec{I} et \vec{J} aient, dans le temps τ , le temps de précesser au moins une fois autour de leur résultante \vec{F} , c'est-à-dire que $a\tau \gg 1$: la structure hyperfine a doit être grande devant la largeur naturelle de l'état excité. Cette condition est satisfaite pour les raies de résonance du mercure (2537 \AA et 1850 \AA), à l'aide desquelles l'orientation nucléaire des isotopes ^{199}Hg et ^{201}Hg a été effectivement obtenue ⁽²⁾(¹²); elle n'est pas du tout satisfaite pour la raie 2138 \AA de ^{67}Zn , ce qui explique l'échec que nous avons rapporté ci-dessus.

Il n'est peut-être pas inutile de remarquer que dans le cas d'un atome paramagnétique (un alcalin par exemple), une orientation nucléaire pourra être obtenue même si la condition $\gamma \gg 1$ n'est pas satisfaite dans l'état excité. Il suffit qu'elle le soit dans l'état fondamental (¹³) (τ représentant alors le temps de relaxation T_2).

L'étude des isotopes impairs du cadmium ¹¹¹Cd et ¹¹³Cd (de spin nucléaire $I = 1/2$ l'un et l'autre) permettait une vérification détaillée de l'interprétation précédente. C'est la présentation des résultats de cette étude qui est l'objet essentiel du présent mémoire.

Le cadmium possède deux raies de résonance : $5^1S_0 - 5^1P_1$ (2288 Å) et $5^1S_0 - 5^3P_1$ (3261 Å), qui ont été utilisées l'une et l'autre avec succès pour orienter ¹¹¹Cd et ¹¹³Cd. Le niveau 5^1P_1 possède pour ces deux isotopes une structure hyperfine qui est environ trois fois plus grande que sa largeur naturelle. Ainsi le pompage du cadmium par la raie 2288 Å correspond à une situation qui est intermédiaire entre celles qui caractérisent le zinc (pompe par 2138 Å) et le mercure (pompe par 1850 Å ou 2537 Å).

Nous avons tout d'abord entrepris l'étude théorique détaillée de cette situation, complétant ainsi les travaux de COHEN-TANNOUDJI (7) sur l'étude quantique du cycle de pompage optique. Notre étude ayant été publiée dans un article du Journal de Physique désigné ci-après par JPl, nous nous contenterons, dans la première partie du présent exposé, de rappeler les résultats intéressants en les explicitant dans le cas particulier de ¹¹¹Cd et ¹¹³Cd où $I = 1/2$. Nous donnerons les interprétations physiques des formules auxquelles nous avons abouti et présenterons la théorie des signaux optiques de la résonance magnétique nucléaire (toujours pour ¹¹¹Cd ou ¹¹³Cd). Nous donnerons en outre quelques résultats théoriques relatifs à l'orientation

.../...

nucléaire du cadmium en champ très faible, champ pour lequel les sous-niveaux Zeeman de l'état fondamental se confondent à leur largeur naturelle près. Cette dernière étude sera faite dans le même esprit que la précédente et permettra d'en éclairer certaines interprétations.

Dans une seconde partie, nous présenterons les résultats expérimentaux obtenus sur ^{111}Cd et ^{113}Cd . Nous donnerons leurs interprétations dans le cadre de la théorie précédente, dont la vérification se révèle excellente.

Nous avons ainsi exploré un vaste domaine de champs magnétiques, depuis les champs forts pour lesquels la structure hyperfine du niveau 5^1P_1 est totalement découplée jusqu'au domaine des champs très faibles définis ci-dessus.

Nous présenterons ensuite certains résultats expérimentaux obtenus sur ^{111}Cd et ^{113}Cd qui ne sont pas en relation directe avec l'étude théorique précédente, mais qui complètent l'étude expérimentale de l'orientation nucléaire du cadmium : il s'agit de l'obtention d'une orientation nucléaire de ^{111}Cd et ^{113}Cd par pompage par la raie 3261 \AA ($5^1S_0 - 5^3P_1$), et de l'utilisation qui a pu être faite de ce processus pour effectuer une mesure très précise du rapport des moments magnétiques nucléaires de ^{111}Cd et ^{113}Cd . Une étude de la relaxation des noyaux de ^{111}Cd et ^{113}Cd sur les parois de silice de la cellule a été nécessaire pour cela. Nous en donnerons brièvement à la fin les résultats.

On peut se demander si, en conclusion de cette étude, on doit abandonner à jamais l'espoir d'obtenir l'orientation nucléaire de ^{67}Zn par pompage optique. Il semble que les chances d'y parvenir avec la raie 2138 \AA soient très faibles même si les sources sont très brillantes, à cause de l'inefficacité du pompage dans ce cas. La raie

.../...

3076 Å offre peut-être finalement plus de ressources si l'on parvient à réaliser des sources très intenses (et épaisses), et si, par un traitement thermique approprié, on parvient, comme pour ^{111}Cd et ^{113}Cd , à allonger les temps de relaxation de ^{67}Zn lors des collisions sur les parois de la cellule.

Nous terminons ces remarques en indiquant la convention suivante, adoptée tout au long du présent exposé : nous adoptons un système d'unités où $\hbar = c = 1$ et nous mesurons les énergies en unités de pulsation ω .

.../...

PARTIE THEORIQUE

INTRODUCTION

En général, les exposés de la théorie du cycle de pompage optique dans les atomes diamagnétiques (lequel permet d'obtenir une orientation nucléaire de l'état fondamental) ne cherchent pas à mettre en évidence le fait que la seule étape de ce cycle qui agisse sur le spin nucléaire I de l'atome est le couplage hyperfin $\vec{a} \cdot \vec{I} \cdot \vec{J}$ dans l'état excité. Il n'est d'ailleurs souvent pas nécessaire de faire intervenir cette notion : la raie excitatrice en effet est souvent moins large que la structure hyperfine ω_{hf} de l'état excité et l'on peut dire dans ce cas que le couplage hyperfin intervient avant même que le processus d'excitation optique ne soit terminé.

Nous nous plaçons ici délibérément dans une situation opposée : nous supposons réalisées les conditions

$$(1) \quad \Delta \gg a \quad \text{et} \quad \Delta \gg \omega_z$$

Δ est la largeur de la raie excitatrice de la source. Elle est généralement de l'ordre de plusieurs largeurs Doppler.

a est la constante de structure hyperfine de l'état excité.

$\omega_z = g_J \mu_B H_0$ est l'énergie Zeeman de l'état excité pour un isotope pair : elle donne un ordre de grandeur des énergies Zeeman des divers sous-niveaux hyperfins de cet état.

Ayant supposées réalisées ces conditions, on peut, comme COHEN-TANNOUJJI, décomposer le cycle de pompage optique en trois étapes indépendantes, complètement séparées dans le temps :

.../...

1°) L'absorption d'un photon. La "durée" de ce processus est de l'ordre de $1/\Delta$ (voir à ce sujet la référence (7), page 18). Elle est très courte par rapport à tous les temps qui interviennent dans le problème.

2°) L'évolution propre de l'état excité sous l'influence de l'effet Zeeman et du couplage hyperfin. D'après les conditions (1), ces deux processus se font très lentement devant l'étape 1°) et leur durée est de l'ordre de τ , durée de vie de l'état excité.

3°) Le retour de l'atome dans l'état fondamental par émission spontanée. Ce processus peut également être considéré comme instantané devant les périodes de l'effet Zeeman et du couplage hyperfin dès l'instant où l'énergie de la transition optique est très supérieure à Γ , ce qui est toujours réalisé.

COHEN-TANNOUDJI faisait déjà l'hypothèse $\Delta \gg \omega_z$. Par contre, la condition $\Delta \gg a$ n'était pas toujours supposée réalisée par cet auteur, et en pratique, il menait le calcul sur un moment cinétique \vec{F} isolé. En adoptant l'hypothèse précédente, nous nous plaçons d'emblée dans les conditions d'excitation dites en "raie large", où la raie excitatrice recouvre largement la totalité de la structure hyperfine de l'état excité. Cette condition est nécessaire pour pouvoir considérer l'absorption d'un photon comme un processus "instantané" devant le couplage hyperfin.

Avec les hypothèses précédentes, nous avons pu développer le calcul complet du cycle de pompage optique, quelles que soient les valeurs comparées de a et de $\Gamma = 1/\tau$, largeur naturelle de l'état excité. Lorsque $a \gg \Gamma$, nous retrouvons les résultats de COHEN-TANNOUDJI pour une excitation en raie large. Par contre, lorsque $a \lesssim \Gamma$, de nombreux faits nouveaux apparaissent dont la description est

.../...

l'objet essentiel de la présente étude.

Nous faisons par ailleurs les mêmes hypothèses que COHEN-TANNOUJJI sur la nature du faisceau lumineux de pompage :

- Description de ce faisceau en termes de photons.
- Caractère incohérent de la phase de la lumière (il n'existe pas de moment dipolaire électrique global pour l'ensemble des atomes).
- Emission induite négligeable devant l'émission spontanée.

Le plan adopté dans cette partie théorique est le suivant :

Tout d'abord une analyse de la structure du niveau 5^1P_1 , sous l'effet du couplage hyperfin et d'un champ magnétique, nous amènera à préciser quelques idées physiques que nous retrouverons par la suite.

Une première étude simplifiée du cycle de pompage optique nous permettra de dresser un parallèle avec le phénomène de double résonance de BROSSEL et BITTER. De premières conclusions pourront en être tirées.

Nous présenterons alors les résultats obtenus dans le formalisme de la matrice densité, ce qui nous permettra d'étudier en détail l'évolution de l'état fondamental du système atomique, d'étudier les grandeurs longitudinales (différence de populations entre les deux sous-niveaux Zeeman) et les grandeurs transversales ("cohérences hertziennes" entre ces sous-niveaux), ainsi que d'explicitier les signaux optiques observés.

Enfin, utilisant un formalisme proche de celui des équations de BLOCH, nous donnerons quelques résultats relatifs au pompage optique en champ très faible, lorsque les sous-niveaux Zeeman de l'état fondamental se recouvrent à leur largeur naturelle près (effet Hanle dans l'état fondamental).

.../...

CHAPITRE I

CONSIDERATIONS GENERALES

A/ SOUS-NIVEAUX D'ENERGIE DU NIVEAU 5^1P_1 , $I = 1/2$.

ANTICROISEMENTS DE NIVEAUX.

La figure 1 représente, pour les isotopes ^{111}Cd et ^{113}Cd , en fonction du champ magnétique H_0 , les sous-niveaux Zeeman du niveau 5^1P_1 . Nous désirons interpréter l'effet Zeeman de cette structure hyperfine dans le cadre de la théorie des "anticroisements" (¹⁴) de niveaux. Le hamiltonien total s'écrit

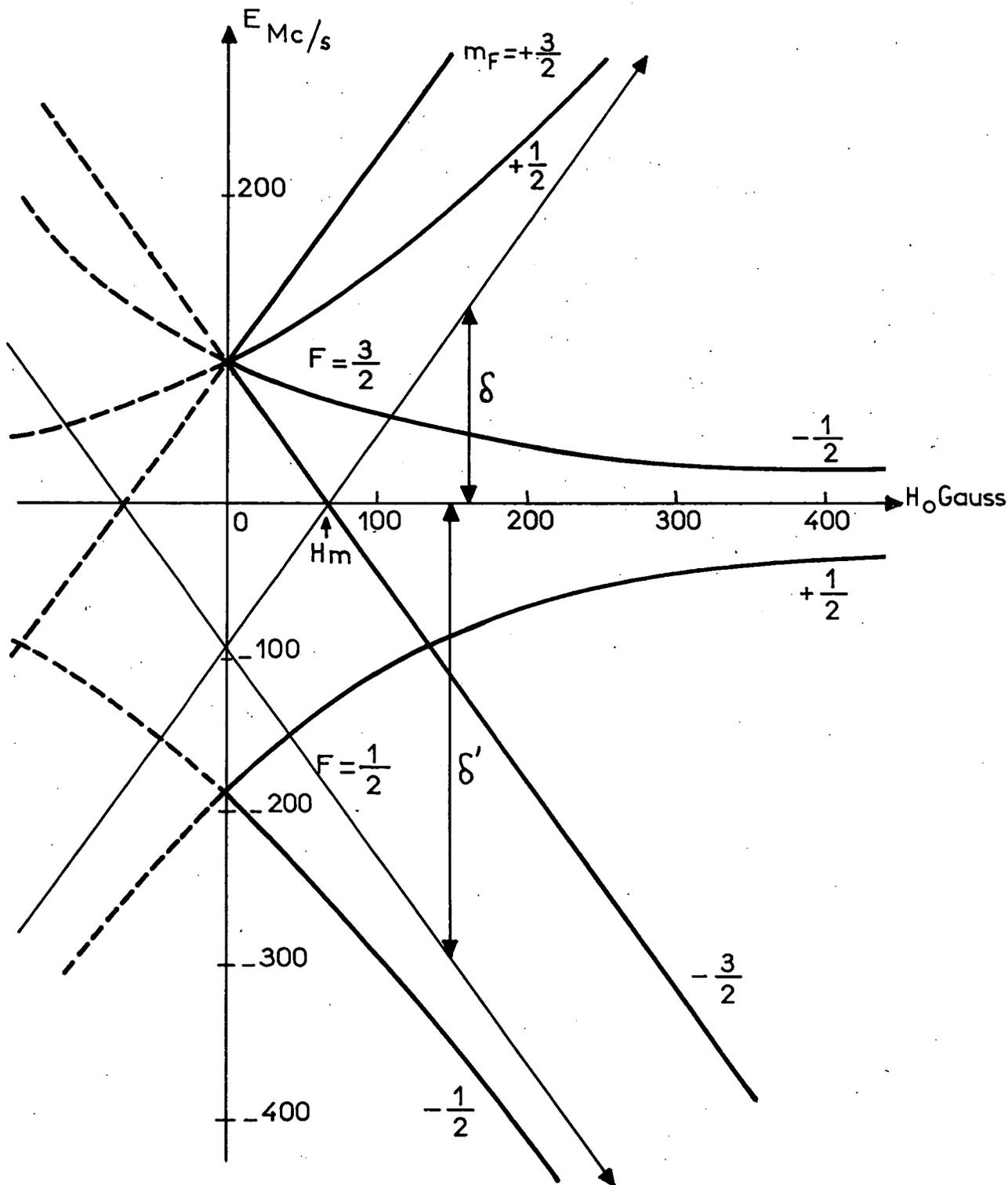
$$(2) \quad H = aI_z J_z + g_J \mu_B H_0 J_z + \frac{a}{2} (I_+ J_- + I_- J_+)$$

(Nous négligeons ici le terme $g_I \mu_B H_0$ deux mille fois plus petit que $\omega_z = g_J \mu_B H_0$).

En champ fort, c'est-à-dire lorsque $\omega_z \gg a$, le terme non diagonal de H , $\frac{a}{2} (I_+ J_- + I_- J_+)$ est négligeable devant le terme diagonal ($aI_z J_z + \omega_z J_z$). La structure des niveaux d'énergie est alors celle de la figure 2 : trois couples de droites parallèles correspondant aux trois valeurs $m_J = +1, 0$ et -1 ; chaque couple étant formé des sous-niveaux $m_I = +1/2$ et $-1/2$.

Si l'on prolonge ces droites dans la zone des champs faibles (en pointillé sur la figure 2), il apparaît de nombreux croisements de niveaux, parmi lesquels certains pour lesquels les deux niveaux qui se coupent ont même valeur de $m_F = m_I + m_J$ (croisements encerclés sur la figure 2) : en ces points le hamiltonien $\frac{a}{2} (I_+ J_- + I_- J_+)$ possède des éléments de matrice (non diagonaux), en sorte que les fonctions d'onde des deux états précédents se mélangent et que les niveaux d'éner-

.../...



Sous niveaux d'énergie du niveau $5^1 P_1$ de ^{111}Cd

Figure 1

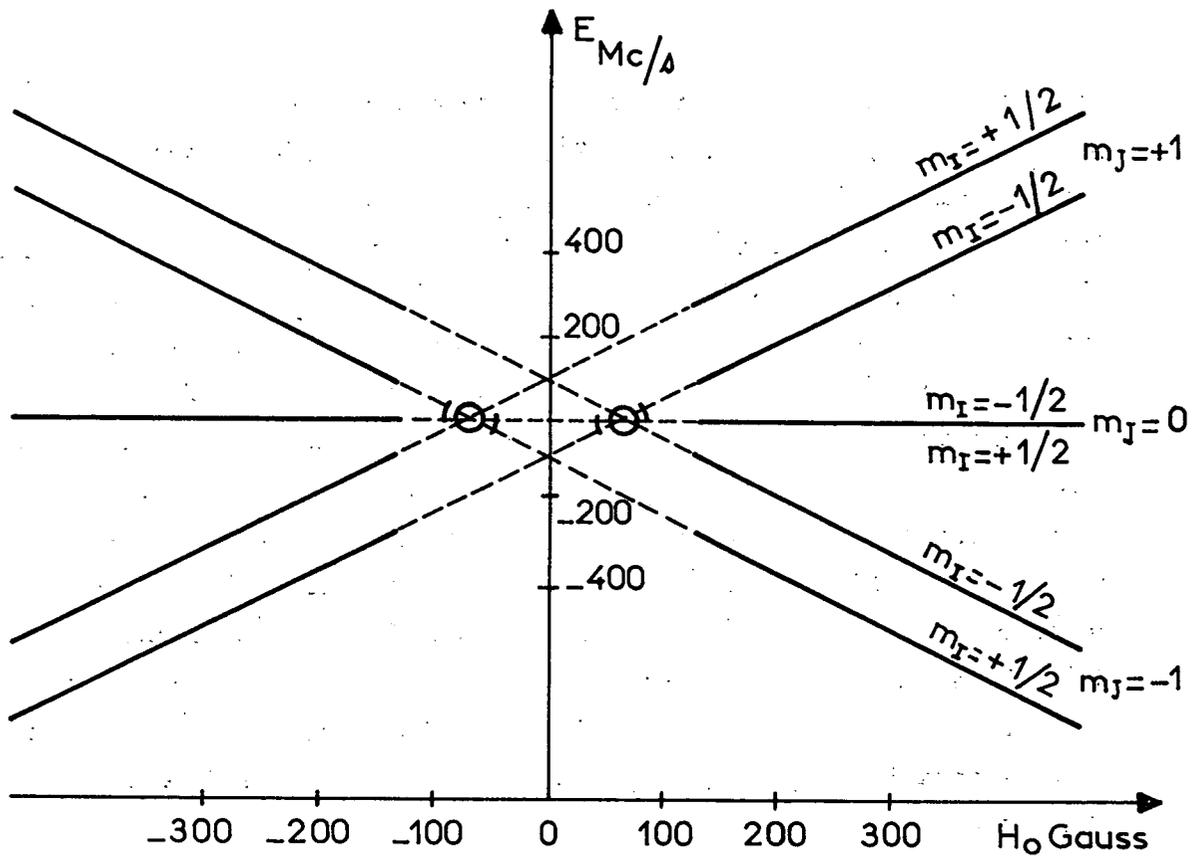


Figure 2

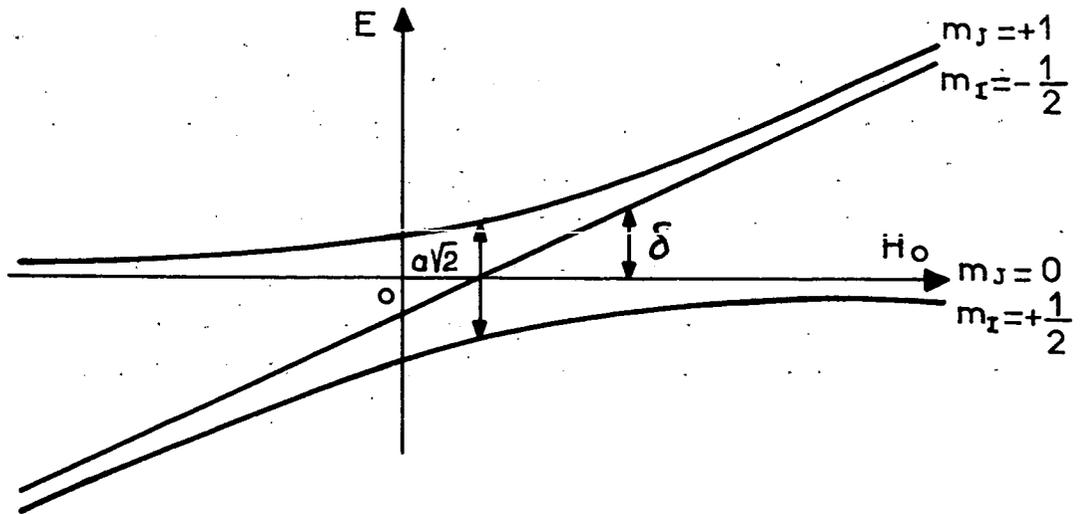


Figure 3

gie correspondant se "repoussent". En tenant compte du terme $\frac{a}{2} (I_+ J_- + I_- J_+)$ du hamiltonien (2), la structure réelle des sous-niveaux Zeeman devient celle de la figure 3 : on voit qu'ils forment les deux branches d'une hyperbole dont les asymptotes sont les droites représentant les sous-niveaux considérés ci-dessus en champ fort. Le centre de l'hyperbole est le point de croisement des sous-niveaux non perturbés. Pour la valeur de H_0 correspondant à ce point, la différence d'énergie entre les deux sous-niveaux d'énergie réels ne s'annule pas et passe par un minimum égal à $a\sqrt{2}$ (figure 3). Sur la figure 3, on n'a considéré, pour simplifier, que le cas des sous-niveaux $| m_I m_J \rangle = | +1/2, 0 \rangle$ et $| -1/2, +1 \rangle$. La situation est analogue pour le couple $| +1/2, -1 \rangle$ et $| -1/2, 0 \rangle$, mais l'"anticroisement" se produit alors pour une valeur négative du champ H_0 . La figure 1 résulte de la superposition des deux "anticroisements" précédents et des deux sous-niveaux $| +1/2, +1 \rangle$ et $| -1/2, -1 \rangle$ qui sont des fonctions linéaires de H_0 .

Interprétation des signaux optiques d'"anticroisement" de niveaux.

Une excitation optique satisfait à la règle de sélection $\Delta m_I = 0$. Suivant la polarisation de la lumière et le sous-niveau Zeeman de départ dans l'état fondamental, on excitera donc l'un des deux sous-niveaux $| m_I m_J \rangle = | +1/2, 0 \rangle$ et $| -1/2, +1 \rangle$ pur. Pendant la durée de vie de l'état excité, ces deux sous-niveaux ayant la même valeur de $m_F = m_I + m_J$ vont se mélanger (à un degré dépendant de la valeur de H_0), et la polarisation de la lumière réémise traduira ce mélange (elle est en effet sensible à m_J). Donc, en choisissant convenablement la polarisation de la lumière excitatrice et en observant la lumière de fluorescence réémise avec une polarisation convenable, on pourra observer, en balayant H_0 , un signal optique dont l'intensité variera au voisinage du

.../...

point d'anticroisement. C'est ce signal même qui a été appelé "signal d'anticroisement" et sur lequel nous reviendrons par la suite.

Il est intéressant de comparer cette situation à celle du phénomène de double résonance de BROSSSEL et BITTER dans le référentiel tournant (15)(16). Si ω est la pulsation du champ de radiofréquence tournant H_1 , perpendiculaire à H_0 , le champ longitudinal vu par l'atome dans ce référentiel tournant à la vitesse ω , vaut $H_0 - \frac{\omega}{\gamma}$ (où γ est le rapport gyromagnétique des spins 1/2 considérés). Il existe en outre un champ transversal H_1 statique. Il est clair que le hamiltonien Zeeman dû à H_1 possède des éléments non diagonaux entre les états $| +1/2 \rangle$ et $| -1/2 \rangle$ (par rapport à la direction Oz de H_0), et qu'il provoque un mélange de ces états. Les spins précessent autour du champ "effectif". La probabilité de transition (de retournement de $| +1/2 \rangle$ à $| -1/2 \rangle$) est donc maximum lorsque ce dernier est perpendiculaire à Oz, c'est-à-dire lorsque la composante longitudinale du champ $(H_0 - \frac{\omega}{\gamma})$ est nulle. Dans le cas de l'interaction hyperfine, on voit que l'on peut dresser un parallélisme étroit avec la situation dont nous venons de faire l'analyse. Ceci tient à ce que l'on peut décrire la structure hyperfine comme étant due à un champ magnétique ayant une origine interne à l'atome : le terme non diagonal $\frac{a}{2} (I_+ J_- + I_- J_+)$ du hamiltonien (2) a pour équivalent le terme en γH_1 du hamiltonien de la double résonance : il est lié à un champ magnétique interne à l'atome, transversal et statique. Le terme diagonal $g_J \mu_B H_0 J_z + a m_I m_J$ a pour équivalent le terme en $\gamma H_0 - \omega$ du hamiltonien de double résonance. Il est lié à un champ magnétique interne à l'atome et longitudinal. Ici encore, le mélange des fonctions d'onde (et l'amplitude des signaux observés) est maximum lorsque le "champ longitudinal" total est nul $(g_J \mu_B H_0 - \frac{a}{2} = 0$: les deux sous-niveaux non perturbés de la figure 3 se coupent).

.../...

Le signal de double résonance est donné par la formule

$$\frac{1}{2} \frac{(\gamma H_1)^2}{(\gamma H_1)^2 + (\omega - \gamma H_0)^2 + \Gamma^2} \quad (\Gamma \text{ est la largeur naturelle du niveau$$

excité). Cette formule est l'analogie de celle que nous démontrerons plus loin pour le signal d'anticroisement :

$$\frac{1}{2} \frac{2a^2}{2a^2 + \delta^2 + \Gamma^2} . \quad \text{Ces formules sont identiques si l'on substitue}$$

$a\sqrt{2}$ à γH_1 et δ à $(\omega - \gamma H_0)$. Si par ailleurs on trace les sous-niveaux Zeeman d'un spin 1/2 dans le référentiel tournant, on obtient une figure analogue à la figure 3 : en effet, on porte en abscisse $\omega - \gamma H_0$, le champ longitudinal et l'existence de H_1 statique repousse les sous-niveaux d'une quantité γH_1 lorsque $\omega - \gamma H_0 = 0$. Ici encore $a\sqrt{2}$ se substitue à γH_1 et δ , écart entre niveaux non perturbés sur la figure 3 se substitue à $\omega - \gamma H_0$, écart entre sous-niveaux du spin 1/2 lorsque $H_1 = 0$.

B/ CALCUL SIMPLIFIE DU CYCLE DE POMPAGE OPTIQUE

L'interprétation précédente conduit à un calcul simple de l'efficacité du cycle de pompage optique dans le cas où $I = 1/2$.

Représentons pour cela les sous-niveaux d'énergie sous la forme du diagramme de la figure 4. On se place ici en représentation $m_I m_J$. Les sous-niveaux Zeeman $| m_J \rangle = | -1 \rangle, | 0 \rangle$ et $| +1 \rangle$ sont étalés horizontalement. Chacun d'eux se dédouble verticalement en deux sous-niveaux $m_I = -1/2$ et $+1/2$ dans l'état excité et $| \mu \rangle = | -1/2 \rangle$ et $| +1/2 \rangle$ dans l'état fondamental.

.../...

$m_J = -1$
 $m_I = +\frac{1}{2}$ —
 $m_I = -\frac{1}{2}$ —

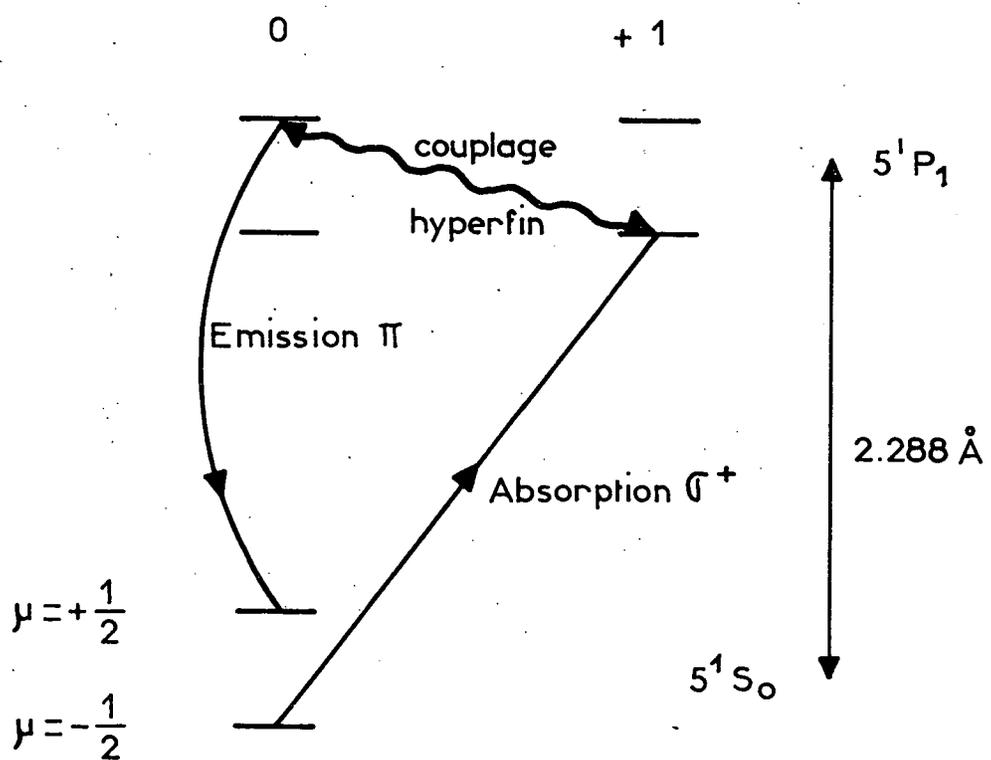


Figure 4

Nous avons alors les étapes suivantes très analogues à celles que l'on rencontre dans le calcul du signal de double résonance :

1°) Absorption d'un photon σ^+ à partir du sous-niveau $|\mu\rangle = |-1/2\rangle$ de l'état fondamental. L'atome est porté dans le sous-niveau $|m_I m_J\rangle = |-1/2, +1\rangle$ du niveau excité (règle de transition $\Delta m_I = 0$ des transitions dipolaires électriques).

2°) Partant de l'état $|-1/2, +1\rangle$ à l'instant $t = 0$, l'atome "oscille" entre les sous-niveaux $|-1/2, +1\rangle$ et $|+1/2, 0\rangle$ (de même valeur de $m_F = m_I + m_J$) du fait du couplage hyperfin. On trouve que sa fonction d'onde à l'instant t est

$$(3) \quad \psi(t) = (\omega_2 - \omega_1)^{-1} \{ (\omega_2 e^{-i\omega_2 t} - \omega_1 e^{-i\omega_1 t}) | -\frac{1}{2}, +1 \rangle + \frac{a}{\sqrt{2}} (e^{-i\omega_2 t} - e^{-i\omega_1 t}) | +\frac{1}{2}, 0 \rangle \}$$

ω_1 et ω_2 sont les énergies des deux sous-niveaux en unités de pulsation :

$$(4) \quad \begin{cases} \omega_1 = \frac{3a}{4} \left(x - \frac{1}{3} - \sqrt{1 - \frac{2x}{3} + x^2} \right) \\ \omega_2 = \frac{3a}{4} \left(x - \frac{1}{3} + \sqrt{1 - \frac{2x}{3} + x^2} \right) \end{cases}$$

(en représentation $|F, m_F\rangle$, il s'agit des deux sous-niveaux $|1/2, +1/2\rangle$ et $|3/2, +1/2\rangle$ (fig. 1))

$x = 2g_J \mu_B H_0 / 3a$ est le paramètre caractéristique du degré de découplage de \vec{I} et de \vec{J} .

3°) L'atome retombe dans l'état fondamental au bout d'un temps t , avec la probabilité $\Gamma = 1/\tau$ par unité de temps, en suivant à nouveau la règle de sélection $\Delta m_I = 0$. Pour qu'il retombe dans le sous-niveau $|\mu\rangle = |+1/2\rangle$ de l'état fondamental, il faut qu'il parte du sous-niveau $|+1/2, 0\rangle$ de l'état excité. La probabilité qu'a l'atome

.../...

de se trouver dans cet état à l'instant t est, d'après la formule (3)

$$(5) \quad \left| \frac{a}{\sqrt{2}} \frac{(e^{-i\omega_2 t} - e^{-i\omega_1 t})}{\omega_2 - \omega_1} \right|^2 = \frac{a^2}{(\omega_2 - \omega_1)^2} (1 - \cos(\omega_2 - \omega_1)t)$$

La probabilité qu'un atome passe du sous-niveau $|\mu\rangle = |-1/2\rangle$ de l'état fondamental au sous-niveau $|\mu\rangle = |+1/2\rangle$ (c'est-à-dire l'efficacité du processus d'orientation nucléaire par pompage optique) par absorption d'un photon σ^+ et réémission d'un photon π (fig. 4), est donc :

$$(6) \quad p^+ = \Gamma \int_0^\infty e^{-\Gamma t} \cdot \frac{a^2}{(\omega_2 - \omega_1)^2} (1 - \cos(\omega_2 - \omega_1)t) dt = \frac{a^2}{\Gamma^2 + (\omega_2 - \omega_1)^2} = \frac{a^2}{\Gamma^2 + \delta^2 + 2a^2}$$

$\delta = g_J \mu_B H_0 - \frac{a}{2}$ est représenté sur les figures 1 et 3. On peut remarquer que p^+ représente également la proportion de lumière π réémise après excitation en σ^+ par un atome initialement dans le sous-niveau $|\mu\rangle = |-1/2\rangle$.

Cette formule est susceptible de vérifications expérimentales : elle fait apparaître la dépendance de p^+ , efficacité du processus d'orientation nucléaire par pompage optique, en $g_J \mu_B H_0 / a$ et en a/Γ . Nous discuterons en détail plus loin l'influence de ces paramètres. La généralisation de cette formule aux cas où $I > 1/2$ est difficile par cette méthode. On trouvera traité partiellement le cas $I = 3/2$ dans l'appendice 2. Les formules qui apparaissent alors sont du type de MAJORANA-BROSSEL. Par ailleurs, le type de raisonnement utilisé ici ne permet pas de tirer le maximum d'informations possibles sur le cycle de pompage optique. Nous allons donc reprendre le cas particulier où $I = 1/2$, mais en utilisant le formalisme plus général de la matrice densité. La formule précédente sera tout d'abord retrouvée et analysée; d'autres conséquences apparaîtront par la suite.

.../...

CHAPITRE II

RESULTATS OBTENUS DANS LE FORMALISME DE LA MATRICE DENSITE

Nous ne reprendrons pas ici l'étude théorique complète du cas général ou du cas particulier $I = 1/2$. Les résultats en ont été exposés très en détail dans JPl. Nous nous contenterons de rappeler les formules finales obtenues, d'en donner l'interprétation et d'en faire la discussion dans le cas particulier $I = 1/2$, ceci afin de pouvoir les comparer aux vérifications expérimentales qui seront exposées dans la seconde partie.

A/ REMARQUES PRELIMINAIRES. NOTATIONS

La représentation adoptée ici sera, pour chaque valeur du champ H_0 , celle des fonctions propres du hamiltonien H (formule (2)). Ceci signifie qu'en champ faible, on sera en représentation $| F, m_F \rangle$, en champ fort, en représentation $| m_I, m_J \rangle$. Par convention, nous noterons par continuité chaque sous-niveau par les valeurs de F et de m_F qui sont celles du sous-niveau auquel il aboutit en champ nul. Ainsi $| F, m_F \rangle$ sera pour toute valeur de H_0 , un état propre de H . On peut alors écrire le développement $| F, m_F \rangle = \sum_{m_I, m_J} | m_I, m_J \rangle \langle m_I, m_J | F, m_F \rangle$. Les coef-

ficients de couplage vectoriel $\langle m_I, m_J | F, m_F \rangle$ sont la généralisation des coefficients de CLEBSCH-GORDAN pour des valeurs quelconques du champ magnétique. Certains d'entre eux sont donnés dans l'appendice ($I = 1/2$, $I = 3/2$). Ces coefficients sont tous réels. Du fait de la règle de sélection $\Delta m_I = 0$ à l'émission comme à l'absorption, on peut écrire l'élément de matrice de l'opérateur $\vec{e}_\lambda \cdot \vec{D}$:

.../...

$$(7) \quad \langle \mu | \vec{e}_\lambda \cdot \vec{D} | F, m_F \rangle = \langle \mu | \vec{e}_\lambda \cdot \vec{D} | \mu, m-\mu \rangle \langle \mu, m-\mu | F, m_F \rangle$$

\vec{e}_λ est le vecteur polarisation de la lumière, \vec{D} est l'opérateur dipolaire électrique réduit à sa partie angulaire, $|\mu\rangle$ est un sous-niveau Zeeman nucléaire de l'état fondamental.

$$\langle \mu | \vec{e}_\lambda \cdot \vec{D} | \mu, m-\mu \rangle = \langle 0 | \vec{e}_\lambda \cdot \vec{D} | m-\mu \rangle_{I=0}, \text{ ce dernier}$$

étant un élément de matrice $\vec{e}_\lambda \cdot \vec{D}$ pour un isotope pair. Les tableaux de l'appendice 1 donnent donc les valeurs de tous les éléments de matrice de $\vec{e}_\lambda \cdot \vec{D}$ entre les niveaux 5^1S_0 et 5^1P_1 , en champ quelconque.

Tels que nous les introduisons, les résultats exposés ici ne feront intervenir explicitement que la matrice densité de l'état fondamental. Celle-ci, dans le référentiel du laboratoire, comprend quatre éléments que nous noterons σ_{++} , σ_{--} , σ_{+-} et σ_{-+} (les symboles $+$ et $-$ étant mis pour $|\mu\rangle = | +1/2 \rangle$ et $|\mu\rangle = | -1/2 \rangle$).

Les éléments $\sigma_{F, m_F; F', m'_F}$ de la matrice densité de l'état excité sont très longuement étudiés dans JPl. Ils apparaîtront implicitement ici derrière chacun des termes des expressions écrites : lors de l'absorption d'un photon, de nombreux éléments $\sigma_{F, m; F', m'}$ sont induits dans l'état excité (même pour une excitation en polarisation incohérente, σ^+ , σ^- ou π pure; seules sont à considérer les règles de sélection pour l'absorption d'un photon). Au cours de la durée de vie τ de l'état excité, ces éléments évoluent à la vitesse $\omega_{F, m_F} - \omega_{F', m'_F}$, où ω_{F, m_F} est l'énergie du sous-niveau $|F, m_F\rangle$. Si $\omega_{F, m_F} - \omega_{F', m'_F} \gg \Gamma$, le moyennage des termes $\sigma_{F, m_F; F', m'_F}$ sur l'ensemble des atomes de la vapeur est nul : globalement $\sigma_{F, m_F; F', m'_F}$ ne survit pas à l'évolution propre dans l'état excité et ne joue aucun rôle dans le cycle de pompage optique. C'est pourquoi, dans

.../...

la théorie de COHEN-TANNOUDJI, aucun terme en $\sigma_{F,m;F',m'}$, avec $F \neq F'$ n'apparaît (COHEN-TANNOUDJI fait l'hypothèse que $a \gg \Gamma$).

Dans notre cas, au contraire, a peut être de l'ordre de Γ et, pour l'ensemble des atomes, $\sigma_{F,m_F;F',m'_F}$ peut être différent de zéro quels que soient F et F' . L'évolution propre de ces cohérences dans l'état excité se traduit, en général, par la présence d'un facteur

$$\frac{\Gamma}{\Gamma + i(\omega_{F,m_F} - \omega_{F',m'_F})} \quad (\text{ce facteur est nul si } \omega_{F,m_F} - \omega_{F',m'_F} \gg \Gamma).$$

Nous trouverons de tels facteurs assez fréquemment et nous soulignerons toujours les termes qui, dans la théorie présente, sont nouveaux par rapport aux théories antérieures : ce sont ceux pour lesquels $F \neq F'$.

Nous renvoyons cependant le lecteur à JPl dans lequel ces problèmes sont discutés avec beaucoup plus de rigueur et de détail.

B/ EQUATIONS GENERALES D'EVOLUTION

On a repris sur la figure 5 les notations de la figure 3 de JPl.

a_1, a_2, b_1 et b_2 sont des éléments de matrice $\langle \mu | \vec{e}_{\lambda_0} \cdot \vec{D} | F, m_F \rangle$ pour les polarisations σ^+ (a_1, a_2) ou π (b_1, b_2) entre les niveaux indiqués sur la figure 5. On a par ailleurs $c = \langle +\frac{1}{2} | \vec{e}_+ \cdot \vec{D} | \frac{3}{2} + \frac{3}{2} \rangle = 1$ quel que soit le champ magnétique (on notera \vec{e}_+, \vec{e}_- et \vec{e}_0 les vecteurs \vec{e}_{λ} correspondant aux polarisations σ^+, σ^- et π).

Ω_0, Ω_1 et Ω_2 sont, en grandeur et en signe (voir fig. 5), les différences d'énergie $\Omega_0 = \omega_{3/2,+1/2} - \omega_{1/2,+1/2}$

$$\Omega_1 = \omega_{3/2,+3/2} - \omega_{3/2,+1/2} \text{ et}$$

$$\Omega_2 = \omega_{3/2,+3/2} - \omega_{1/2,+1/2}.$$

.../...

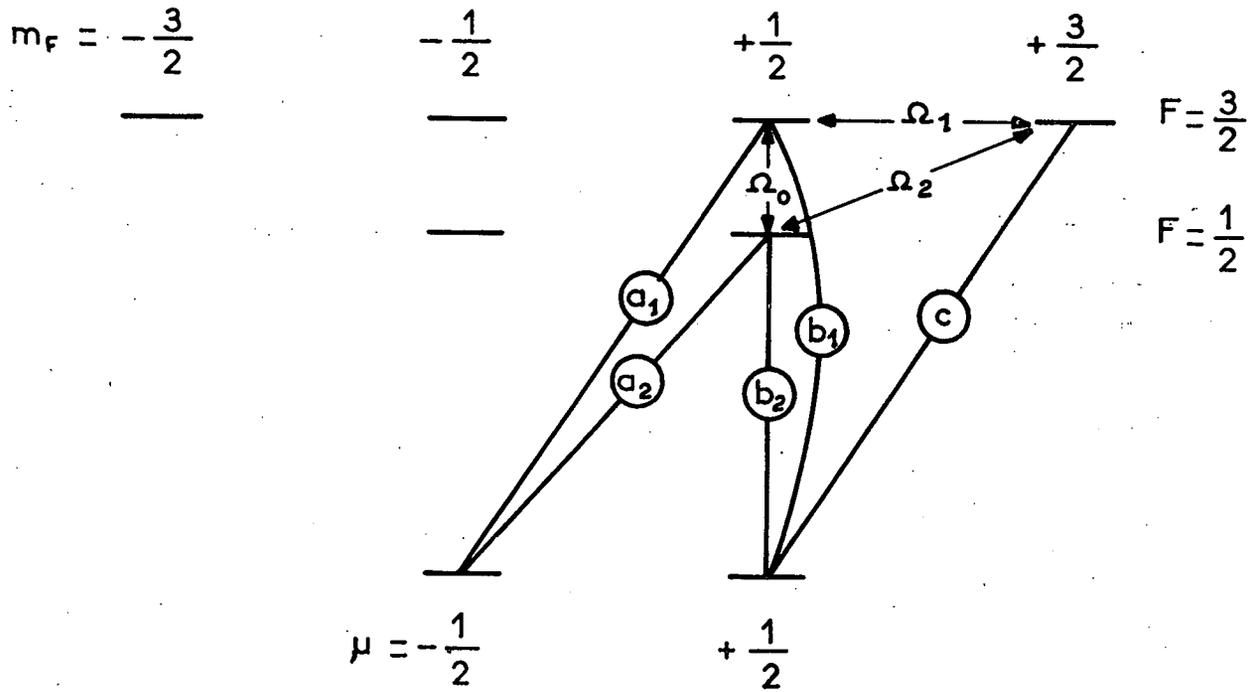


Figure 5

Si l'on reprend alors les formules (11) et (14) de JPl (lesquelles sont des cas particuliers de la formule (8) du même article), on obtient, pour un pompage en σ^+ , les équations d'évolution des différents termes de la matrice densité de l'état fondamental :

$$(8-a) \left\{ \begin{aligned} \frac{d}{dt} \sigma_{++} &= -\frac{d}{dt} \sigma_{--} = \frac{1}{T_p} \{ a_1^2 b_1^2 + a_2^2 b_2^2 + a_1 a_2 b_1 b_2 \left(\frac{\Gamma}{\Gamma+i\Omega_0} + \frac{\Gamma}{\Gamma-i\Omega_0} \right) \} \sigma_{--} \\ (8-b) \left\{ \begin{aligned} \frac{d}{dt} \sigma_{-+} &= \left(\frac{d}{dt} \sigma_{+-} \right)^* = \left\{ \frac{1}{T_p} \left[-1 + a_1^2 \frac{\Gamma}{\Gamma-i(\Omega_1-\omega_f)} + a_2^2 \frac{\Gamma}{\Gamma-i(\Omega_2-\omega_f)} \right] + \right. \\ &\quad \left. + i\omega_f \right\} \sigma_{-+} \end{aligned} \right. \end{aligned} \right.$$

$\omega_f = g_I \mu_B H_0$ est la fréquence de Larmor nucléaire de l'état fondamental. Dans toute la suite, nous négligerons ω_f devant Ω_1 et Ω_2 . Le seul cas où cette approximation n'est plus valable est celui où deux ou plusieurs sous-niveaux se croisent dans l'état excité. Ce cas a été analysé en détail dans JPl.

Nous discutons maintenant les formules (8).

C/ EVOLUTION DES POPULATIONS

Dans la formule (8-a), quatre termes apparaissent au second membre. Les deux premiers ($a_1^2 b_1^2 + a_2^2 b_2^2$) sont les termes habituels du pompage optique. Ils traduisent le fait qu'un photon σ^+ peut faire passer l'atome de $|\mu\rangle = |-1/2\rangle$ à $|F, m_F\rangle = |3/2, +1/2\rangle$ ou $|1/2, +1/2\rangle$, et que de là, l'atome peut retomber dans $|\mu\rangle = |+1/2\rangle$ en émettant un photon π .

Les deux derniers termes, au contraire, sont nouveaux. Ils traduisent le fait qu'un photon σ^+ peut faire passer l'atome du sous-niveau $|\mu\rangle = |-1/2\rangle$ de l'état fondamental, vers une "superposition cohérente" des deux sous-niveaux hyperfins $|F, m_F\rangle = |3/2, +1/2\rangle$ et $|1/2, +1/2\rangle$. L'atome peut alors retomber vers le sous-niveau

.../...

$|\mu\rangle = | +1/2 \rangle$ en émettant un photon π . En d'autres termes, une lumière de "polarisation incohérente" σ^+ peut induire une "cohérence hyperfine" $\sigma_{3/2,+1/2;1/2,+1/2}$, laquelle est affectée du facteur

$$\frac{\Gamma}{\Gamma+i\Omega_0} \text{ (ainsi que le terme imaginaire conjugué } \frac{\Gamma}{\Gamma-i\Omega_0} \sigma_{1/2,+1/2;3/2,+1/2} \text{).}$$

Nous avons indiqué brièvement ci-dessus l'origine du facteur $\frac{\Gamma}{\Gamma+i\Omega_0}$. Il est clair que dans les études précédentes, lorsqu'on supposait $\Omega_0 \gg \Gamma$, tous ces termes étaient nuls.

Par ailleurs, un autre fait nouveau apparaît ici; a_1, a_2, b_1 et b_2 ne sont plus des coefficients de CLEBSCH-GORDAN, mais dépendent de la valeur du champ magnétique H_0 . Il y aura donc lieu d'étudier la variation de $\frac{d}{dt} \sigma_{++}$ avec H_0 .

Nous allons tout d'abord analyser rapidement l'incidence de ces deux faits, directement sur la formule (8-a), puis nous expliciterons a_1, a_2, b_1 et b_2 à l'aide des formules de l'appendice 1 afin de rendre possible une étude complète de cette formule.

1°) Influence des termes de cohérence hyperfine dans l'état excité

a) Influence de ces termes sur l'efficacité du processus de pompage optique :

Nous soulignons dans l'appendice 1 que $a_1 b_1 + a_2 b_2 = 0$, quelle que soit la valeur du champ H_0 . Ceci montre que

. lorsque $\Omega_0 \gg \Gamma$, $\frac{d}{dt} \sigma_{++} = \frac{1}{T_p} (a_1^2 b_1^2 + a_2^2 b_2^2) \sigma_{--}$, c'est l'expression habituelle

. lorsque $\Omega_0 \ll \Gamma$, $\frac{d}{dt} \sigma_{++} = \frac{1}{T_p} (a_1 b_1 + a_2 b_2)^2 \sigma_{--} = 0$: l'orientation

nucléaire par pompage optique n'est plus possible lorsque la structure hyperfine est très inférieure à la largeur naturelle du niveau excité.

De façon générale, la présence des termes de cohérence hyperfine dans l'état excité diminue l'efficacité du processus de pompage optique dans ce cas.

.../...

b) Influence de ces termes sur la polarisation de la lumière de résonance optique :

Comme nous l'avons déjà signalé, la formule donnant l'intensité de la lumière π réémise à la suite d'une excitation en σ^+ (formule (18)) est la même que la formule (8-a) donnant l'efficacité de l'orientation nucléaire.

Lorsque $\Omega_0 \ll \Gamma$, la lumière de résonance optique a la même polarisation (σ^+) que la lumière absorbée ($I_\pi = 0$) : dans ce cas, le taux de polarisation de la lumière de résonance optique réémise est insensible au spin nucléaire et est le même que pour un isotope pair. Le fait est lié, ici encore, à la survivance des "cohérences hyperfines" (introduites dans l'état excité par l'excitation optique), lors de l'évolution propre de cet état sous l'influence du hamiltonien hyperfin. Si au contraire, les cohérences s'annulent au cours de la durée de vie ($\Omega_0 \gg \Gamma$), il y a dépolarisation.

Cette situation est tout à fait analogue à celle qui se rencontre à un croisement de niveaux (¹⁷) et en champ nul (effet Hanle (¹⁸)) : en ces points, des cohérences (la cohérence hertzienne pour l'effet Hanle) n'évoluent pas au cours du temps, et survivent pendant la durée de vie du niveau : la polarisation de la lumière réémise est identique à celle de la lumière absorbée. Il y a dépolarisation, au contraire, dès qu'on s'écarte de ces points et que la distance entre les niveaux devient plus grande que leur largeur naturelle; les cohérences se moyennent alors à zéro dans le temps τ .

Notons à ce stade une différence essentielle entre l'effet étudié ici et l'effet Hanle (ou les croisements de niveaux) : la cohérence hyperfine peut concerner deux niveaux de même m_F , donc peut être induite par une excitation en lumière de "polarisation incohérente" (π , σ^+ ou σ^- pures). Au contraire, la cohérence hertzienne ne peut concerner que des sous-niveaux de m_F différents, donc nécessite une illumination en "polarisation cohérente".

.../...

2°) Influence du champ magnétique

Ce dernier agit à la fois sur les valeurs de l'écart énergétique Ω_0 et sur celles des probabilités de transition a_1, a_2, b_1 et b_2 .

a) Champ fort : Ω_0 est très grand et les termes liés à la cohérence hyperfine sont négligeables. L'équation (8-a) ne contient plus que les termes ordinaires ($a_1^2 b_1^2 + a_2^2 b_2^2$). On pourrait croire alors que l'efficacité du cycle de pompage, pour produire l'orientation nucléaire, sera très grande dans ce cas. Mais, en réalité, en champ fort, du fait de la règle de sélection $\Delta m_I = 0$, on trouve que $a_2 = b_1 = 0$, si bien que cette efficacité est nulle. Ceci n'est pas étonnant : \vec{I} et \vec{J} sont totalement découplés par H_0 et l'orientation de \vec{J} ne peut se transférer à \vec{I} . La propriété précédente est vraie dès que $g_J \mu_B H_0 \gg a$, quelle que soit la valeur du rapport a/Γ (c'est-à-dire que la structure hyperfine soit grande ou petite par rapport à la largeur naturelle Γ).

b) Champ faible : Jusqu'au delà du point d'anticroisement (fig. 1), Ω_0 reste de l'ordre de a . Si donc, dans ce domaine de champ magnétique, la structure hyperfine est très inférieure à la largeur naturelle ($a \ll \Gamma$), l'efficacité du pompage optique pour produire l'orientation nucléaire est nulle, en vertu des conclusions du paragraphe 1°). Si l'on se souvient qu'il en est toujours de même en champ fort, on voit que cette efficacité est toujours très faible, quel que soit le champ, si $a \ll \Gamma$ (cas de ^{67}Zn pompé par la raie 2138 Å).

REMARQUE : Nous n'avons pas envisagé jusqu'ici le cas où un autre niveau de structure fine est voisin du niveau étudié. S'il en est ainsi, cependant, il peut se faire qu'en champ fort, des niveaux de même valeur de m total appartenant aux deux niveaux de structure fine précédents se "coupent". Il se produit en réalité dans ce cas un phénomène d'anticroisement pour cette valeur très forte du champ. (C'est d'ailleurs dans ce cas que les

.../...

signaux d'anticroisement ont été découverts (14)). Il est facile de voir qu'en ce point, il se produit les mêmes phénomènes que ceux étudiés ci-dessus, aussi bien en ce qui concerne la polarisation de la lumière de fluorescence, qu'en ce qui concerne la possibilité éventuelle d'une orientation nucléaire par pompage optique (retournement du spin nucléaire par couplage hyperfin).

3°) La formule générale

Si l'on explicite a_1, b_1, a_2, b_2 et Ω_0 en utilisant les valeurs données dans l'appendice 1, on trouve la formule

$$(9) \quad \frac{d}{dt} \sigma_{++} = \frac{1}{T_p} \cdot \frac{a^2}{2a^2 + \delta^2 + \Gamma^2} \sigma_{--} = \frac{1}{T_p} p^+ \sigma_{--}$$

avec $\delta = g_J \mu_B H_0 - \frac{a}{2}$ et $\Omega_0^2 = 2a^2 + \delta^2$

L'expression de T_p est la même que celle donnée par COHEN-TANNOUJJI (réf. 7 page 19). Cette formule fait intervenir la même quantité p^+ que nous avons déjà trouvée dans la formule (5) et que nous discutons maintenant.

a) Variations de p^+ avec H_0 : p^+ présente une forme de raie Lorentzienne en δ (comme une courbe de résonance pour un système à 2 niveaux).

Le maximum est obtenu pour $\delta = 0$, soit $g_J \mu_B H_0 = a/2$; largeur à mi-hauteur :

$$\Delta H = \frac{2}{g_J \mu_B} \sqrt{2a^2 + \Gamma^2}. \text{ On trouve dans cette largeur la contribution de}$$

la largeur naturelle Γ des niveaux et une contribution $a\sqrt{2}$ due à la perturbation hyperfine. On a tracé cette courbe dans l'hypothèse où

$a > 0$, sur la figure 6 (courbe p^+). Si l'on effectue un pompage en σ^- , c'est-à-dire si l'on accumule les atomes dans le sous-niveau

$|\mu\rangle = |-1/2\rangle$, on peut montrer que l'équation d'évolution de σ_{--} est :

$$(10) \quad \frac{d}{dt} \sigma_{--} = \frac{1}{T_p} \frac{a^2}{2a^2 + \delta'^2 + \Gamma^2} \sigma_{++} = \frac{1}{T_p} p^- \sigma_{++}$$

.../...

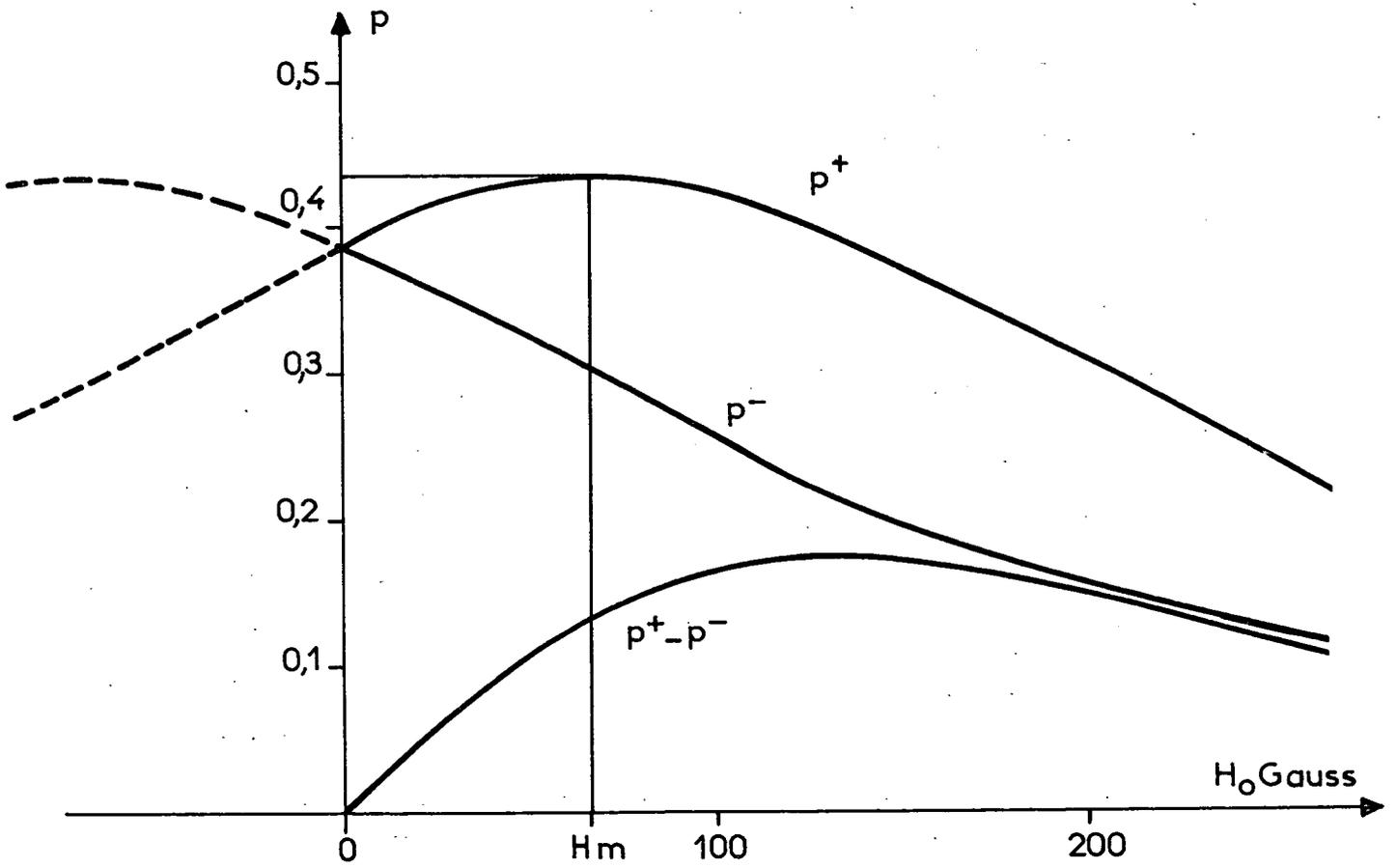


Figure 6

avec $\delta' = -g_J \mu_B H_0 - a/2$ $H_0 > 0$

Toujours dans l'hypothèse où $a > 0$, la courbe représentant $p^- (H_0)$ (fig. 6) ne présente pas de maximum. On peut d'ailleurs considérer ces deux courbes comme ayant un prolongement pour les valeurs négatives de H_0 , et dire que p^- présente un maximum pour $g_J \mu_B H_0 = -\frac{a}{2}$. Ce résultat est prévisible : d'après la figure 1, on voit que les deux sous-niveaux $m_F = -1/2$ intervenant dans le cycle de pompage optique en σ^- se rapprochent au maximum précisément pour cette valeur négative de H_0 .

Le fait que le maximum ait lieu, pour p^+ (fig. 6), résulte de l'hypothèse que la constante de structure hyperfine a est positive. Il résulte des expressions de δ et de δ' que si a était négatif, p^- présenterait un maximum et p^+ n'en présenterait pas. On voit donc que l'étude expérimentale de l'efficacité du pompage optique en fonction du champ H_0 permet de déterminer le signe de a . On voit enfin que p^+ et p^- ne sont égaux qu'en champ nul et en champ très fort (où ils sont tous deux nuls). Pour toute autre valeur du champ, on peut donc obtenir une orientation nucléaire par pompage optique sans utiliser aucun polariseur, c'est-à-dire en éclairant par un mélange incohérent de lumière de polarisations σ^+ et σ^- . L'efficacité d'un tel processus doit suivre avec H_0 la courbe repérée $p^+ - p^-$ sur la figure 6, obtenue par différence entre p^+ et p^- . Nous verrons qu'une telle orientation a été obtenue expérimentalement : l'efficacité de ce pompage passe par un maximum au-delà du point d'anticroisement. Tous les phénomènes précédents ne dépendent que du rapport $g_J \mu_B H_0 / a$. Ils sont observables quelle que soit la largeur naturelle du niveau. Voyons maintenant l'influence de ce paramètre.

.../...

b) Influence du paramètre a/Γ : Si l'on porte en fonction de a/Γ l'ordonnée du maximum de la courbe $p^+(H_0)$, on obtient la courbe de la figure 7 : $p_{\max}^+(H_0) = \frac{a^2/\Gamma^2}{1+(2a^2/\Gamma^2)}$. Le cas du cadmium pompé par

la raie 2288 Å, $5^1S_0 - 5^1P_1$, est représenté sur cette figure. On voit qu'il est assez favorable; d'excellents taux d'orientation nucléaire ont pu être obtenus sur ^{111}Cd et ^{113}Cd en utilisant cette raie.

La situation du niveau 4^1P_1 du zinc est inconnue, mais il est certain qu'elle se trouve très près de l'origine. On conçoit dans ces conditions que l'orientation nucléaire de ^{67}Zn par la raie 2138 Å, $4^1S_0 - 4^1P_1$ soit extrêmement difficile. Elle n'a pas pu être réalisée en pratique.

La situation du niveau 6^1P_1 du mercure est, par contre, loin vers la droite ($a/\Gamma \simeq 10$ pour ^{201}Hg). Cette situation est favorable et on a pu facilement obtenir l'alignement nucléaire de ^{201}Hg par la raie 1850 Å, $6^1S_0 - 6^1P_1$. Il en est de même pour le niveau 6^3P_1 , et la raie 2537 Å, $6^1S_0 - 6^3P_1$, a été largement utilisée pour orienter nucléairement ^{199}Hg et ^{201}Hg . Comme nous le verrons par la suite, nous avons obtenu sans difficulté des courbes analogues à celles de la figure 6 dans le cas du cadmium. Par contre, l'observation expérimentale de la courbe de la figure 7 est difficile : il faudrait en effet pouvoir reproduire des conditions identiques pour deux corps aussi différents que le mercure et le cadmium, et mesurer en valeur absolue l'intensité lumineuse qui pénètre dans une cellule de résonance dans les deux cas.

.../...

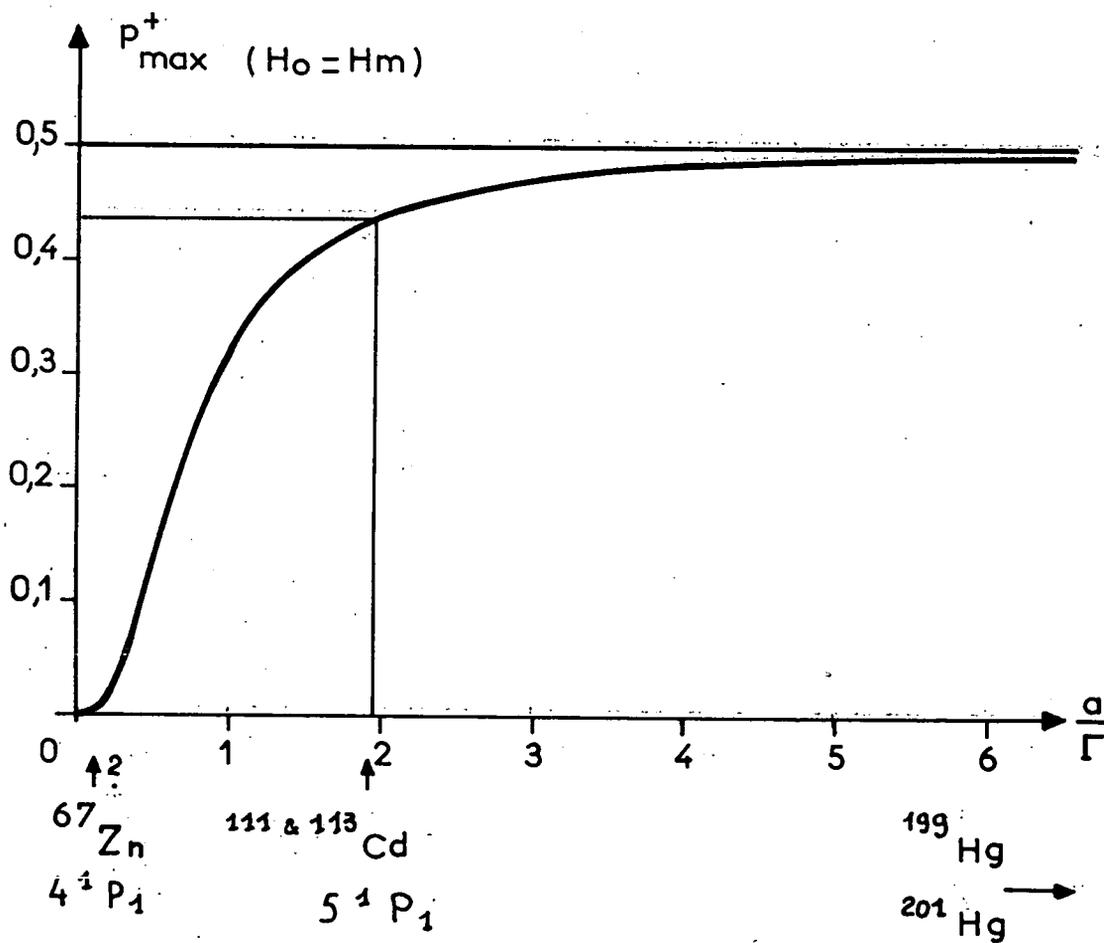


Figure 7

D/ EVOLUTION DES COHERENCES

1°) Equations du problème

Quand on veut écrire la formule complète d'évolution de la cohérence hertzienne σ_{-+} de l'état fondamental, il faut tenir compte :

- . de l'absorption de lumière σ^+
- . de la retombée des atomes dans l'état fondamental par émission spontanée
- . de l'évolution propre de l'état fondamental sous l'effet du champ magnétique extérieur H_0
- . de la relaxation thermique.

On obtient alors la formule

$$(11) \quad \frac{d}{dt} \sigma_{-+} = -\frac{1}{T_p} \sigma_{-+} + \frac{1}{T_p} \left[a_1^2 \frac{\Gamma}{\Gamma - i\Omega_1} + a_2^2 \frac{\Gamma}{\Gamma - i\Omega_2} \right] \sigma_{-+} + i\omega_f \sigma_{-+} - \frac{1}{T_2} \sigma_{-+}$$

$2\pi\omega_f$ est la fréquence de Larmor nucléaire et T_2 le temps de relaxation transversal de la vapeur. a_1 et a_2 ont été définis plus haut (fig. 5).

Cette formule s'écrit encore

$$(12) \quad \frac{d}{dt} \sigma_{-+} = -\left\{ \frac{1}{T_p} \left[1 - a_1^2 \frac{\Gamma^2}{\Gamma^2 + \Omega_1^2} - a_2^2 \frac{\Gamma^2}{\Gamma^2 + \Omega_2^2} \right] + \frac{1}{T_2} \right\} \sigma_{-+} \\ + i \left\{ \frac{1}{T_p} \left[a_1^2 \frac{\Gamma\Omega_1}{\Gamma^2 + \Omega_1^2} + a_2^2 \frac{\Gamma\Omega_2}{\Gamma^2 + \Omega_2^2} \right] + \omega_f \right\} \sigma_{-+} = \\ = \left[-\frac{1}{T_2} + i(\omega_f + \delta\omega_f) \right] \sigma_{-+}$$

.../...

• $\frac{1}{\tau_2} = \frac{1}{\tau_p} + \frac{1}{T_2}$ dans lequel τ_p est le temps de relaxation optique

transversal. τ_p est plus long que T_p du fait du terme $\delta \left(\frac{1}{T_p} \right) =$

$$= \frac{1}{T_p} \left[a_1^2 \frac{\Gamma^2}{\Gamma^2 + \Omega_1^2} + a_2^2 \frac{\Gamma^2}{\Gamma^2 + \Omega_2^2} \right]$$

• $\delta \omega_f = \frac{1}{T_p} \left[a_1^2 \frac{\Gamma \Omega_1}{\Gamma^2 + \Omega_1^2} + a_2^2 \frac{\Gamma \Omega_2}{\Gamma^2 + \Omega_2^2} \right]$ est une correction à apporter à

la vitesse de précession libre des spins nucléaires dans l'état fondamental. Ce déplacement de la fréquence de résonance est d'origine optique.

$\delta \left(\frac{1}{T_p} \right)$ et $\delta \omega_f$ contiennent chacun deux termes : les termes

en Ω_1 sont liés à la circulation de "cohérence Zeeman" et font intervenir le facteur $\frac{\Gamma}{\Gamma - i\Omega_1}$. Les effets de cette circulation de cohérence ont été

étudiés très en détail par COHEN-TANNOUDJI. Les termes en Ω_2 issus du facteur $\frac{\Gamma}{\Gamma - i\Omega_2}$ sont dus à la présence dans l'état excité d'une "cohérence hyper-

fine" entre les sous-niveaux $|F, m_F\rangle = |3/2, +3/2\rangle$ et $|1/2, +1/2\rangle$. Ces termes sont nouveaux. Il est clair qu'ils sont nuls lorsque $a \gg \Gamma$ (car Ω_2 est de l'ordre de a).

Il n'en est plus de même lorsque $a \lesssim \Gamma$. Les facteurs $\frac{\Gamma}{\Gamma - i\Omega_1}$ et $\frac{\Gamma}{\Gamma - i\Omega_2}$ ne tendent plus vers zéro dans la région des champs intermédiaires : de ce fait, des effets nouveaux apparaissent dans le phénomène d'élargissement optique et dans les déplacements lumineux de la fréquence de résonance. Ils ont une double origine : d'une part, et c'est là le point le plus important, le terme dû à la cohérence hyperfine apparaît dans les formules (c'est le terme en $\frac{\Gamma}{\Gamma - i\Omega_2}$ de la formule (11)); d'autre part, a_1 et a_2 varient avec le champ magnétique H_0 .

.../...

2°) Etude en champ faible

a) Etude de la largeur des raies : La contribution optique à la largeur des raies de résonance magnétique dans l'état fondamental est donnée par la formule

$$(13) \quad \frac{1}{\tau_p} = \frac{1}{T_p} \left(1 - a_1^2 \frac{\Gamma^2}{\Gamma^2 + \Omega_1^2} - a_2^2 \frac{\Gamma^2}{\Gamma^2 + \Omega_2^2} \right)$$

Cette largeur est inférieure à celle donnée par COHEN-TANNOUJJI, à cause du terme $a_2^2 \frac{\Gamma^2}{\Gamma^2 + \Omega_2^2}$. Ce terme traduit la

conservation de "cohérence hyperfine" dans l'état excité entre les deux sous-niveaux $|F, m_F\rangle = |3/2, +3/2\rangle$ et $|1/2, +1/2\rangle$.

Nous ferons ici simplement la remarque suivante : si $a \ll \Gamma$, Ω_1 et Ω_2 seront tous deux, en champ faible, très inférieurs à Γ . La formule (12) se réduira alors à $\frac{1}{\tau_p} = \frac{1}{T_p} (1 - a_1^2 - a_2^2)$.

Dans l'appendice 1, on montre que $a_1^2 + a_2^2 = 1$ quel que soit H_0 . Lorsque $a \ll \Gamma$, $1/\tau_p$ est donc nul. Il n'y a pas d'élargissement optique de la résonance magnétique dans l'état fondamental. Ceci résulte dans le cas présent (H_0 faible) de la confusion de tous les niveaux, donc de la parfaite conservation de toutes les cohérences. Nous verrons plus loin que cette propriété reste vraie en champ quelconque et qu'elle résulte essentiellement du fait que lorsque $a \ll \Gamma$, le cycle de résonance optique n'affecte pas du tout le spin nucléaire de l'atome.

b) Etude de la fréquence propre de précession :

Elle est donnée par la formule

$$(14) \quad \omega_f + \delta\omega_f = \omega_f + \frac{1}{T_p} \left[a_1^2 \frac{\Gamma\Omega_1}{\Gamma^2 + \Omega_1^2} + a_2^2 \frac{\Gamma\Omega_2}{\Gamma^2 + \Omega_2^2} \right]$$

.../...

Ici encore, lorsque $a \ll \Gamma$, en champ faible, $\delta\omega_F = 0$ car Ω_1 et $\Omega_2 \ll \Gamma$: au fait qu'il n'y a pas d'élargissement optique correspond celui qu'il n'y a pas de déplacement optique de la résonance magnétique dû aux transitions réelles. Ce résultat s'étend aussi, comme nous le verrons par la suite, à des valeurs quelconques de H_0 .

Lorsque $a \sim \Gamma$, on trouve par contre, en plus du terme en Ω_1 étudié par COHEN-TANNOUDJI, un terme en Ω_2 , contribution de la survivance de la "cohérence hyperfine" dans l'état excité, au déplacement de la fréquence de résonance de l'état fondamental. La présence de ce terme entraîne pour $\delta\omega_F$ un comportement très différent de celui observé par COHEN-TANNOUDJI.

Tout d'abord, en champ nul, $\Omega_1 = 0$, le terme de COHEN-TANNOUDJI, lié à la survivance de la cohérence hertzienne, s'annule. Il n'en est pas de même par contre du terme en Ω_2 qui tend vers

$$(15) \quad \delta\omega_F^0 = \frac{1}{T_p} \cdot \frac{a\Gamma}{\Gamma^2 + \frac{9}{4} a^2} \quad (\Omega_2 \rightarrow \frac{3a}{2} \text{ et } a_2^2 \rightarrow \frac{2}{3}).$$

Contrairement aux déplacements de fréquence observés par COHEN-TANNOUDJI, le déplacement lié à la conservation de cohérence hyperfine ne s'annule pas en champ nul.

Par ailleurs, que peut-on dire des signes de ces divers déplacements ? Les deux derniers termes de l'expression (14) ont respectivement les signes de Ω_1 et de Ω_2 . Ceux-ci sont tous deux positifs si a est positif. Dans le cas des isotopes ^{111}Cd et ^{113}Cd , qui ont tous les deux des moments magnétiques nucléaires négatifs, ω_F est positif : les deux termes qui constituent $\delta\omega_F$ contribuent donc à augmenter, dans le cas actuel (excitation en σ^+), la fréquence propre de précession nucléaire. Si au contraire l'excitation optique se fait avec une polarisation σ^- , il faut remplacer Ω_1 par $\Omega'_1 = \omega_{3/2, -1/2} - \omega_{3/2, -3/2}$ et Ω_2 par $\Omega'_2 = \omega_{1/2, -1/2} - \omega_{3/2, -3/2}$. Ω'_1 est encore positif ($a > 0$) : le dépla-

.../...

vement optique lié à la cohérence hertzienne ne change pas de signe (il augmente dans les deux cas la fréquence de précession nucléaire). Par contre, Ω_2 est alors négatif comme le montrent les figures 1 et 5 : le changement de fréquence lié à la survivance de la cohérence hyperfine au cours de la durée de vie de l'état excité change de signe lorsque l'on passe de l'excitation σ^+ à l'excitation σ^- .

Cette dernière remarque permet de séparer très facilement les effets dus à la cohérence hertzienne étudiés par COHEN-TANNOUDJI, et les effets dus à la cohérence hyperfine auxquels on s'intéresse ici.

Lorsqu'on passe d'une excitation en σ^+ à une excitation en σ^- , on observe un brusque changement de la fréquence de résonance dû uniquement à ce second effet, lequel est par ailleurs seul présent pour des valeurs suffisamment faibles de H_0 (c'est-à-dire lorsque les sous-niveaux Zeeman de l'état excité se confondent à leur largeur naturelle près, à l'intérieur de chaque sous-niveau hyperfin).

Le déplacement en Ω_1 ne peut être mis en évidence qu'en changeant la valeur de T_p , c'est-à-dire l'intensité lumineuse pompante. Il a cependant été étudié très en détail par COHEN-TANNOUDJI sur le mercure, dans le cas où $a \gg \Gamma$, c'est-à-dire lorsque le déplacement en Ω_2 est nul.

On peut faire à ce stade deux remarques sur lesquelles nous reviendrons par la suite :

1°) le signe du déplacement optique de la fréquence de résonance magnétique de l'état fondamental, lié à la conservation de la cohérence hyperfine dans l'état excité, permet de déterminer sans ambiguïté le signe de la constante de structure hyperfine a du niveau excité : si le moment magnétique nucléaire est négatif (cas de ^{111}Cd et ^{113}Cd) et si la fréquence de résonance de l'état fondamental diminue quand on passe

.../...

de l'excitation σ^+ à l'excitation σ^- , on peut affirmer que a est positif (c'est bien ce qui se produit pour ^{111}Cd et ^{113}Cd).

2°) A la limite où $T_2 \gg T_p$, la largeur de la résonance de l'état fondamental est d'origine purement optique. En champ faible, elle vaut, d'après la formule (13) ($\Omega_2^0 = \frac{3a}{2}$) :

$$\frac{1}{\tau_p^0} = \frac{1}{T_p} \left(1 - a_1^2 - a_2^2 \frac{\Gamma^2}{\Gamma^2 + (\frac{3a}{2})^2} \right) = \frac{1}{T_p} \cdot \frac{3}{2} \frac{a^2}{\Gamma^2 + (\frac{3a}{2})^2} . \text{ Par ailleurs,}$$

toujours en champ faible, $\delta\omega_f^0 = \frac{1}{T_p} \frac{a\Gamma}{\Gamma^2 + (\frac{3a}{2})^2}$. On a donc

$\delta\omega_f^0 \times \tau_p^0 = \frac{2}{3} \frac{\Gamma}{a}$: le rapport du déplacement optique à la largeur optique de la raie est d'autant plus grand que a est petit devant Γ . Nous reviendrons sur ce point par la suite.

3°) Elargissement et déplacement en champ quelconque

Si l'on explicite les formules (13) et (14) dans ce cas, il convient d'une part de remplacer Ω_1 et Ω_2 par leurs valeurs en champ quelconque (fig. 1), d'autre part d'explicitier a_1 et a_2 dont les valeurs sont données dans l'appendice 1. On trouve alors, tous calculs faits :

$$(16-a) \quad \frac{1}{\tau_p} = \frac{1}{T_p} \cdot \frac{\frac{3a^2}{2} \Gamma^2 + a^2 \omega_z^2}{\Gamma^4 + \Gamma^2 \left(\frac{9a^2}{4} + a\omega_z + \omega_z^2 \right) + a^2 \omega_z^2}$$

$$(16-b) \quad \delta\omega_f = \frac{1}{T_p} \cdot a\Gamma \frac{\Gamma^2 + \omega_z \left(\frac{a}{2} + \omega_z \right)}{\Gamma^4 + \Gamma^2 \left(\frac{9a^2}{4} + a\omega_z + \omega_z^2 \right) + a^2 \omega_z^2}$$

Dans ces formules, $\omega_z = g_J \mu_B H_0$. Elles ont été calculées pour une illumination en σ^+ . Pour une illumination en σ^- , il faudrait changer ω_z en $-\omega_z$ et ajouter un signe moins devant $\delta\omega_f$ (ou plus simplement, changer a en $-a$). Ces formules n'ayant pas donné lieu à une vérification expérimentales détaillée, nous ne nous y arrêtons pas. Cependant, nous pouvons

.../...

faire les remarques suivantes :

Nous avons vu en étudiant l'efficacité du processus de pompage optique qu'en champ fort, p^+ et p^- tendent vers zéro comme $\frac{a^2}{\omega_z^2}$ (cf formule (9)). Le pompage est donc alors sans effet sur l'aimantation nucléaire longitudinale. Qu'en est-il de l'aimantation nucléaire transversale ?

Appliquées au cas où $\omega_z \gg a$, les formules (16) donnent

$$(17) \quad \left\{ \begin{array}{l} \delta\omega_f^\infty = \frac{1}{T_p} \frac{a\Gamma}{a^2 + \Gamma^2} \\ \frac{1}{\tau_p^\infty} = \frac{1}{T_p} \frac{a^2}{a^2 + \Gamma^2} \end{array} \right.$$

Il est d'ailleurs facile de retrouver ces résultats à partir de la formule générale (12), pour $\omega_z \gg a$ ($a_1 = 1$ et $a_2 = 0$ comme nous l'avons déjà signalé, par ailleurs $\Omega_1 = a$ et $\Omega_2 \rightarrow \infty$ comme le montre la figure 1).

Ainsi, contrairement à la composante longitudinale, la composante transversale du magnétisme nucléaire reste affectée par le cycle de pompage lorsque le découplage entre \vec{I} et \vec{J} est total. (ω_z^2 figure dans le dénominateur de p^+ et de p^- (formules (9) et (10)) mais non dans ceux de $\delta\omega_f^\infty$ et $\frac{1}{\tau_p^\infty}$ (formule 17)).

Nous allons maintenant analyser l'influence du rapport a/Γ sur les expressions (17).

(a) $a \gg \Gamma$. Dans ce cas, $\delta\omega_f^\infty \rightarrow 0$ et $\frac{1}{\tau_p^\infty} \rightarrow \frac{1}{T_p}$.

Le cycle de pompage optique dans ce cas produit une relaxation transversale totale, totale signifiant qu'après l'absorption

.../...

d'un seul photon, l'atome a totalement perdu la mémoire de son orientation transversale antérieure (en effet, $\tau_p^\infty = T_p$). Par ailleurs, $\delta\omega_f^\infty = 0$. Il n'y a aucun déplacement de fréquence de la précession de Larmor nucléaire. Ce fait est lié au précédent.

Notons que dans ce cas, ainsi que dans les deux cas suivants, l'aimantation longitudinale est au contraire inaffectée par le cycle de pompage optique : un spin nucléaire dans l'état $| +1/2 \rangle$ ou $| -1/2 \rangle$ de l'état fondamental reste dans cet état après avoir subi le cycle de pompage.

(b) a $\sim \Gamma$. $\delta\omega_f^\infty$ et $\frac{1}{\tau_p^\infty}$ sont alors donnés par les formules (17).

On peut dire, comme $\tau_p^\infty > T_p$, que le pompage optique ne provoque qu'une relaxation partielle de l'aimantation transversale : il faut en effet plus d'un cycle de pompage pour qu'un spin perde la mémoire de son aimantation transversale initiale. $\delta\omega_f^\infty$ étant différent de zéro, il y a d'autre part un déplacement d'origine optique de la vitesse apparente de précession de Larmor.

(c) a $\ll \Gamma$. Dans ce cas, $\delta\omega_f^\infty = 0$ et $\frac{1}{\tau_p^\infty} = 0$.

On peut dire alors que le spin nucléaire est complètement inaffecté par la résonance optique : il n'y a pas de relaxation d'origine optique, ni de déplacement de la vitesse de précession.

Ce dernier cas (a $\ll \Gamma$) est donc le seul qui laisse le spin nucléaire complètement inaffecté, qu'il soit aligné sur H_0 ou perpendiculaire à H_0 . Ce fait n'est d'ailleurs qu'un cas particulier d'une situation indépendante du champ magnétique. Son interprétation physique est simple : aucun couplage hyperfin entre les électrons et le noyau n'a le temps de se produire pendant la durée de vie du niveau excité. Le noyau reste donc complètement indépendant.

.../...

Quant aux deux premiers cas, leur interprétation physique est la suivante : au chapitre I, nous avons vu qu'au couplage hyperfin était associé un champ magnétique interne à l'atome. Au niveau du noyau, ce champ magnétique \vec{h} est celui produit par la couche électronique excitée. Sa composante transversale h_t est responsable des transitions entre les sous-niveaux $| m_T \rangle = | +1/2 \rangle$ et $| -1/2 \rangle$, transitions responsables de l'orientation nucléaire par pompage optique. Nous avons vu également que ces transitions présentaient un caractère "résonnant" lorsque les deux niveaux d'énergie de la figure 2 (qui ne tient pas compte de cette interaction non diagonale) se croisent. Il est donc clair qu'en champ très fort, l'influence de ce champ h_t sur le noyau est négligeable. La composante longitudinale \vec{h}_ℓ de \vec{h} agit par contre sur l'aimantation nucléaire transversale. En effet, elle s'ajoute au champ magnétique externe H_0 et modifie de ce fait la vitesse de précession de Larmor du spin nucléaire. Si le spin nucléaire "voit" pendant le temps τ le champ effectif $H_0 + h_\ell$, il se déphase de l'angle $\gamma h_\ell \tau = \alpha \tau$ par rapport à la position qu'il aurait dans le seul champ H_0 . Le déphasage provoqué par le passage de l'atome dans l'état excité se traduit par les phénomènes de déplacement de fréquence et de relaxation optique exposés ci-dessus.

.../...

CHAPITRE III

LES SIGNAUX OPTIQUES DE LA RESONANCE MAGNETIQUE

A/ LES SIGNAUX D'ABSORPTION

Lorsque l'excitation lumineuse se fait en "raie large", COHEN-TANNOUJJI a montré qu'en champ faible, la quantité de lumière absorbée par unité de temps, L_A , sur un faisceau de direction et de polarisation quelconques, était indépendante de l'orientation nucléaire. Ceci résulte des règles de somme sur les coefficients de CLEBSCH-GORDAN qui rendent la matrice d'absorption

$$A_{\mu\mu'} = \sum_{F, m_F} \langle \mu | \vec{e}_\lambda \cdot \vec{D} | F, m_F \rangle \langle F, m_F | \vec{e}_\lambda \cdot \vec{D} | \mu' \rangle = \delta_{\mu\mu'}$$

égale à la matrice unité.

Ce résultat s'étend facilement à des valeurs quelconques du champ magnétique (appendice 1). Il signifie que la raie émise par la lampe étant très large devant la structure hyperfine, le processus d'absorption peut être considéré comme instantané devant le couplage hyperfin, donc comme indépendant de l'orientation nucléaire.

Il est clair que ce résultat ne s'étend aux champs forts que dans la mesure où ω_z ne devient pas du même ordre de grandeur que la largeur de la raie excitatrice Δ . Cette situation a en fait été délibérément écartée de nos hypothèses.

B/ LES SIGNAUX DE FLUORESCENCE

Ici encore, de nouveaux termes vont apparaître dans l'expression de la lumière de fluorescence L_F . Ils traduiront, lors de la réémission d'un photon de fluorescence, la présence de la cohérence

.../...

qui a survécu à l'évolution propre de l'état excité.

1) Les signaux statiques :

On trouve que, suivant une excitation σ^+ , la lumière réémise avec une polarisation π a pour expression, à un facteur de proportionnalité près :

$$(18) \quad I_{\pi} = \frac{\Gamma}{T_p} \left[a_1^2 b_1^2 + a_2^2 b_2^2 + a_1 b_1 a_2 b_2 \left(\frac{\Gamma}{\Gamma - i\Omega_0} + \frac{\Gamma}{\Gamma + i\Omega_0} \right) \right] \sigma_{--}$$

On reconnaît là l'expression (8-a) : conformément à la remarque déjà faite, à un cycle de pompage optique retournant le spin nucléaire correspond l'absorption d'un photon σ^+ et la réémission d'un photon π .

$$I_{\pi} = \frac{\Gamma}{T_p} p^+ \sigma_{--}$$

avec p^+ donné par l'expression (6).

Il est clair que la lumière réémise avec la polarisation σ sera $I_{\sigma} = \frac{\Gamma}{T_p} \left[(1 - p^+) \sigma_{--} + \sigma_{++} \right]$, expression qui traduit le fait

qu'un atome initialement dans le sous-niveau $|\mu\rangle = |-1/2\rangle$ et ayant absorbé un photon σ^+ réémet soit un photon π (avec la probabilité p^+), soit un photon σ^+ (avec la probabilité $1 - p^+$). Par contre un atome initialement dans le sous-niveau $|\mu\rangle = |+1/2\rangle$ et ayant absorbé un photon σ^+ ne peut (fig. 5) que réémettre un photon σ^+ (donc avec une probabilité égale à 1). Ces formules nous seront très utiles dans la suite de cet exposé.

2) Les signaux modulés :

Ce sont ceux dans l'expression desquels interviennent σ_{-+} et σ_{+-} : lorsque, ayant pompé optiquement les spins nucléaires, on ef-

fectue une expérience de résonance magnétique dans l'état fondamental, on produit une précession forcée du moment magnétique macroscopique de la vapeur; ceci introduit dans ces vapeurs les "cohérences" σ_{+-} et σ_{-+} qui évoluent à la fréquence du champ de radiofréquence. On peut montrer, par exemple, que à résonance (lorsque la fréquence du champ de radiofréquence est égale à la fréquence de précession libre des spins nucléaires), et lorsque le pompage s'effectue en σ^+ , on a (à un facteur près)

$$\sigma_{-+} = -i e^{i\omega t} \qquad \sigma_{+-} = i e^{-i\omega t}$$

Lorsqu'il s'effectue en σ^- , on a de même $\sigma_{-+} = i e^{i\omega t}$ et $\sigma_{+-} = -i e^{-i\omega t}$. Le changement de signe lorsqu'on passe de σ^+ à σ^- est dû au fait que \vec{I} est pompé dans la direction $+Oz$ (en σ^+) ou $-Oz$ (en σ^-) avant de précesser dans le sens direct autour de H_1 . Les composantes de \vec{I} perpendiculaires à Oz seront donc de signes opposés suivant que le pompage s'effectue en σ^+ ou en σ^- . Comme nous le préciserons plus tard, ces composantes de \vec{I} sont des combinaisons linéaires de σ_{-+} et σ_{+-} , ce qui explique le renversement du signe de ces derniers.

Considérons la lumière de fluorescence L_F dont la polarisation est circulaire σ^+ par rapport à la direction de l'axe \vec{Oy} (nous désignons le vecteur polarisation correspondant par \vec{e}_+ / Oy). On peut écrire

$$\vec{e}_+ / Oy = - \frac{1}{\sqrt{2}} \left[i \frac{\vec{e}_- - \vec{e}_+}{\sqrt{2}} + \vec{e}_0 \right] \quad \text{et porter cette valeur}$$

dans l'expression de L_F , donnée dans JPl (équation 6-c). On peut isoler dans L_F la partie modulée $L_{F'}(\omega)$ qui est une combinaison linéaire de σ_{-+} et σ_{+-} . On trouve (à un facteur près), pour la modulation de la fluorescence à la fréquence ω observée à travers un analyseur circulaire σ^+ sur Oy et lorsque le pompage s'effectue en σ^+ (par rapport à H_0) :

.../...

$$(19) \quad L_F^+(\omega) = -i \times \frac{\Gamma}{2\sqrt{2} T_p} \times \left[a_1 b_1 \frac{\sigma_{-+}}{\Gamma - i\Omega_1} + a_2 b_2 \frac{\sigma_{-+}}{\Gamma - i\Omega_2} \right] + c.c.$$

avec $a_1 b_1 + a_2 b_2 = 0$ (appendice 1)

donc

$$L_F^+(\omega) = - \frac{\Gamma}{2\sqrt{2} T_p} \times a_1 b_1 \left[i(\Omega_1 - \Omega_2) \frac{e^{i\omega t}}{(\Gamma^2 - \Omega_1 \Omega_2) - i\Gamma(\Omega_1 + \Omega_2)} \right] + c.c.$$

Soit

$$(20) \quad \begin{cases} L_F^+(\omega) = - \frac{\Gamma}{\sqrt{2} T_p} a_1 b_1 \frac{\Omega_2 - \Omega_1}{\sqrt{(\Gamma^2 - \Omega_1 \Omega_2)^2 + \Gamma^2(\Omega_1 + \Omega_2)^2}} \sin(\omega t + \phi^+) \\ \text{tg } \phi^+ = \frac{\Gamma(\Omega_1 + \Omega_2)}{\Gamma^2 - \Omega_1 \Omega_2} \end{cases}$$

On peut, dans ces expressions, remplacer a_1 , a_2 , Ω_1 et Ω_2 par les valeurs données dans l'appendice 1, et l'on trouve :

$$(21-a) \quad L_F^+(\omega) = - \frac{1}{T_p} \times \frac{a\Gamma}{\sqrt{(\Gamma^4 + \Gamma^2(\omega_z(\omega_z + a) + \frac{9a^2}{4}) + a^2\omega_z^2)(\omega_z(\omega_z + a) + \frac{9a^2}{4})}} \sin(\omega t + \phi^+)$$

$$(21-b) \quad \text{tg } \phi^+ = \frac{\frac{3a}{2} + \omega_z}{\Gamma - \frac{a\omega_z}{\Gamma}}$$

Si l'on envisage un pompage en σ^- , on trouve de même, pour la modulation observée en σ^+ sur \vec{Oy} ,

$$(22-a) \quad L_F^- = - \frac{1}{T_p} \times \frac{a\Gamma}{\sqrt{[\Gamma^4 + \Gamma^2(\omega_z(\omega_z - a) + \frac{9a^2}{4}) + a^2\omega_z^2][\omega_z(\omega_z - a) + \frac{9a^2}{4}]}} \sin(\omega t + \phi^-)$$

$$(22-b) \quad \text{tg } \phi^- = - \frac{\frac{3a}{2} - \omega_z}{\Gamma + \frac{a\omega_z}{\Gamma}}$$

.../...

On constate que $L_F^+(\omega)$ et $L_F^-(\omega)$ sont en général déphasés par rapport au champ de radiofréquence H_1 dont la composante sur Oy (celle du champ tournant qui induit la transition) est $\omega_1 \sin \omega t$. Rappelons que les valeurs trouvées ci-dessus sont calculées "à résonance", c'est-à-dire lorsque le moment magnétique transversal global de la vapeur dans l'état fondamental est en quadrature retard (en σ^+) ou avance (en σ^-) par rapport au champ de radiofréquence. Il est clair, sur la formule (19), que ce déphasage a pour origine les survivances partielles des cohérences "hertziennes" d'une part (terme en Ω_1) et "hyper-fines" d'autre part (terme en Ω_2) pendant la durée de vie de l'état excité. La présence du terme en Ω_2 apparaît ici encore comme un résultat nouveau par rapport à ceux de COHEN-TANNOUDJI. Nous allons voir qu'ici encore son comportement est très différent de celui du terme en Ω_1 : lorsque $a \gg \Gamma$, seul est à considérer le terme en Ω_1 de la formule (19), car Ω_2 est toujours de l'ordre de a (ou même très supérieur en champ fort). On voit alors sur cette formule que

$$(23) \quad \text{tg } \phi^+ = \text{tg } \phi^- = -\frac{\Gamma}{\Omega_2}, \text{ avec } \underline{\phi^+ - \phi^-} = \pi \text{ quel que soit } H_0$$

Les formules (23) et (21-b) peuvent sembler en contradiction lorsqu'on fait tendre Ω_1 vers 0_+ dans la formule (23) ($\text{tg } \phi^+ \rightarrow -\infty$) et a/Γ vers $+\infty$ dans la formule (21-a), en maintenant ω_z , donc Ω_1 , nul ($\text{tg } \phi^+ \rightarrow +\infty$). En fait, ceci s'explique tout simplement par le fait que $\underline{\phi^+}$ tend vers $-\pi/2$ par valeurs supérieures (algébriquement) dans le premier cas et inférieures dans le second.

Il résulte des formules (23) que dans ce cas ($a \gg \Gamma$), $L_F^+(\omega)$ et $L_F^-(\omega)$ restent toujours en opposition de phase (ce fait est lié à la différence de sens de l'orientation nucléaire produite par les pompes σ^+ et σ^-), mais qu'il existe un déphasage variant avec H_0 comme $\text{Arc tg } (-\Gamma/\Omega_1)$, entre $L_F^+(\omega)$ et le champ de radiofréquence

.../...

$\omega_1 \sin \omega t$, donc l'orientation nucléaire dans l'état fondamental. Ce déphasage traduit la plus ou moins grande survivance de la "cohérence hertzienne" dans l'état excité suivant la valeur de Γ/Ω_1 .

Par contre, lorsque $a \sim \Gamma$, on voit déjà qu'en champ nul ($\omega_z = 0$), $\text{tg } \phi^+ = 3a/2\Gamma$ et $\text{tg } \phi^- = -3a/\Gamma$ (formules (21-b) et (22-b) lorsque $\omega_z = 0$) : la différence de phase entre $L_F^+(\omega)$ et $L_F^-(\omega)$ n'est donc plus égale à π mais vaut $2\text{Arctg } 3a/2\Gamma$. En champ quelconque il existera de même toujours une différence de phase différente de π entre $L_F^+(\omega)$ et $L_F^-(\omega)$. Ce comportement est très différent du précédent (lorsqu'on avait $a \gg \Gamma$) car le simple fait de passer d'une excitation σ^+ à une excitation σ^- va faire changer brusquement la phase, à résonance, de la modulation de la lumière de fluorescence, et ceci d'un angle qui va permettre de mesurer la valeur du paramètre a/Γ . Cet angle tend vers π lorsque $a/\Gamma \rightarrow \infty$, et en champ faible (lorsque $\omega_z \ll \Gamma$) vaut $2\text{Arctg } 3a/2\Gamma$. Par ailleurs, on peut de cette manière trouver encore le signe de a : en champ faible, si ω_f est positif (moments magnétiques nucléaires négatifs comme c'est le cas pour ^{111}Cd et ^{113}Cd), et si a est positif, la phase de la modulation de la lumière de fluorescence observée sur Oy à travers un analyseur σ^+/Oy , augmente brusquement d'un angle $2\text{Arctg } 3a/2\Gamma$ lorsqu'on passe d'un pompage (suivant Oz) en σ^+ à un pompage en σ^- . Elle diminuerait de cet angle si a était négatif.

REMARQUE : Ce procédé est d'autant plus intéressant que dans le cas actuel (excitation en raie large), on ne peut pas observer de signal d'absorption modulée. Il est donc difficile de connaître la phase réelle du champ de radiofréquence et on ne peut mesurer facilement que des déphasages qui changent de valeur lorsqu'on passe du pompage en σ^+ au pompage en σ^- . Par ailleurs, ce procédé fournit une mesure du paramètre a/Γ , indépendante de T_p , donc de l'intensité lumineuse pompante. Nous reviendrons en détail sur ce point ultérieurement.

.../...

CHAPITRE IV

ORIENTATION NUCLEAIRE EN CHAMP TRES FAIBLE

A/ INTRODUCTION

Pour terminer, nous abordons maintenant l'étude d'un domaine de champs magnétiques jusqu'ici exclu de nos hypothèses de calcul. Dans les publications antérieures, ainsi que jusqu'à ce point du présent exposé, il a été fait, pour calculer les équations théoriques du cycle de pompage optique, l'hypothèse simplificatrice dite de "l'approximation séculaire". Cette hypothèse suppose réalisée la condition $\omega_f T_p \gg 1$. Ceci signifie que la largeur optique des sous-niveaux de l'état fondamental (on devrait même prendre leur largeur totale) est très inférieure à leur distance énergétique. Il est alors possible, dans les équations d'évolution globales des éléments $\sigma_{\mu\mu'}$, de négliger l'influence de tous les termes en $\sigma_{\mu''\mu'''}$, lorsque $\mu'' - \mu''' \neq \mu - \mu'$ (voir à ce propos la référence (7) page 32).

Cette approximation est possible pour la raison suivante : sous l'effet de H_0 , un élément de matrice $\sigma_{\mu\mu'}$, évolue à la vitesse $(\mu - \mu') \omega_f$. Pendant la "durée de vie" T_p (dans l'état fondamental) d'un atome, la différence de phase entre un élément $\sigma_{\mu\mu'}$, évoluant en $e^{i(\mu - \mu')\omega_f t}$ et un élément $\sigma_{\mu''\mu'''}$, évoluant en $e^{i(\mu'' - \mu''')\omega_f t}$ prendra toutes les valeurs possibles entre 0 et 2π et l'influence du second terme sur le premier sera moyennée à zéro. Ceci n'est plus vrai, soit si $\mu'' - \mu''' = \mu - \mu'$ auquel cas les deux éléments de matrice évoluent à la même fréquence, soit si ω_f devient du même ordre de grandeur ou inférieur à $1/T_p$. Dans ce dernier cas, l'amortissement d'un terme

.../...

$\sigma_{\mu\mu'}$, se produit avant même qu'il n'ait oscillé plusieurs fois. Il n'est alors plus possible de définir sa fréquence avec assez de précision pour dire qu'elle est différente de celle de $\sigma_{\mu''\mu''}$, lorsque $\mu'' - \mu'' \neq \mu - \mu'$.

Cette situation se rencontre pour des valeurs très faibles du champ magnétique, lorsque les sous-niveaux Zeeman de l'état fondamental se recouvrent à leur largeur naturelle près. On peut alors observer le pompage transversal des spins et l'effet Hanle de l'état fondamental.

B/ LE PRINCIPE DU CALCUL

Il est toujours possible, dans une telle situation, de conserver les équations complètes du pompage optique, mais en supprimant dans les équations d'évolution de $\sigma_{\mu\mu'}$, la restriction $\mu'' - \mu'' = \mu - \mu'$ (voir par exemple l'équation (8) de JP1).

Cette manière d'opérer ajoute, en général, un très grand nombre de termes aux équations habituelles et rend le calcul de la solution stationnaire extrêmement laborieux. Il reste cependant faisable, en particulier dans les cas simples, par exemple lorsque $I = 1/2$.

On peut cependant tenir compte avantageusement de la remarque suivante de COHEN-TANNOUJJI : dans le formalisme actuel, la représentation adoptée pour le système atomique est telle que les vecteurs de base de l'atome dans l'état fondamental sont les états propres $|\mu\rangle$ du hamiltonien lié au champ magnétique statique H_0 . En prenant cet axe de quantification, on simplifie au maximum les équations d'évolution sous l'effet du hamiltonien Zeeman, mais on complique par contre celles ayant trait à l'absorption optique. Cette manière de faire est justifiée en champ "fort", où le hamiltonien Zeeman est

.../...

prépondérant. Il n'en est plus de même en champ magnétique très faible où il est préférable de simplifier au maximum l'écriture des effets liés à la résonance optique, quitte à compliquer un peu l'écriture des termes liés au hamiltonien Zeeman.

Dans les deux étapes optiques du cycle de pompage, absorption et émission spontanée, on peut remarquer que la seconde est isotrope : il est légitime de penser que son influence se traduira par des expressions indépendantes du référentiel adopté. Il apparaît de ce fait que seule l'absorption doit guider le choix de l'axe de quantification. Ceci conduit à choisir une représentation telle que la matrice d'absorption $A_{\mu\mu'} = \sum_{F, m_F} \langle \mu | \vec{e}_{\lambda_0} \cdot \vec{D} | F, m_F \rangle \langle F, m_F | \vec{e}_{\lambda_0} \cdot \vec{D} | \mu' \rangle$ soit diagonale. Les termes des équations d'évolution de $\sigma_{\mu\mu'}$, traduisant le pompage optique proprement dit sont alors extrêmement simples. La difficulté est reportée sur le terme d'évolution propre par effet Zeeman.

C/ LES HYPOTHESES DE CALCUL

Pour illustrer ce principe, nous traiterons ici le cas où $I = 1/2$ (^{111}Cd ou ^{113}Cd), que nous avons étudié expérimentalement. Par ailleurs, nous garderons l'hypothèse de l'excitation en "raie large" et la condition $a \sim \Gamma$.

En outre, le champ magnétique étant si faible que $\omega_F T_p \sim 1$, il est certain que l'effet Zeeman de l'état excité n'est absolument pas résolu. Nous supposons donc que dans l'état excité $\omega_{F, m_F} - \omega_{F, m'_F} \ll \Gamma$, et que $\omega_{3/2, m_F} - \omega_{1/2, m'_F} = \frac{3a}{2}$ est indépendant de m et de m' .

Nous avons $\omega_{hf} = \frac{3a}{2}$. Enfin nous faisons l'hypothèse que l'illumination se fait en lumière circulaire par rapport à \vec{Oz} (σ^+ ou σ^- par rapport à Oz), que nous prenons comme axe de quantification.

.../...

Le champ magnétique a une direction quelconque. Nous l'appellerons \vec{H} , réservant les notations H_0 et H_1 pour ses composantes parallèle et perpendiculaire à Oz .

Dans un premier temps, nous négligerons complètement l'effet de ce champ magnétique et nous trouverons les équations d'évolution des éléments $\sigma_{\mu\mu'}$, sous le seul effet du pompage optique.

Dans un second temps, nous introduirons divers champs magnétiques : statiques, alternatifs ou tournants, ce qui nous permettra de mettre divers effets connus et nouveaux en évidence.

D/ LES EQUATIONS DU POMPAGE OPTIQUE

Si l'on néglige tous les autres termes (relaxation thermique, champ magnétique, etc.), les équations se réduisent aux termes "classiques" du pompage optique. Les éléments de matrice de $\vec{e}_\lambda \cdot \vec{D}$ (a, b ... etc. de la figure 5) sont, dans le cas présent, des coefficients de CLEBSCH-GORDAN, et le caractère isotrope de l'émission spontanée permet de limiter les termes d'émission à ceux pour lesquels $\mu - \mu' = m - m'$. On trouve alors

$$(24) \quad \left\{ \begin{array}{l} \frac{d}{dt} \sigma_{--} = - \frac{d}{dt} \sigma_{++} = - \frac{4}{9T_p} \left(1 - \frac{\Gamma^2}{\Gamma^2 + \omega_{hf}^2} \right) \sigma_{--} \\ \frac{d}{dt} \sigma_{-+} = \left(\frac{d}{dt} \sigma_{+-} \right)^* = - \frac{2}{3T_p} \left(1 - \frac{\Gamma}{\Gamma - i\omega_{hf}} \right) \sigma_{-+} \end{array} \right.$$

Dans ces deux équations, les seconds termes des parenthèses de droite (contenant ω_{hf}) ont une valeur appréciable lorsque $\omega_{hf} \sim \Gamma$.

Si $\omega_{hf} \ll \Gamma$, $\frac{d}{dt} \sigma_{++} = \frac{d}{dt} \sigma_{-+} = 0$ ce qui a été fréquemment commenté.

$$\text{Si } \omega_{hf} \gg \Gamma, \quad \frac{d}{dt} \sigma_{++} = - \frac{4}{9T_p} \sigma_{--}, \quad \frac{d}{dt} \sigma_{-+} = - \frac{2}{3T_p} \sigma_{-+}$$

qui sont les expressions "classiques".

.../...

Si l'on pose maintenant

$$(25) \quad \left\{ \begin{array}{l} M_x = \frac{\sigma_{-+} + \sigma_{+-}}{2} \\ M_y = \frac{\sigma_{-+} - \sigma_{+-}}{2i} \\ M_z = \frac{\sigma_{++} - \sigma_{--}}{2} \end{array} \right.$$

(M_x, M_y, M_z sont les composantes de l'aimantation globale de la vapeur)

et si l'on se souvient que $\sigma_{++} + \sigma_{--} = 1$, on trouve

$$(26) \quad \left\{ \begin{array}{l} \frac{d}{dt} M_x = -\frac{2}{3T_p} \frac{\omega_{hf}^2}{\Gamma^2 + \omega_{hf}^2} M_x - \frac{2}{3T_p} \frac{\Gamma \omega_{hf}}{\Gamma^2 + \omega_{hf}^2} M_y \\ \frac{d}{dt} M_y = +\frac{2}{3T_p} \frac{\Gamma \omega_{hf}}{\Gamma^2 + \omega_{hf}^2} M_x - \frac{2}{3T_p} \frac{\omega_{hf}^2}{\Gamma^2 + \omega_{hf}^2} M_y \\ \frac{d}{dt} M_z = -\frac{4}{9T_p} \frac{\omega_{hf}^2}{\Gamma^2 + \omega_{hf}^2} (M_z - \frac{1}{2}) \end{array} \right.$$

Les équations précédentes sont très semblables aux équations de BLOCH.

On trouve dans ces équations des termes de relaxation optique : ce sont ceux qui couplent M_x à M_x et M_y à M_y .

L'équation d'évolution de M_z est typiquement une équation de pompage optique (avec une efficacité dépendant de $\frac{\omega_{hf}}{\Gamma}$).

Enfin des termes couplent M_x à M_y et M_y à M_x . Ces termes ne sont différents de zéro que lorsque $\omega_{hf} \sim \Gamma$. Comme cela apparaîtra plus clairement par la suite, ces termes interviennent de manière analogue à une rotation de Larmor dans les équations de BLOCH. Ce sont ces termes qui sont à l'origine du déplacement de fréquence dû à la circu-

.../...

lation de cohérence hyperfine. Dans les équations (25), ils signifient qu'en l'absence de tout champ magnétique, la composante transversale de \vec{M} précesse autour de Oz : c'est la rotation hyperfine, dans l'état excité, qui est partiellement ramenée dans l'état fondamental par le couplage (optique) entre l'état fondamental et l'état excité, lorsque $\omega_{hf} \sim \Gamma$.

E/ LE SYSTEME D'EQUATIONS COMPLET

Il suffit de reprendre le système précédent en lui ajoutant les termes de relaxation thermique et d'effet Zeeman.

Du fait de la valeur très faible du champ magnétique, nous supposerons la relaxation thermique isotrope, avec le temps de relaxation T.

Il faut maintenant ajouter l'effet du champ magnétique \vec{H} de direction quelconque. Dans les équations d'évolution de $\sigma_{\mu\mu'}$, il est représenté par l'élément de matrice $\{(\gamma\vec{H}\cdot\vec{I}, \sigma)\}_{\mu,\mu'}$, qu'il suffit d'explicitier. Puisque nous avons affaire ici à un spin $I = 1/2$, on a la possibilité de passer des éléments de matrice $\sigma_{\mu\mu'}$ aux composantes M_x, M_y et M_z du moment magnétique macroscopique de la vapeur (formules 25). Cette possibilité simplifie l'interprétation physique des résultats mais n'enlève aucune généralité à la méthode de calcul. Dans le cas où $I > 1/2$, il faut interpréter les résultats directement sur les équations d'évolution de $\sigma_{\mu\mu'}$.

En appelant ω_x, ω_y et ω_z les fréquences de Larmor $\gamma H_x, \gamma H_y$ et γH_z , on obtient en définitive le système suivant :

.../...

$$(27) \left\{ \begin{aligned} \frac{dM_x}{dt} &= - \left[\frac{1}{T} + \frac{2}{3T_p} \frac{\omega_{hf}^2}{\Gamma^2 + \omega_{hf}^2} \right] M_x - \left[\omega_z + \frac{2}{3T_p} \frac{\Gamma \omega_{hf}}{\Gamma^2 + \omega_{hf}^2} \right] M_y + \omega_y M_z \\ \frac{dM_y}{dt} &= \left[\omega_z + \frac{2}{3T_p} \frac{\Gamma \omega_{hf}}{\Gamma^2 + \omega_{hf}^2} \right] M_x - \left[\frac{1}{T} + \frac{2}{3T_p} \frac{\omega_{hf}^2}{\Gamma^2 + \omega_{hf}^2} \right] M_y - \omega_x M_z \\ \frac{d}{dt} M_z &= - \omega_y M_x + \omega_x M_y - \left[\frac{1}{T} + \frac{2}{3T_p} \frac{\omega_{hf}^2}{\Gamma^2 + \omega_{hf}^2} \right] M_z + \frac{2}{9T_p} \frac{\omega_{hf}^2}{\Gamma^2 + \omega_{hf}^2} (M_z + 1) \end{aligned} \right.$$

On peut poser

$$(28) \left\{ \begin{aligned} \frac{1}{\tau_f} = \Gamma_f &= \frac{1}{T} + \frac{2}{3T_p} \frac{\omega_{hf}^2}{\Gamma^2 + \omega_{hf}^2} \\ \Omega_z &= \omega_z + \frac{2}{3T_p} \frac{\Gamma \omega_{hf}}{\Gamma^2 + \omega_{hf}^2} \\ \frac{1}{\tau_p} = \Gamma_p &= \frac{2}{9T_p} \frac{\omega_{hf}^2}{\Gamma^2 + \omega_{hf}^2} \end{aligned} \right.$$

Le système s'écrit finalement sous la forme

$$(29) \left\{ \begin{aligned} \dot{M}_x &= -\Gamma_f M_x - \Omega_z M_y + \omega_y M_z \\ \dot{M}_y &= \Omega_z M_x - \Gamma_f M_y - \omega_x M_z \\ \dot{M}_z &= -\omega_y M_x + \omega_x M_y - \Gamma_p M_z + \Gamma_p (M_z + 1) \end{aligned} \right.$$

Ce système est tout à fait analogue aux équations de BLOCH avec un terme de pompage optique $\Gamma_p (M_z + 1)$. Les formules (28) montrent alors clairement l'élargissement optique $\frac{2}{3T_p} \frac{\omega_{hf}^2}{\Gamma^2 + \omega_{hf}^2}$ qui s'ajoute à $1/T$ et le déplacement de la raie de résonance $\frac{2}{3T_p} \frac{\Gamma \omega_{hf}}{\Gamma^2 + \omega_{hf}^2}$ qui s'ajoute à ω_z .

.../...

Nous allons rapidement passer en revue :

F/ DIVERSES SOLUTIONS POSSIBLES DE CE SYSTEME D'EQUATIONS

1°) Résonance magnétique en champ tournant

On prend, pour cela, $\omega_z = \omega_0$, $\omega_x = \omega_1 \cos \omega t$, $\omega_y = \omega_1 \sin \omega t$ c'est-à-dire que, pompant dans la direction de Oz (fig. 23, page 108) on applique un champ magnétique statique suivant Oz et un champ tournant dans le plan xOy à la vitesse ω .

En passant dans le référentiel tournant, on sait alors résoudre exactement le système (29). C'est la résonance magnétique ordinaire. Notre système et ses solutions sont valables quel que soit le champ magnétique ω_0/γ et la fréquence ω , et en particulier, le fait que les sous-niveaux se recouvrent ou ne se recouvrent pas à leur largeur naturelle près ne change rien à l'aspect des courbes de résonance observées.

On retrouve ici le déplacement lié à la circulation de cohérence hyperfine (notre système cesserait cependant d'être valable si les sous-niveaux Zeeman de l'état excité venaient à être résolus dans le champ ω_0/γ). Nous n'avons pas effectué d'expériences en champ faible relatives à ce cas à cause de la difficulté de produire un champ tournant correct. Ce cas est cependant classique.

2°) Résonance magnétique en champ alternatif

On prend $\omega_z = \omega_0$, $\omega_x = \omega_1 \cos \omega t$, $\omega_y = 0$, c'est-à-dire que l'on crée un champ statique parallèle à Oz et un champ alternatif parallèle à Ox, de fréquence ω . Lorsque ω_1 et $\gamma \ll \omega_0$, on sait résoudre ce système de manière approchée : l'une des deux composantes tournantes du champ alternatif provoque une résonance magnétique centrée lorsque $\Omega_z = \omega$, l'autre composante provoque des effets d'ordres supérieurs

.../...

qui ont été longuement étudiés par WINTER (19) : transitions à plusieurs quanta, effet BLOCH-SIEGERT, etc. Lorsque ω_1 ou $\Gamma_f \sim \omega_0$, c'est-à-dire en champ très faible ou à intensité très forte du champ de radiofréquence, il n'est plus possible de résoudre le système par approximations. SHIRLEY (20) a, dans ce cas, calculé numériquement les probabilités de transitions pour un système à deux niveaux. Afin de connaître en plus grand détail le comportement d'un spin 1/2 et les composantes modulées de son mouvement dans ce cas, nous avons mis au point un programme FORTRAN qui permet de résoudre numériquement le système (27). Ce programme est actuellement en cours d'exploitation.

3°) Résonance magnétique à fréquence nulle et effet Hanle

Dans ce cas, \vec{H} est statique et de direction quelconque.

Il est simple de trouver la solution stationnaire du système (27)

(en faisant $\dot{M}_x = \dot{M}_y = \dot{M}_z = 0$)

$$(30) \left\{ \begin{array}{l} M_x^{(S)} = \Gamma_p \frac{\Omega_z \omega_x + \Gamma_f \omega_y}{(\Gamma_f - \Gamma_p) \Omega_z^2 + \Gamma_f (\omega_x^2 + \omega_y^2) + (\Gamma_f - \Gamma_p) \Gamma_f^2} \\ M_y^{(S)} = \Gamma_p \frac{\Omega_z \omega_y - \Gamma_f \omega_x}{(\Gamma_f - \Gamma_p) \Omega_z^2 + \Gamma_f (\omega_x^2 + \omega_y^2) + (\Gamma_f - \Gamma_p) \Gamma_f^2} \\ M_z^{(S)} = \Gamma_p \frac{\Omega_z^2 + \Gamma_f^2}{(\Gamma_f - \Gamma_p) \Omega_z^2 + \Gamma_f (\omega_x^2 + \omega_y^2) + (\Gamma_f - \Gamma_p) \Gamma_f^2} \end{array} \right.$$

a) Résonance magnétique à fréquence nulle :

L'expérience est la suivante : ayant placé un champ magnétique statique ω_x/γ le long de Ox (fig.23), et pompant les spins dans la direction de Oz, on balaie lentement un champ magnétique ω_z/γ aligné sur Oz. On observe, par exemple dans la direction Oy sur la lumière de

.../...

fluorescence polarisée parallèlement à Oz, un signal analogue à un signal de résonance magnétique, lorsque Ω_z passe par zéro, c'est-à-dire lorsque :

$$\omega_z = - \frac{2}{3\Gamma_p} \frac{\Gamma_{hf} \omega_{hf}}{\Gamma^2 + \omega_{hf}^2} .$$

Ce signal a une largeur qui croît avec ω_x de façon analogue à celle d'une courbe de résonance magnétique lorsqu'on augmente l'intensité du champ de radiofréquence H_1 .

Il s'agit en fait d'une résonance magnétique, telle qu'elle est vue habituellement dans le référentiel tournant.

Les expressions de M_x , M_y et M_z sont analogues aux expressions de $U^{(S)}$, $V^{(S)}$ et $M_z^{(S)}$ écrites par COHEN-TANNOUJJI dans le référentiel tournant (réf. 7 page 63).

$$(31) \quad \left\{ \begin{array}{l} M_x = \Gamma_p \frac{\Omega_z \omega_1}{(\Gamma_f - \Gamma_p) \Omega_z^2 + \Gamma_f \omega_1^2 + (\Gamma_f - \Gamma_p) \Gamma_f^2} \\ M_y = -\Gamma_p \frac{\Gamma_f \omega_1}{(\Gamma_f - \Gamma_p) \Omega_z^2 + \Gamma_f \omega_1^2 + (\Gamma_f - \Gamma_p) \Gamma_f^2} \\ M_z = \Gamma_p \frac{\Omega_z^2 + \Gamma_f^2}{(\Gamma_f - \Gamma_p) \Omega_z^2 + \Gamma_f \omega_1^2 + (\Gamma_f - \Gamma_p) \Gamma_f^2} \end{array} \right.$$

b) Effet Hanle :

C'est le cas où $\omega_y = \omega_z = 0$: on balaie lentement ω_x autour de la valeur zéro. Le pompage se fait toujours dans la direction de Oz et on observe, dans la direction de Oy, la lumière π ou σ^+ /Oy. C'est une expérience très analogue à l'effet Hanle dans l'état excité : on oriente les spins selon Oz, puis on observe leur rotation autour de Ox pendant la durée de vie τ de l'état considéré. Ici, τ doit

.../...

fication. L'illumination se fait alors en σ^+ par rapport à Oz (noté σ^+/Oz) et la détection en σ^+/Oy . Les calculs sont très compliqués. On peut prendre au contraire Oz pour axe de quantification. Le pompage se fait alors en σ^+ et la détection en σ^+/Oy . Le phénomène d'absorption est alors décrit très simplement et les calculs sont beaucoup plus simples que dans l'hypothèse précédente. On peut enfin prendre Oy pour axe de quantification. Ceci simplifie les termes dus à l'émission spontanée, lorsqu'on y sélectionne la polarisation σ^+ . L'excitation se fait en σ^+/Oz . Les calculs sont d'une complication très analogue à celle du cas précédent.

Nous adopterons ici la seconde représentation (axe de quantification Oz), c'est-à-dire que nous supposerons comme au paragraphe précédent que l'excitation optique se fait en σ^+ (ou en σ^-).

Si \vec{u}_x , \vec{u}_y et \vec{u}_z sont les vecteurs unitaires des trois axes, on peut caractériser une polarisation σ^+/Oy par le vecteur $\vec{e}_\lambda^+ = -\frac{1}{\sqrt{2}} (\vec{u}_z + i\vec{u}_x)$ et une polarisation σ^-/Oy par le vecteur $\vec{e}_\lambda^- = \frac{1}{\sqrt{2}} (\vec{u}_z - i\vec{u}_x)$.

On sait par ailleurs que

$$\langle 0 | \vec{D} | +1 \rangle = -\frac{1}{\sqrt{2}} (\vec{u}_x + i\vec{u}_y)$$

$$\text{et } \langle 0 | \vec{D} | -1 \rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} (\vec{u}_x - i\vec{u}_y)$$

$$\langle 0 | \vec{D} | 0 \rangle = \vec{u}_z$$

On a donc

$$(33) \quad \begin{aligned} \langle 0 | \vec{e}_\lambda^+ \cdot \vec{D} | +1 \rangle &= -\frac{i}{2} & \text{et} & \quad \langle 0 | \vec{e}_\lambda^- \cdot \vec{D} | +1 \rangle = -\frac{i}{2} \\ \langle 0 | \vec{e}_\lambda^+ \cdot \vec{D} | -1 \rangle &= +\frac{i}{2} & & \quad \langle 0 | \vec{e}_\lambda^- \cdot \vec{D} | -1 \rangle = +\frac{i}{2} \\ \langle 0 | \vec{e}_\lambda^+ \cdot \vec{D} | 0 \rangle &= -\frac{1}{\sqrt{2}} & & \quad \langle 0 | \vec{e}_\lambda^- \cdot \vec{D} | 0 \rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} \end{aligned}$$

.../...

La formule $\langle \mu | \vec{e}_\lambda \vec{D} | F, m_F \rangle = \sum_{m_J} \langle \mu | \vec{e}_\lambda \vec{D} | \mu, m_J \rangle \langle \mu, m_J | F, m_F \rangle$

permet alors de calculer tous les éléments de matrice de $\vec{e}_\lambda \cdot \vec{D}$. Les $\langle \mu, m_J | F, m_F \rangle$ sont des coefficients de CLEBSCH-GORDAN car nous sommes en champ faible. On explicite alors dans ce cas l'équation (6-c) de JPl donnant L_T en utilisant par ailleurs les définitions de M_x , M_y et M_z données plus haut.

On obtient les formules suivantes :

1°) Illumination en σ^+

(34) a . Détection σ^+ / O_y : $L_{++} = \frac{1}{\omega_{hf}^2 + \Gamma^2} \left\{ (11\omega_{hf}^2 + 9\Gamma^2) - 6\omega_{hf}\Gamma M_x + 6\omega_{hf}^2 M_y - 2\omega_{hf}^2 M_z \right\}$

b . Détection σ^- / O_y : $L_{+-} = \frac{1}{\omega_{hf}^2 + \Gamma^2} \left\{ (11\omega_{hf}^2 + 9\Gamma^2) + 6\omega_{hf}\Gamma M_x - 6\omega_{hf}^2 M_y - 2\omega_{hf}^2 M_z \right\}$

c . Détection $\vec{e}_\lambda = \vec{u}_x$: $L_{+\sigma} = \frac{1/18}{\omega_{hf}^2 + \Gamma^2} \left\{ (7\omega_{hf}^2 + 9\Gamma^2) + 2\omega_{hf}^2 M_z \right\}$

d . Détection $\vec{e}_\lambda = \vec{u}_z$: $L_{+\pi} = \frac{1}{\omega_{hf}^2 + \Gamma^2} \left\{ \frac{2}{9} \omega_{hf}^2 (1 - M_z) \right\}$

Dans L_{++} , le premier signe + signifie illumination en σ^+ et le second signifie détection en σ^+ / O_y . Les autres notations (L_{+-} , $L_{+\sigma}$ et $L_{+\pi}$ correspondent aux autres cas indiqués).

2°) Illumination en σ^-

(35) a . Détection σ^+ / O_y : $L_{-+} = \frac{1}{\omega_{hf}^2 + \Gamma^2} \left\{ (11\omega_{hf}^2 + 9\Gamma^2) + 6\omega_{hf}\Gamma M_x + 6\omega_{hf}^2 M_y + 2\omega_{hf}^2 M_z \right\}$

b . Détection σ^- / O_y : $L_{--} = \frac{1}{\omega_{hf}^2 + \Gamma^2} \left\{ (11\omega_{hf}^2 + 9\Gamma^2) - 6\omega_{hf}\Gamma M_x - 6\omega_{hf}^2 M_y + 2\omega_{hf}^2 M_z \right\}$

c . Détection $\vec{e}_\lambda = \vec{u}_x$: $L_{-\sigma} = \frac{1/18}{\omega_{hf}^2 + \Gamma^2} \left\{ (7\omega_{hf}^2 + 9\Gamma^2) - 2\omega_{hf}^2 M_z \right\}$

d . Détection $\vec{e}_\lambda = \vec{u}_z$: $L_{-\pi} = \frac{2/9}{\omega_{hf}^2 + \Gamma^2} \left\{ \omega_{hf}^2 (1 + M_z) \right\}$

Toutes ces formules sont données à un facteur de proportionnalité près, lequel contient le facteur Γ/T_p et l'angle solide sous lequel on observe la lumière de fluorescence.

.../...

Il résulte des formules précédentes que certaines combinaisons de signaux sont intéressantes à observer. Envisageons le cas du pompage en σ^+ .

3°) Signal proportionnel à l'aimantation longitudinale

Envisageons la combinaison

$$(36) \quad \frac{4\omega_{hf}^2}{\omega_{hf}^2 + \Gamma^2} L_{+\sigma} - \frac{(7\omega_{hf}^2 + 9\Gamma^2)}{\omega_{hf}^2 + \Gamma^2} L_{+\pi} = \frac{2\omega_{hf}^2}{\omega_{hf}^2 + \Gamma^2} M_z$$

Elle permet de détecter M_z tout en compensant le fond continu des signaux de fluorescence. Lorsque $\omega_{hf} \gg \Gamma$, on voit qu'il faut prendre la combinaison $4 L_{+\sigma} - 7 L_{+\pi}$. Cette combinaison a l'avantage de réduire partiellement les fluctuations lentes de la lampe de pompage. Sur cette formule, on retrouve le fait que la sensibilité de la détection de M_z par la lumière de fluorescence est proportionnelle à $\frac{\omega_{hf}^2}{\Gamma^2 + \omega_{hf}^2}$.

4°) Signal proportionnel à l'aimantation transversale

Une autre combinaison intéressante est

$$(37) \quad L_{++} - L_{--} = \frac{12\omega_{hf}}{\omega_{hf}^2 + \Gamma^2} (\omega_{hf} M_y - \Gamma M_x)$$

A l'opposé de la précédente, cette combinaison élimine M_z . Elle présente l'avantage de ne faire intervenir aucun coefficient multiplicatif. Les renseignements obtenus ici concernent l'aimantation transversale de la vapeur (par rapport à la direction de pompage). Ils sont analogues à ceux que l'on pouvait obtenir au chapitre précédent en amplifiant sélectivement la modulation à la fréquence ω de la lu-

mière de fluorescence. Cependant, dans le cas actuel, on se propose d'observer la résonance magnétique à fréquence nulle et l'effet Hanle dans l'état fondamental. Dans l'un et l'autre cas, tous les signaux sont statiques et c'est pourquoi il est nécessaire, pour éliminer M_z , de faire la différence des signaux $L_{++} - L_{--}$ au lieu d'une amplification sélective de L_{++} par exemple, à la fréquence ω .

REMARQUE

Dans la formule (37), le terme $\frac{\omega_{hf} \Gamma}{\omega_{hf}^2 + \Gamma^2} M_x$ n'est du même ordre de grandeur que $\frac{\omega_{hf}^2}{\omega_{hf}^2 + \Gamma^2} M_y$ que dans la mesure où ω_{hf} est de l'ordre

de Γ : bien qu'observant la lumière réémise dans la direction de Oy , on observe alors un signal sensible à la composante M_x de l'aimantation transversale. Comme ceci apparaîtra clairement sur la formule ⁴⁰ du chap. V, c'est ce même terme en M_x qui est à l'origine du déphasage de la modulation de la lumière de fluorescence due à la conservation de "cohérence hyperfine" dans l'état excité.

Dans le cas actuel où tous les signaux sont statiques, on mettra ce terme en évidence de la façon suivante : sur les formules (31) représentant M_x , M_y et M_z lors d'une résonance à fréquence nulle, il est clair que M_x varie avec Ω_z comme une courbe de dispersion et M_y comme une courbe d'absorption. Lorsque ω_1 croît, l'amplitude de la courbe représentative de M_x croît et tend vers une valeur limite, différente de zéro, tandis que l'amplitude de la courbe représentative de M_y passe par un maximum et tend vers zéro lorsque ω_1 augmente. Ainsi, dans la formule (37), pour des valeurs suffisantes de ω_1 , seul sera

.../...

différent de zéro le terme $\frac{\Gamma \omega_{hf}}{\Gamma^2 + \omega_{hf}^2} M_x$ qui caractérise la situation où $\omega_{hf} \sim \Gamma$.

Nous décrivons également au chapitre VI des expériences d'effet Hanle dans l'état fondamental qui nous ont permis de vérifier les formules (32) et en particulier d'observer l'élargissement optique de l'effet Hanle (contribution de $1/T_p$ dans Γ_f (équations 28)).

PARTIE EXPERIMENTALE

INTRODUCTION

Lorsque nous avons abordé ce travail, les techniques expérimentales de l'orientation nucléaire par pompage optique avaient déjà été mises au point sur les isotopes impairs du mercure. De nombreuses variantes avaient été étudiées théoriquement et expérimentalement, tant en ce qui concerne le pompage optique proprement dit que la détection optique de la résonance magnétique nucléaire.

Citons par exemple :

- Le pompage utilisant l'excitation en "raie large" (3).
- Le pompage utilisant l'excitation en "raie étroite", exploitant la coïncidence entre une composante de structure isotopique et une composante de structure hyperfine d'un isotope impair (3).
- Le balayage magnétique des lampes.
- Le filtrage isotopique éliminant certaines composantes de la raie émise par une lampe.
- La détection sur la modulation de la lumière de fluorescence L_F (7).
- La détection sur la modulation de l'absorption L_A d'un faisceau croisé (21)(7).
- La détection par effet Faraday transversal modulé, etc. (22).

Nous avons été amenés à utiliser la plupart de ces techniques expérimentales dans le cas du cadmium et nous ne les décrirons pas. Nous renvoyons aux références correspondantes pour une description plus détaillée les concernant.

Dans le cas du cadmium (comme dans celui du mercure), on peut envisager de produire l'orientation nucléaire par pompage optique par l'une ou l'autre des deux raies de résonance : $5^1S_0 - 5^1P_1$ (à 2288 Å) et $5^1S_0 - 5^3P_1$ (à 3261 Å). La première est analogue à la raie 1850 Å du mercure, la seconde qui est une raie d'intercombinaison, donc beaucoup moins intense, est analogue à la raie 2537 Å.

Nous avons rassemblé dans le tableau 1 les principaux paramètres relatifs à ces deux raies.

λ	τ	ω_{hf}	Γ	$\Delta\nu_D$	t°C	
					lorsque $k_0 = 0,1$ ou 1cm^{-1}	
2288 Å	$1,6 \cdot 10^{-9}\text{s}^{(23)}$	279 Mc/s (23)	100 Mc/s	1900 Mc/s	110°C	130°C
3261 Å	$2,18 \cdot 10^{-6}\text{s}^{(24)}$	6420 Mc/s (25)	73 Kc/s	1320 Mc/s	180°C	220°C

- λ Longueur d'onde
- τ Durée de vie du niveau excité
- ω_{hf} Structure hyperfine du niveau excité pour ^{111}Cd
- $\Gamma = 1/\tau$ Largeur naturelle du niveau excité
- $\Delta\nu_D$ Largeur Doppler de la raie
- k_0 Coefficient d'absorption

TABLEAU 1

La figure 8 donne par ailleurs la structure hyperfine de la raie 3261 Å (26). Nous en tirerons ultérieurement les conséquences. La structure isotopique de la raie 2288 Å est la même que pour la raie 3261 Å (27). Par contre, la structure hyperfine des isotopes 111 et 113 est très petite si bien que les sous-niveaux hyperfins sont très voisins : ils sont indiqués en pointillé pour ^{111}Cd et ^{113}Cd sur la figure 8.

$$\lambda = 3.261 \text{ \AA}$$

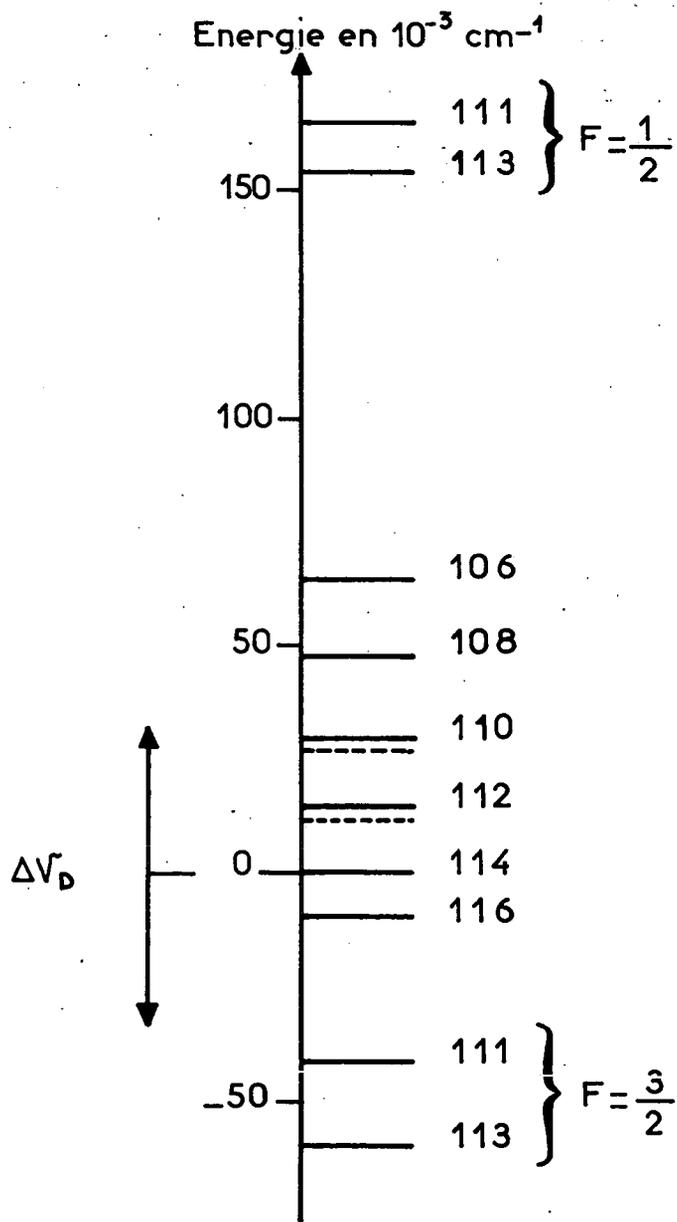


Figure 8

Des deux dernières colonnes du tableau 1, on peut déduire qu'il est facile, expérimentalement, de séparer l'absorption des deux raies dans une cellule de résonance optique. Les figures 9-a et 9-b montrent, en fonction de la température du cadmium métallique dans le queusot, les courbes représentant l'intensité de la lumière transmise et celle de la lumière de fluorescence réémise, en a pour la raie $3261 \overset{\circ}{\text{Å}}$ seule (isolée par un filtre interférentiel), en b pour la raie $2288 \overset{\circ}{\text{Å}}$ seule, dans une cellule cubique de 4 cm d'arête.

.../...

..

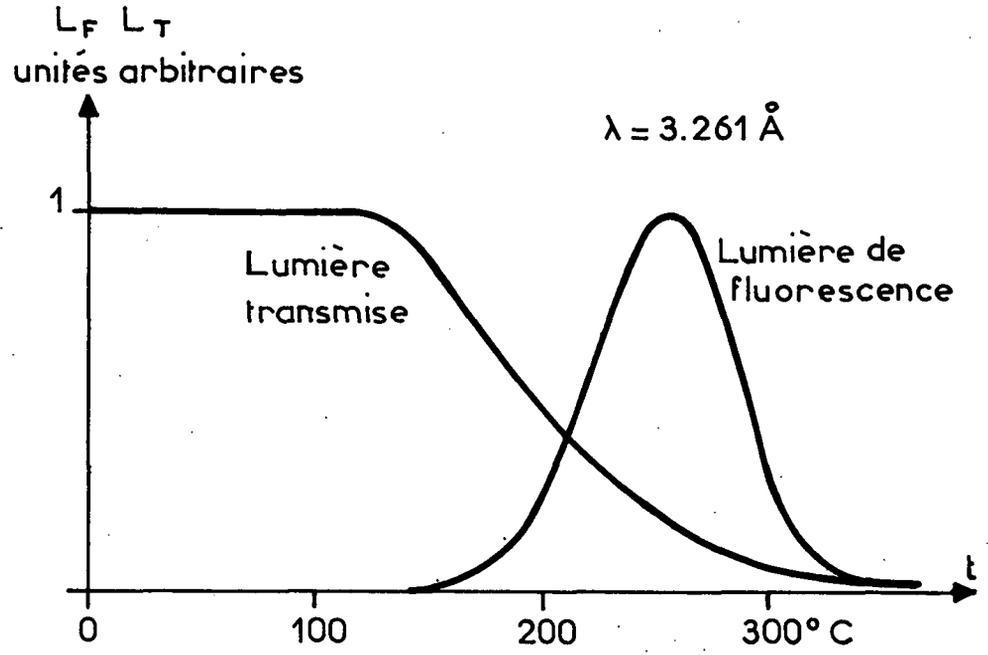


Figure 9a

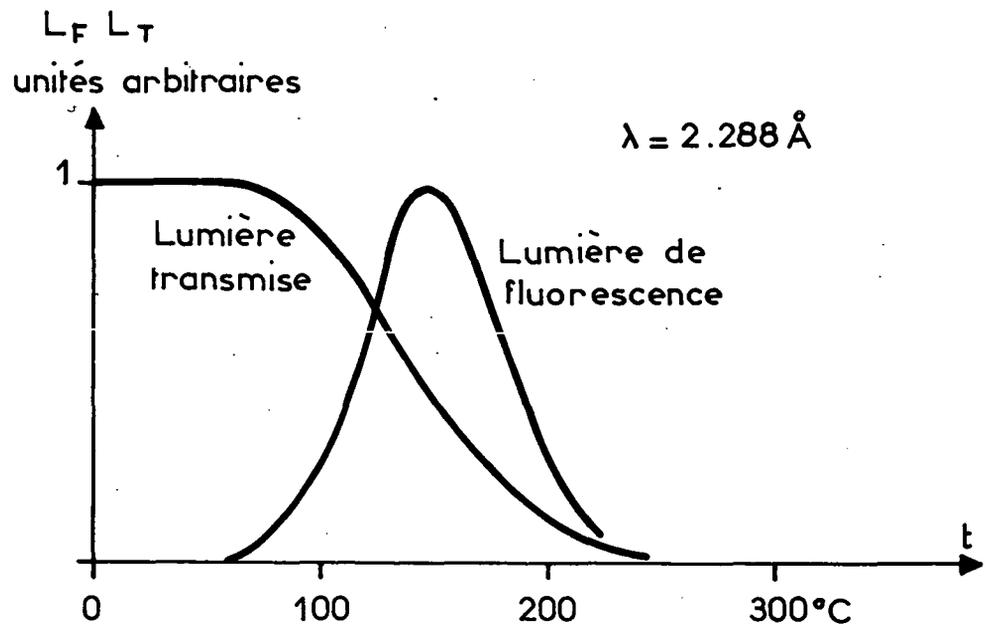


Figure 9b

CHAPITRE V

L' ORIENTATION DU CADMIUM PAR LA RAIE 2288 Å

A/ CONDITIONS EXPERIMENTALES

Cette raie semble très favorable pour effectuer le pompage optique, du fait de sa grande probabilité d'absorption (liée à la courte durée de vie du niveau 5^1P_1). Cependant, plusieurs facteurs méritent d'être examinés.

. Nous avons vu que la valeur du paramètre a/Γ pouvait être défavorable au processus de pompage optique. Dans le cas actuel, $a/\Gamma \approx 2$, donc $p_{\max}^+ = \frac{(a/\Gamma)^2}{1 + 2(a/\Gamma)^2} = \frac{4}{9}$, ce qui est très voisin de

0,5 (fig. 7) et ne risque pas, par suite, d'entraver sérieusement le processus d'orientation nucléaire proprement dit (malgré cela, de nombreuses conséquences du fait que a/Γ n'est pas très supérieur à 1 et décrites dans la partie théorique, ont été mises en évidence expérimentalement).

. La longueur d'onde relativement courte de cette raie impose une optique en silice fondue très transparente dans l'ultraviolet (Suprasil ou Ultrasil de Heraeus). Des filtres polarisants fonctionnant dans l'ultraviolet sont, en outre, nécessaires. Ceux que nous avons utilisés (Polacoat 105 UVR (¹⁰)) sont déjà très absorbants à cette longueur d'onde. De même, nos lames quart d'onde (en quartz de 4 cm de diamètre) sont $33 \lambda/4$: ceci rend assez mauvaise la qualité de la polarisation dès que l'ouverture des faisceaux est appréciable.

En outre, le noircissement des fenêtres des lampes, qui intervient toujours après un certain temps de fonctionnement produit une forte absorption à 2288 Å.

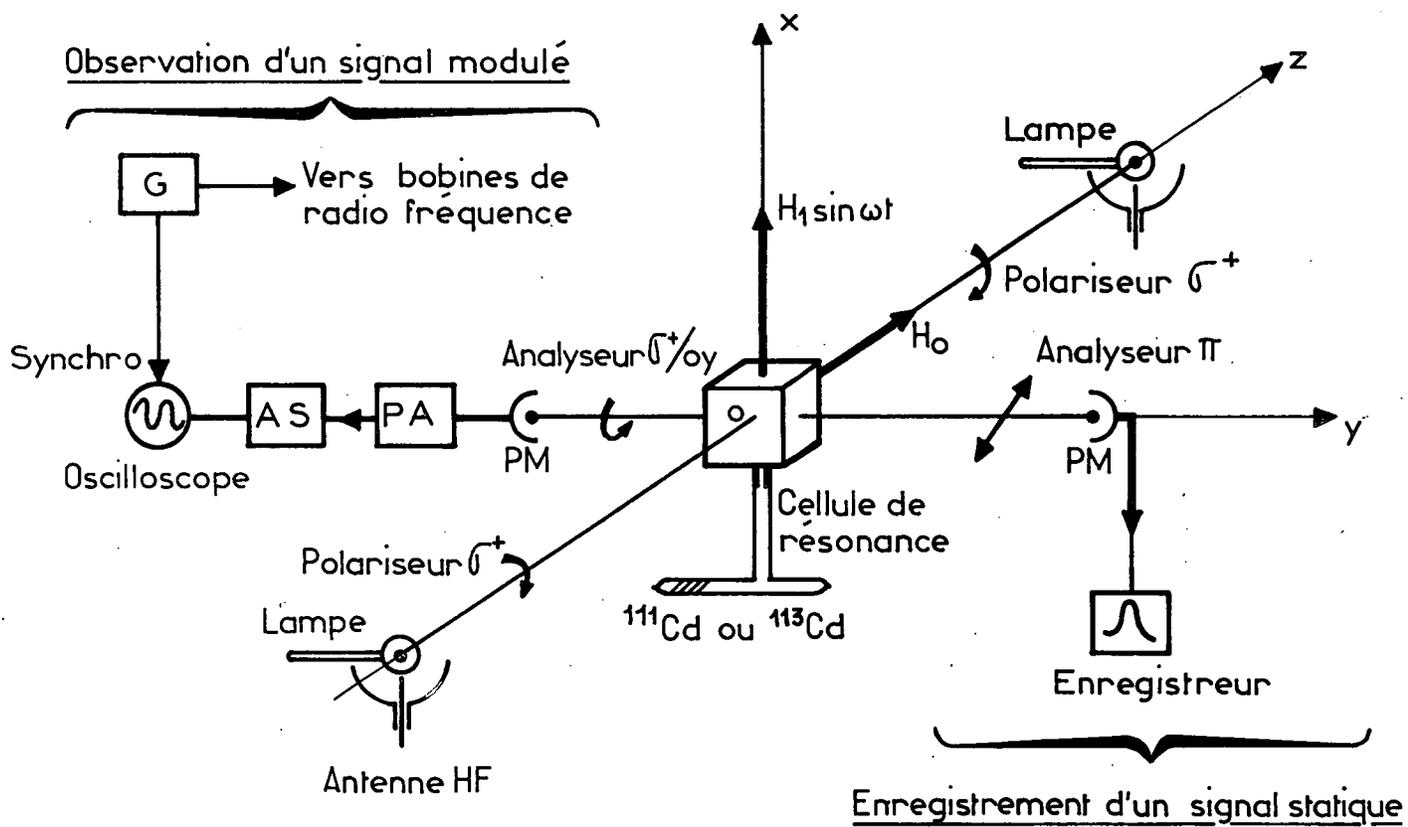
.Enfin la forte probabilité d'absorption de la raie 2288 Å rend difficile l'émission d'une raie intense qui ne soit pas renversée par autoabsorption : elle impose l'usage de lampes très peu épaisses (1 mm dans notre cas).

Le montage expérimental est d'un type extrêmement classique. Il est schématisé sur la figure 10. Nous dirons simplement un mot des lampes, de la cellule de résonance et des polaroïds et lames quart d'onde que nous employons.

Les lampes utilisées pour l'émission de la raie 2288 Å ont la forme d'un disque plat de 1 mm d'épaisseur et de 25 mm de diamètre, prolongé par un queusot contenant environ 3 mg de cadmium métallique. La surface émissive est de l'ordre de 6 à 8 cm². L'excitation se fait à 2400 Mc/s dans une antenne excitée par un magnétron délivrant 200 w (Philips 7090), ou dans une cavité résonnante. La décharge est amorcée par de l'argon sous une pression de 4 à 6 mm de mercure. Si l'on veut obtenir une raie non renversée, il est indispensable d'éviter toute contamination du disque de la lampe par du cadmium métallique. Ceci est obtenu en plaçant le disque dans un four, de manière qu'il soit à une température supérieure à celle du queusot (lequel est maintenu vers 200°C). Dans certains cas, la décharge elle-même suffit à maintenir la température du disque à une valeur convenable. Notons que dans la pratique, la condition de non renversement limite la brillance des lampes, ce qui constitue une difficulté importante si l'on veut obtenir des taux d'orientation élevés. Sur le montage représenté figure 10, il y a deux lampes de pompage : ceci nous a permis d'atteindre des taux d'orientation importants

($\frac{\sigma_{++} - \sigma_{--}}{\sigma_{++} + \sigma_{--}} > 40\%$). Nous verrons par la suite que la mauvaise qualité

de la polarisation circulaire que nous sommes parvenus à réaliser constitue une autre obstacle à l'obtention de taux d'orientation plus élevés.



Légende

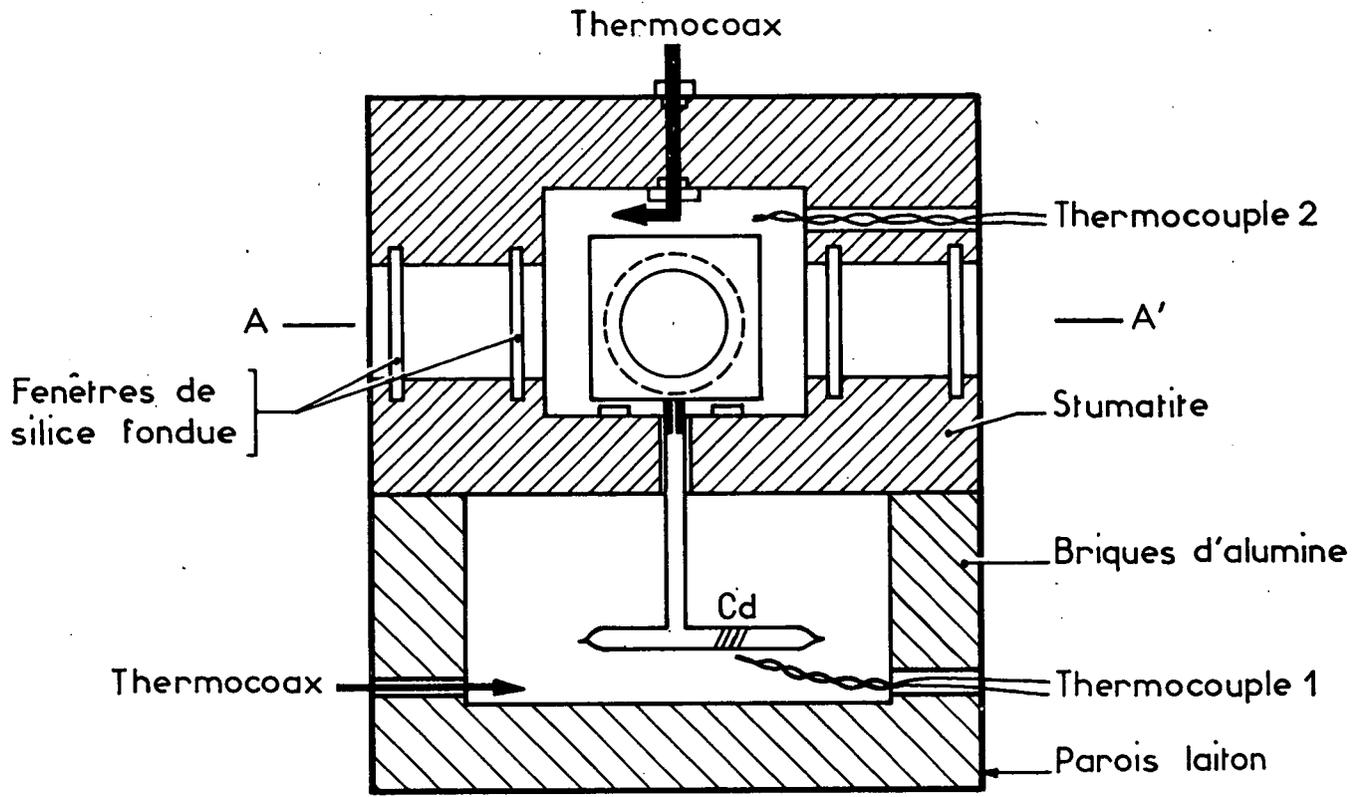
- PM: Photomultiplicateur
- PA: Préamplificateur
- AS: Amplificateur selectif à la fréquence ω
- G: Générateur à quartz, à la fréquence ω

Figure 10

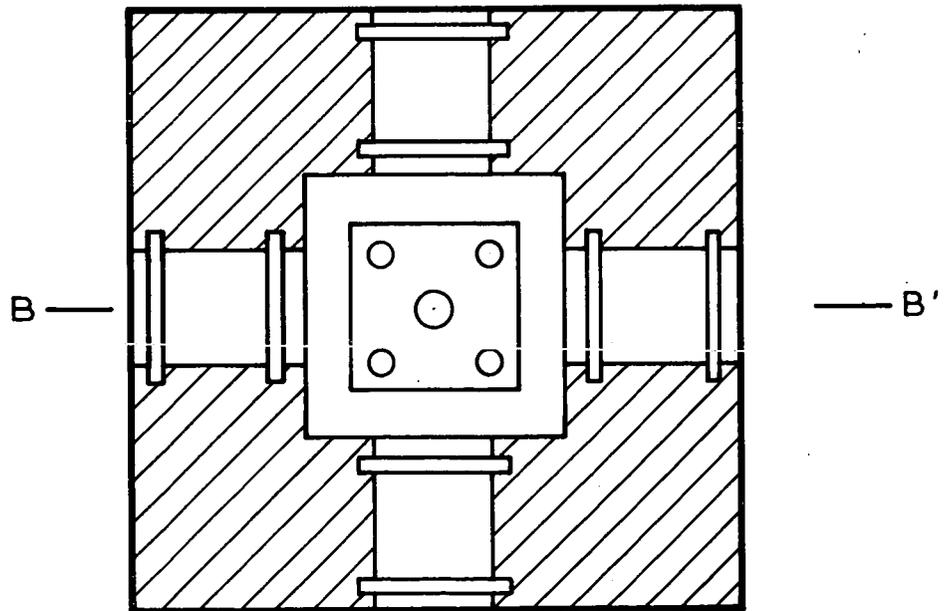
La cellule de résonance est d'un type classique : elle est cubique, de 4 cm d'arête, et communique par un capillaire avec un queusot contenant l'isotope étudié : ^{111}Cd ou ^{113}Cd , d'une pureté de 94%. Ces derniers nous sont fournis par "Oak Ridge National Laboratory" sous forme d'oxyde de cadmium que l'on réduit par l'azote hydrate de barium (certaines cellules ont aussi été remplies avec un mélange à parts égales des deux isotopes). Quelques milligrammes sont suffisants pour remplir une cellule.

Le remplissage et le dégazage de ces cellules sont effectués avec un grand soin. Elles sont en effet chauffées en cours de fonctionnement, pendant de longues périodes, à 600°C et il est indispensable de prévenir toute possibilité de dégazage des parois. Dans ce but, l'évacuation se fait avec étuvage du corps de la cellule à 900°C pendant 4 heures. En outre, on attache à la cellule un getter au barium et avant toute utilisation, la cellule est étuvée à 900°C durant plusieurs jours. Le getter est alors scellé et la cellule est prête à être utilisée.

On la place dans un four dont la figure 11 donne une représentation schématique. La partie haute de ce four est en "stumatite" (Merlin-Gérin). C'est un matériau analogue à la stéatite mais ne présentant que de faibles retraits à la cuisson. Cette partie haute est percée de quatre orifices fermés par des doubles fenêtres de silice fondue. Elle est totalement isolée de la partie basse et peut être chauffée jusque vers 600°C , par un fil résistant coaxial ("Thermocoax" Philips). Le retour du courant s'effectue par la gaine de ce fil, ce qui permet de faire passer des courants de chauffage importants sans créer, au niveau de la cellule, de champ magnétique parasite gênant. La température est mesurée et contrôlée par thermocouple. Dans la partie basse du four, en laiton, est placé le queusot contenant le cadmium. L'isolement thermique de cette partie est assuré par des briques d'alumine. Le même principe de chauffage par fil coaxial permet de porter



Vue en coupe BB'



Vue en coupe AA' (Vue de dessus)

Figure 11

le cadmium à la température nécessaire pour avoir une tension de vapeur convenable.

La polarisation de la lumière, tant sur le faisceau de pompage que sur le faisceau de détection, se fait par des films polarisants 105 UVR ("Polacoat") dont la qualité n'est pas parfaite à 2288 Å. Si l'on a une intensité lumineuse égale à 1 en l'absence de polariseur, on obtient une intensité avec polariseur, $\lambda = 0,2$ pour une polarisation et $\mu = 0,016$ pour l'autre. Il y a donc une absorption de 60% de la lumière sur la bonne polarisation, et 8% de la lumière transmise a, par ailleurs, la mauvaise polarisation. Ces valeurs de λ et μ nous seront utiles par la suite.

Par ailleurs, pour produire une polarisation circulaire de la lumière pompante (et éventuellement de la lumière de fluorescence), nous utilisons des lames de quartz taillées parallèlement à leur axe, d'une épaisseur de 161,6 μ . Malgré cette très faible épaisseur, ces lames sont encore 33 $\lambda/4$ à 2288 Å. Attaquées sous un angle de 9°, elles deviennent 33,33 $\lambda/4$, c'est-à-dire 1,33 $\lambda/4$ à $n\lambda$ près. On conçoit donc qu'avec les faisceaux très ouverts que nous utilisons pour avoir de grandes intensités lumineuses, la qualité de la polarisation circulaire obtenue soit mauvaise. On pouvait songer à mesurer par polarimétrie les pourcentages de lumière σ^+ et σ^- dans nos faisceaux lumineux, malheureusement une telle mesure n'est pas simple à 2288 Å. Nous avons donc préféré l'évaluer directement en supposant l'intensité lumineuse répartie uniformément dans un faisceau conique de 24° d'ouverture totale. Compte tenu des valeurs de λ et μ caractérisant le film polarisant, on obtient, dans ces conditions, et en partant toujours d'une intensité lumineuse égale à 1 en l'absence de polariseur et de lame quart d'onde :

Intensité lumineuse en σ^+ : 0,177
Intensité lumineuse en σ^- : 0,038

.../...

Cette évaluation est un peu grossière; nous verrons cependant qu'elle est en assez bon accord avec les résultats expérimentaux (qui en dépendent de façon importante).

En vue des calculs que nous présentons par la suite, on peut normaliser les intensités lumineuses ci-dessus :

Intensité lumineuse en σ^+ : $\alpha = 0,822$

Intensité lumineuse en σ^- : $\beta = 0,178$ ($\alpha + \beta = 1$)

Absorption totale par le polariseur : 78,4% de la lumière (au lieu de 50% pour un polariseur parfait).

B/ PRESENTATION DES RESULTATS OBTENUS

Les vérifications expérimentales de la théorie exposée au chapitre II ont porté sur les points suivants :

o. Efficacité du processus de pompage optique et intensité de la lumière π réémise en fonction du champ magnétique. Il s'agit de la vérification quantitative de l'expression p^+ (H_0). Les résultats obtenus sont en bon accord avec la théorie.

o. Observation des déplacements de la résonance magnétique de l'état fondamental ("déplacements lumineux") dus, lors des transitions réelles, à la conservation de "cohérence hyperfine" dans l'état excité. Cette observation n'a été que qualitative. Cependant elle permet une détermination du signe de a .

o. Observation, étude et mesure de la phase de la modulation de la lumière de fluorescence, L_F , lors d'une expérience de résonance magnétique dans l'état fondamental. Ici encore l'influence de la conservation de "cohérence hyperfine" dans l'état excité a pu être mise en évidence et conduit à une mesure directe de la valeur du rapport a/Γ .

Certaines conclusions théoriques n'ont pu être vérifiées explicitement. Il s'agit notamment des variations de l'efficacité du

.../...

pompage optique suivant la grandeur de la structure hyperfine de l'état excité (fig. 7) : une telle vérification impliquant le passage d'un élément à un autre (du cadmium au mercure) , il est difficile de faire varier cette grandeur sans changer considérablement les conditions expérimentales. Nous n'avons pas vérifié de même certains résultats théoriques prévus en champ fort (déplacement de la fréquence de résonance), l'efficacité de l'orientation nucléaire tombant à zéro dans ce domaine de champ magnétique. Enfin, l'étude quantitative des déplacements de fréquence en champ quelconque ainsi que des élargissements radiatifs des raies n'a pas été effectuée. Il est en effet expérimentalement difficile de mesurer ces effets avec précision dans le cas particulier du cadmium. Les résultats qualitatifs obtenus sont cependant suffisants pour prouver surabondamment la validité des résultats théoriques décrits précédemment.

C/ EFFICACITE DU POMPAGE OPTIQUE ET TAUX DE POLARISATION DE LA LUMIERE DE FLUORESCENCE

1°) Considérations générales

Il s'agit de vérifier les formules

$$(38) \quad p^+ = \frac{a^2}{2a^2 + \delta^2 + \Gamma^2} \quad \text{et} \quad p^- = \frac{a^2}{2a^2 + \delta'^2 + \Gamma^2} \quad \text{avec}$$

$$\delta = g_J \mu_B H_0 - \frac{a}{2} \quad \text{et} \quad \delta' = -g_J \mu_B H_0 - \frac{a}{2} \quad (H_0 > 0)$$

Nous opérons expérimentalement de la façon suivante (fig. 10) : l'orientation nucléaire est produite dans l'état fondamental par pompage optique en σ^+ ou en σ^- . Le champ magnétique statique vaut H_0 , il est parallèle à la direction de pompage. Nous observons la lumière de fluorescence réémise à angle droit du faisceau de pompage avec la polarisation π . Lorsqu'on effectue une résonance magnétique dans l'état fondamental, l'intensité de cette lumière de fluorescence π croît de $\frac{I_\pi^e}{\pi}$ (valeur

.../...

lorsque le pompage optique crée une différence de population $\sigma_{++}^e - \sigma_{--}^e$ dans l'état fondamental) à I_{π}^0 (valeur à saturation de la résonance magnétique : $\sigma_{++} = \sigma_{--} = 1/2$).

Nous portons, en fonction de H_0 , les valeurs de I_{π}^0 d'une part (c'est ce que nous appellerons le signal optique d' "anticroisement") et de $S = I_{\pi}^0 - I_{\pi}^e$ d'autre part (qui est le signal de résonance magnétique à saturation). Ces courbes sont tracées pour un pompage en σ^+ , en σ^- ou encore en lumière naturelle, comme nous le verrons sur les figures 12 et 13.

Pour interpréter ces observations, il nous faut revenir sur les formules (38).

Ces formules ont été établies au chapitre II sur un atome isolé. p^+ représente alors l'efficacité d'un seul cycle de pompage sur un atome. Par la suite, dans le formalisme de la matrice densité (chap. II), on a vu que $\frac{1}{T_p} p^+$ représente la vitesse de pompage de σ_{++} , et également la fraction de lumière π réémise par les atomes initialement dans le sous-niveau $|\mu\rangle = |-1/2\rangle$ et ayant absorbé de la lumière σ^+ .

Cette dernière interprétation est en principe facilement vérifiable : les variations de p^+ (ou de p^-) avec H_0 doivent être reflétées par les variations de $I_{\pi}^0(H_0)$ pour une excitation en σ^+ (ou en σ^-). Il est clair en effet que le signal I_{π}^0 étant obtenu lorsque $\sigma_{++} = \sigma_{--} = 1/2$, ses variations avec H_0 dépendent uniquement du processus même : absorption d'un photon σ^+ , réémission d'un photon π .

Cependant, si la lumière excitatrice " σ^+ " est en réalité un mélange en proportions α et β de σ^+ et de σ^- , il faudra tenir compte de la réémission de lumière π qui suit en fait une excitation en σ^- . Celle-ci varie avec H_0 suivant la loi $p^- (H_0)$. L'intensité du signal $I_{\pi}^0(H_0)$ effectivement observé suivra donc a priori avec H_0 , une loi de la forme $\alpha p^+ + \beta p^-$ pour une excitation " σ^+ ". Pour une excitation

" σ^- ", la loi suivie sera $\beta p^+ + \alpha p^-$. Les courbes correspondantes sont alors plus proches l'une de l'autre que les courbes de la figure 6 qui supposent une excitation σ^+ ou σ^- pure.

Revenons à l'efficacité du pompage optique. Le signal optique effectivement observé est $S = I_{\pi}^o - I_{\pi}^e$, dont on suit les variations avec H_o pour un pompage en " σ^+ ", en " σ^- " ou en lumière naturelle. Comme nous le verrons, la loi d'évolution de S avec H_o , lorsque la qualité de la polarisation est médiocre, est une fonction de p^+ et de p^- plus compliquée que pour I_{π}^o seul. On peut s'en faire une idée de la façon suivante : il est certain que S est lié au taux d'orientation nucléaire atteint dans l'état fondamental. Il est facile de faire quelques prévisions sur l'évolution de celui-ci avec H_o :

. En supposant la polarisation σ^+ ou σ^- d'excellente qualité, ce taux d'orientation dépend essentiellement du rapport T_1/T_p (voir à ce propos B. CAGNAC (3)). En effet, il résulte d'un équilibre dynamique entre le pompage optique qui se fait en σ^+ avec la vitesse p^+/T_p et la relaxation thermique qui se fait avec la vitesse $1/T_1$. En particulier, si $p^+ T_1/T_p \gg 1$, le taux d'orientation atteint

$\frac{\sigma_{++} - \sigma_{--}}{\sigma_{++} + \sigma_{--}}$ sera toujours de 100% quel que soit p^+ . Il ne reflètera donc plus les variations de p^+ (H_o).

. Si par ailleurs, on suppose la lumière imparfaitement polarisée, la fraction β/α de lumière σ^- présente dans le " σ^+ " pompe en sens inverse du σ^+ (vers le sous-niveau $| -1/2 \rangle$), donc diminue le taux d'orientation atteint. Il en résulte une nouvelle valeur d'équilibre pour celui-ci. En champ intermédiaire, p^- étant inférieur à p^+ , cette lumière parasite σ^- affecte "peu" le pompage en " σ^+ ". Au contraire, pour un pompage en " σ^- ", la fraction β/α de lumière parasite σ^+ présente, pompe dans le "mauvais" sens avec une efficacité p^+ qui

va perturber "beaucoup" le pompage en " σ^- ". On conçoit donc que l'écart entre les taux d'orientation atteints en pompage " σ^+ " et en pompage " σ^- " sera plus grand, en champ intermédiaire, que ne le laisse prévoir les courbes de la figure 6. Cet effet va se répercuter sur les variations de $S^+(H_0)$ et de $S^-(H_0)$.

Un calcul explicite des signaux $I_\pi^0(H_0)$ et $S(H_0)$ s'impose donc.

2°) Calcul théorique des signaux d' "anticroisement" et de résonance magnétique

Nous supposons dorénavant que la lumière incidente contient des proportions α de lumière σ^+ et β de lumière σ^- . Nous supposerons ces polarisations "incohérentes" entre elles. Par ailleurs, lorsque nous calculerons la "lumière π " réémise, nous supposerons que notre analyseur laisse passer une proportion λ de lumière π et $\mu/2$ de lumière σ^+ et σ^- .

a) Taux d'orientation nucléaire atteint :

On peut écrire l'équation d'évolution de σ_{++} dans ce cas :

$$(39) \quad \frac{d}{dt} \sigma_{++} = \frac{\alpha}{T_p} p^+ (1 - \sigma_{++}) - \frac{\beta}{T_p} p^- \sigma_{++} - \frac{1}{T_1} (\sigma_{++} - \frac{1}{2})$$

Le premier terme du second membre représente le pompage en σ^+ , le second le pompage en σ^- (qui dépeuple le sous-niveau $| +1/2 \rangle$) et le troisième la relaxation thermique que l'on suppose indépendante du champ magnétique (cette dernière hypothèse a été justifiée par des mesures directes de T_1).

La solution stationnaire de ce système est

$$\left(\frac{d}{dt} \sigma_{++} = 0, \sigma_{++} + \sigma_{--} = 1 \right) :$$

.../...

$$(40) \quad \left\{ \begin{array}{l} \sigma_{++}^e = \frac{\frac{\alpha}{T_p} p^+ + \frac{1}{2T_1}}{\frac{1}{T_p} (\alpha p^+ + \beta p^-) + \frac{1}{T_1}} \\ \sigma_{--}^e = \frac{\frac{\beta}{T_p} p^- + \frac{1}{2T_1}}{\frac{1}{T_p} (\alpha p^+ + \beta p^-) + \frac{1}{T_1}} \end{array} \right.$$

Ces formules nous donnent les populations atteintes à l'équilibre lorsque le pompage optique se fait en lumière imparfaitement polarisée. Le taux d'orientation nucléaire atteint est donc

$$(41) \quad \sigma_{++}^e - \sigma_{--}^e = \frac{\alpha p^+ - \beta p^-}{\alpha p^+ + \beta p^- + \frac{T_p}{T_1}}$$

b) Signal optique :

Pour le calculer, il faut sommer sur tous les cycles de pompage optique possibles. On les trouve facilement sur les figures 4 ou 5.

Une absorption σ^+ sera affectée du facteur α .

Une absorption σ^- sera affectée du facteur β .

Une émission π sera affectée du facteur λ .

Une émission σ^+ ou σ^- sera affectée du facteur $\mu/2$.

Par ailleurs, il est clair que la probabilité de décrire le cycle $|\mu\rangle = |-1/2\rangle \rightarrow$ absorption σ^+ - émission $\pi \rightarrow |\mu\rangle = |+1/2\rangle$ est p^+ . De même la probabilité de décrire le cycle $|\mu\rangle = |-1/2\rangle \rightarrow$ absorption σ^+ - émission $\sigma^+ \rightarrow |\mu\rangle = |-1/2\rangle$ est $(1-p^+)$, etc. Les expressions de p^+ et de p^- ont en effet été calculées précisément (formule (8)) en étudiant de tels cycles.

.../...

On a finalement la formule suivante (à un facteur près) :

$$I_{\pi} = \frac{1}{T_p} \left\{ (\alpha p^+ + \alpha \frac{\mu}{2} (1-p^+) + \beta \frac{\mu}{2}) \sigma_{--} + (\beta \lambda p^- + \beta \frac{\mu}{2} (1-p^-) + \alpha \frac{\mu}{2}) \sigma_{++} \right\}$$

Si l'on tient compte en outre du fait que $\sigma_{++} + \sigma_{--} = 1$, et si l'on omet le facteur $1/T_p$, on a

$$(42) \quad I_{\pi} = \mu \frac{\alpha + \beta}{2} + (\lambda - \frac{\mu}{2}) (\alpha p^+ \sigma_{--} + \beta p^- \sigma_{++})$$

Nous envisagerons deux cas en donnant à σ_{++} et σ_{--} les valeurs suivantes :

1) σ_{++}^e et σ_{--}^e , valeurs d'équilibre en présence de pompage optique et de relaxation. Dans ce cas,

$$(43) \quad I_{\pi}^e = \mu \frac{\alpha + \beta}{2} + (\lambda - \frac{\mu}{2}) \frac{\frac{2\alpha\beta p^+ p^-}{T_p} + \frac{\alpha p^+ + \beta p^-}{2T_1}}{\frac{1}{T_p} (\alpha p^+ + \beta p^-) + \frac{1}{T_1}}$$

2) $\sigma_{++}^o = \sigma_{--}^o = \frac{1}{2}$, valeurs lorsqu'on sature la résonance magnétique nucléaire dans l'état fondamental. Dans ce cas,

$$(44) \quad I_{\pi}^o = \mu \frac{\alpha + \beta}{2} + \frac{1}{2} (\lambda - \frac{\mu}{2}) (\alpha p^+ + \beta p^-)$$

La courbe donnant I_{π}^o en fonction de H_0 est la "courbe d'anticroisement" proprement dite entre les deux sous-niveaux $|F, m_F\rangle = |3/2, +1/2\rangle$ et $|1/2, +1/2\rangle$. C'est, en fonction de H_0 , le taux de polarisation π de la lumière réémise par l'ensemble de ces deux niveaux excités en σ^+ . Comme cela serait le cas pour une courbe d'effet Hanle ou de croisement de niveaux, un anticroisement s'observe normalement sans différences de populations dans l'état fondamental.

En fait I_{π}^o , du fait de la mauvaise qualité des polarisations est un mélange de ce signal d'anticroisement entre les deux sous-niveaux

$m_F = +1/2$ de l'état excité, et du signal d'anticroisement entre les sous-niveaux $|F, m_F\rangle = |3/2, -1/2\rangle$ et $|1/2, -1/2\rangle$ (qui s'observe lorsque l'excitation se fait en σ^-).

Ces deux signaux d'anticroisement sont représentés, en fonction de H_0 , par les courbes p^+ et p^- (fig. 6). Le fait qu'ils sont en pratique mélangés dans les proportions α et β (formule (43)) rajoute un signal "petit" (p^-) à p^+ qui est "grand" et un signal "grand" (p^+) à p^- qui est "petit" : les courbes observées expérimentalement seront donc plus proches l'une de l'autre que ne le sont p^+ et p^- , calculées au chapitre II et représentées sur la figure 6.

Le signal total de résonance magnétique à saturation est, en fonction de H_0 :

$$(45) \quad S = I_{\pi}^o - I_{\pi}^e = \frac{1}{2} \left(\lambda - \frac{\mu}{2} \right) \times \frac{(\alpha p^+ - \beta p^-)^2}{(\alpha p^+ + \beta p^-) + \frac{T_p}{T_1}}$$

On comparera les variations de $S(H_0)$ ainsi défini avec les valeurs expérimentales de $I_{\pi}^o - I_{\pi}^e$.

Il ne faut pas confondre ce signal de résonance magnétique à saturation, S , avec le taux d'orientation nucléaire atteint (formule (41)).

On peut faire, à ce propos, les remarques suivantes : lorsque l'on passe du pompage en " σ^+ " au pompage en "lumière naturelle", l'intensité lumineuse pompante est beaucoup augmentée (on supprime l'absorption par le film polarisant). Il peut alors arriver que T_1/T_p soit inférieur à 1 en " σ^+ " et supérieur à 1 en lumière naturelle. Une telle situation peut conduire à un taux d'orientation atteint supérieur en lumière naturelle bien que le processus de pompage lui-même ($p^+ - p^-$) soit moins efficace dans ce cas. Par ailleurs, lorsque T_1/T_p reste supérieur à 1 aussi bien en " σ^+ " qu'en lumière naturelle, le taux d'orien-

tation atteint est alors toujours supérieur en " σ^+ "; cependant, le signal de résonance magnétique S étant affecté du facteur supplémentaire $\alpha p^+ - \beta p^-$, il peut arriver qu'il soit supérieur en lumière naturelle à la valeur qu'il a en σ^+ . Une telle situation a pu être observée expérimentalement.

En comparant les figures 13 et 6, nous verrons par ailleurs que, comme nous l'avons pressenti intuitivement pour le taux d'orientation nucléaire, les signaux de résonance magnétique à saturation en " σ^+ " et en " σ^- " sont plus éloignés l'un de l'autre en champ intermédiaire que ne le sont p^+ et p^- .

REMARQUE : On voit que si $\lambda = \frac{H}{2}$, on n'observe ni signal d'anticroisement, $I_{\pi}^0(H_0)$, ni signal de résonance magnétique S. Ce cas est celui où une même quantité de lumière σ^+ , σ^- et π est présentée dans la lumière de fluorescence analysée : de même qu'aucun signal d'absorption ne peut être observé pour une excitation en "raie large", de même aucun signal ne peut être observé sur la fluorescence si celle-ci contient autant de σ^+ que de σ^- et de π .

3°) Comparaison avec l'expérience

Nous avons comparé directement aux formules (44) et (45) les mesures expérimentales, pour diverses valeurs de H_0 , de la lumière π réémise après une excitation σ^+ , et de la grandeur du signal de résonance magnétique à saturation observé sur la lumière de fluorescence π . Dans la formule (45), il existe un terme de relaxation dépendant de T_1 . Il est clair cependant qu'en l'absence de toute polarisation inverse, le taux d'orientation nucléaire tend vers 100% lorsque $T_1 / T_p \rightarrow \infty$. Dans le cas actuel, la polarisation inverse de la lumière pompante constitue elle-même un "frein" au processus d'orientation nucléaire et conduit, même lorsque $T_p \ll T_1$ à des valeurs limites de σ_{++} et de σ_{--} très différentes de 1 et 0. Or, nous nous trouvons précisément dans des conditions expérimentales très proches de celles où les valeurs de σ_{++} et σ_{--} sont limitées par la valeur non nulle du

.../...

du rapport β/α plutôt que par celle de T_p/T_1 . Nous avons donc négligé T_1 et calculé explicitement S et I_π^0 en supposant $T_p/T_1 = 0$, en prenant pour α , β , λ et μ les valeurs évaluées ci-dessus et pour a et Γ les valeurs expérimentales de LURIO et NOVICK (tableau 1, page 64) (comme nous l'avons déjà souligné, le maximum étant observé sur p^+ , la valeur de a doit être prise positive). Nous avons ensuite inversé les rôles de α et de β ce qui correspond au cas où le pompage est effectué en " σ^- ". Enfin, nous avons calculé la valeur de S en prenant $\alpha = \beta = 2,32$. Cette valeur correspond au cas où le polariseur a été enlevé (compte tenu de son absorption de 78,4% que l'on supprime ainsi). Cette dernière courbe théorique a été comparée au signal de résonance magnétique observé avec pompage en lumière naturelle, polariseur enlevé sur le faisceau de pompage.

Sur les figures 12 et 13, on a représenté les courbes théoriques ainsi obtenues (en traits pleins). Les points sont expérimentaux. Le coefficient de proportionnalité des formules (43) et (44) a été ajusté indépendamment sur ces deux figures, pour la valeur $H_0 = 0$. Cet ajustage indépendant a été rendu nécessaire par le fait que le rapport de l'amplitude S de la résonance magnétique à l'amplitude I_π^0 de la lumière π réémise à saturation, est trouvé inférieur au rapport théorique (en champ nul, on mesure 0,29, la valeur théorique étant 0,35). A cette correction près, l'accord entre la théorie et l'expérience semble excellent, compte tenu en particulier des évaluations assez grossières de α et de β .

Signalons enfin que l'utilisation d'un mélange de lumières σ^+ et σ^- a pour autre conséquence de déplacer les maxima des courbes S^+ et I_π^{0+} par rapport à celui de la courbe p^+ (fig. 6). Le premier se déplace vers les champs élevés, le second vers les champs faibles. Ces points sont parfaitement vérifiés par l'expérience.

.../...

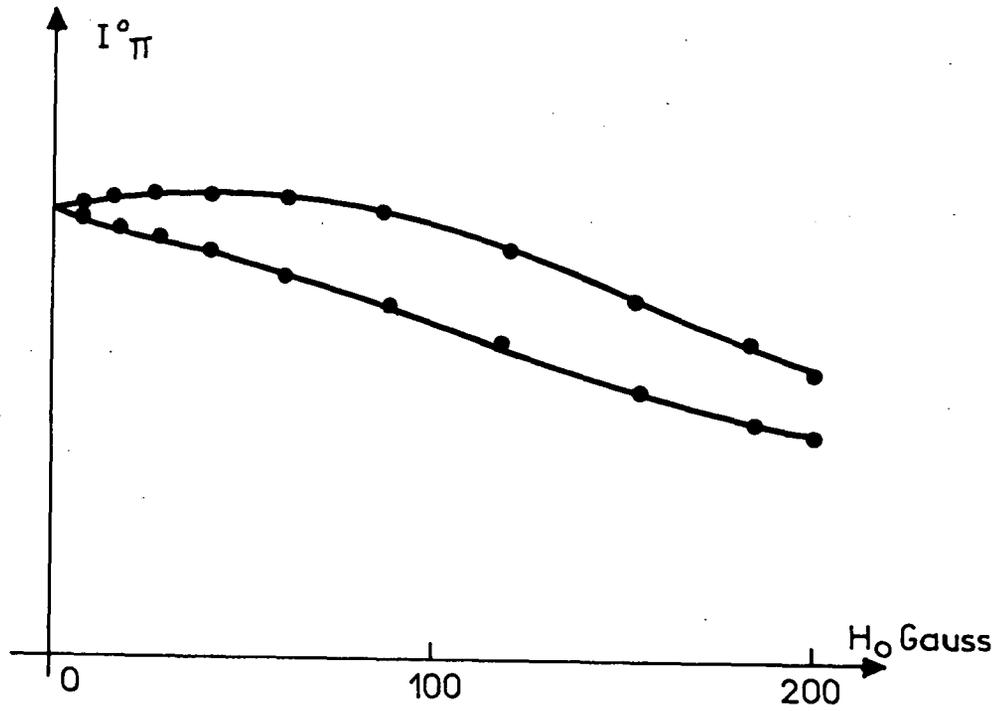


Figure 12

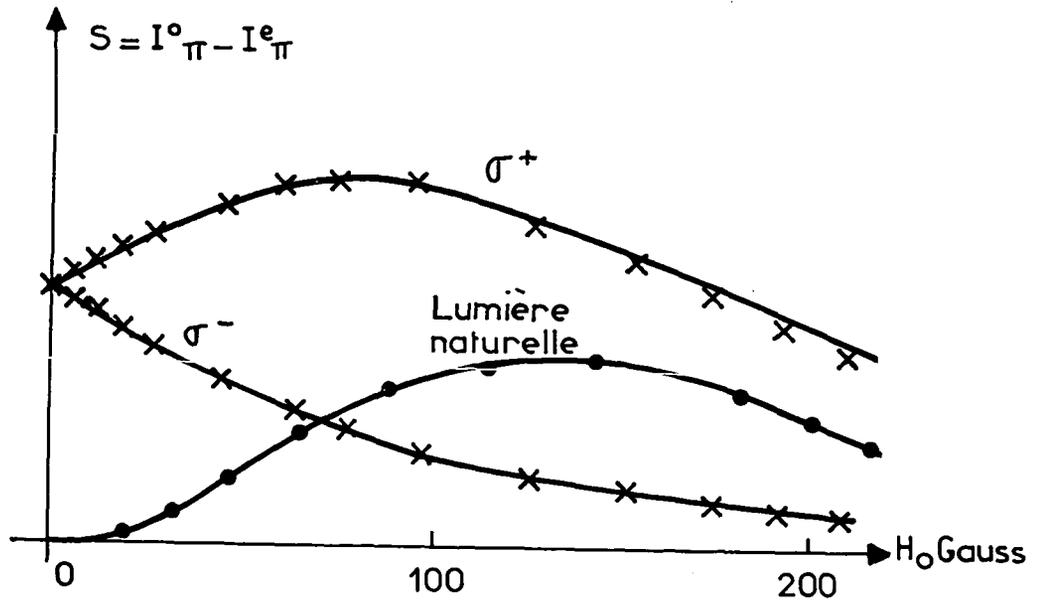


Figure 13

Il est possible d'expliquer la différence entre les valeurs expérimentales et théoriques du rapport S/I_{π}^0 soit en tenant compte de T_1 , peut-être trop hâtivement négligé, soit en supposant que le polariseur de détection est moins bon que ce que nous avons supposé. On peut enfin remarquer que dans le faisceau très ouvert que nous utilisons pour le pompage, il existe une proportion non négligeable de lumière π et qu'en champ H_0 intermédiaire, cette lumière π peut jouer un rôle. Dans ce cas, en effet, elle vide plus rapidement le sous-niveau $|\mu\rangle = | +1/2 \rangle$ au profit du sous-niveau $|\mu\rangle = | -1/2 \rangle$, que l'inverse. Elle peut donc, au même titre que la lumière naturelle, constituer une source de pompage optique. Une telle expérience a d'ailleurs été réalisée à 7000 G, au voisinage du point de croisement de niveaux de ^{199}Hg (niveau 5^3P_1), sur la raie 2537 \AA du mercure (²⁸).

Ceci nous amène à conclure en remarquant que l'expérience a confirmé complètement la théorie. Elle a permis de mettre en évidence la possibilité remarquable de produire l'orientation nucléaire d'un spin 1/2 par pompage en lumière naturelle. Cette possibilité existe également en lumière π et exploite le caractère dissymétrique des probabilités de transition optique en champ intermédiaire.

En prenant une meilleure qualité σ^{\pm} de la polarisation de la lumière pompante, les phénomènes étudiés ici peuvent constituer un moyen de mesure efficace du rapport a/Γ , en particulier lorsque $a \sim \Gamma$. Quoiqu'il en soit, un simple coup d'oeil aux courbes des figures 12 et 13 permet de déterminer sans ambiguïté le signe de a (positif pour ^{111}Cd et ^{113}Cd).

.../...

D/ OBSERVATION DES DEPLACEMENTS OPTIQUES DES RAIES DE RESONANCE MAGNETIQUE

Il s'agit d'observer le déplacement optique $\delta\omega_f$ produit par les transitions réelles (proportionnel à $1/T_p$), donné par la formule (16-b). Comme nous l'avons vu, il s'accompagne d'un élargissement des raies (également proportionnel à $1/T_p$), donné par la formule (16-a).

Comme précédemment, on est obligé ici, pour effectuer une vérification quantitative de ces phénomènes, de tenir compte de la mauvaise qualité de la polarisation de la lumière de pompage.

On a vu que ce déplacement optique a une double origine :

- 1°) Survivance de la "cohérence hertzienne" à l'évolution propre de l'état excité. Elle a été étudiée par COHEN-TANNOUJJI (7) et entraîne un déplacement $\delta\omega_f^1$ qui ne change pas de signe lorsqu'on passe du pompage σ^+ au pompage σ^- . La proportion de lumière parasite σ^- dans la lumière de pompage σ^+ augmente donc le déplacement optique correspondant (il est proportionnel à l'intensité lumineuse totale).
- 2°) Survivance de la "cohérence hyperfine" dans l'état excité. C'est le phénomène qui nous intéresse ici : il entraîne un déplacement $\delta\omega_f^2$ qui change de signe lorsqu'on passe du pompage σ^+ au pompage σ^- .

$$\delta\omega_f = \delta\omega_f^1 + \delta\omega_f^2$$

En champ nul, le déplacement $\delta\omega_f^1$ est nul; par contre, le déplacement lié à la cohérence hyperfine ne l'est pas : il vaut $+\delta\omega_f^2$ pour une illumination σ^+ et $-\delta\omega_f^2$ pour une illumination σ^- .

Si les proportions de σ^+ et de σ^- dans l'intensité lumineuse pompante sont α et β , le déplacement résultant sera donc (en champ très faible)

$$\underline{(\alpha - \beta) \delta\omega_f^2} < \delta\omega_f^2 \quad (\alpha + \beta = 1)$$

D'un autre côté, l'élargissement optique de la raie de résonance reste toujours proportionnel à l'intensité lumineuse totale.

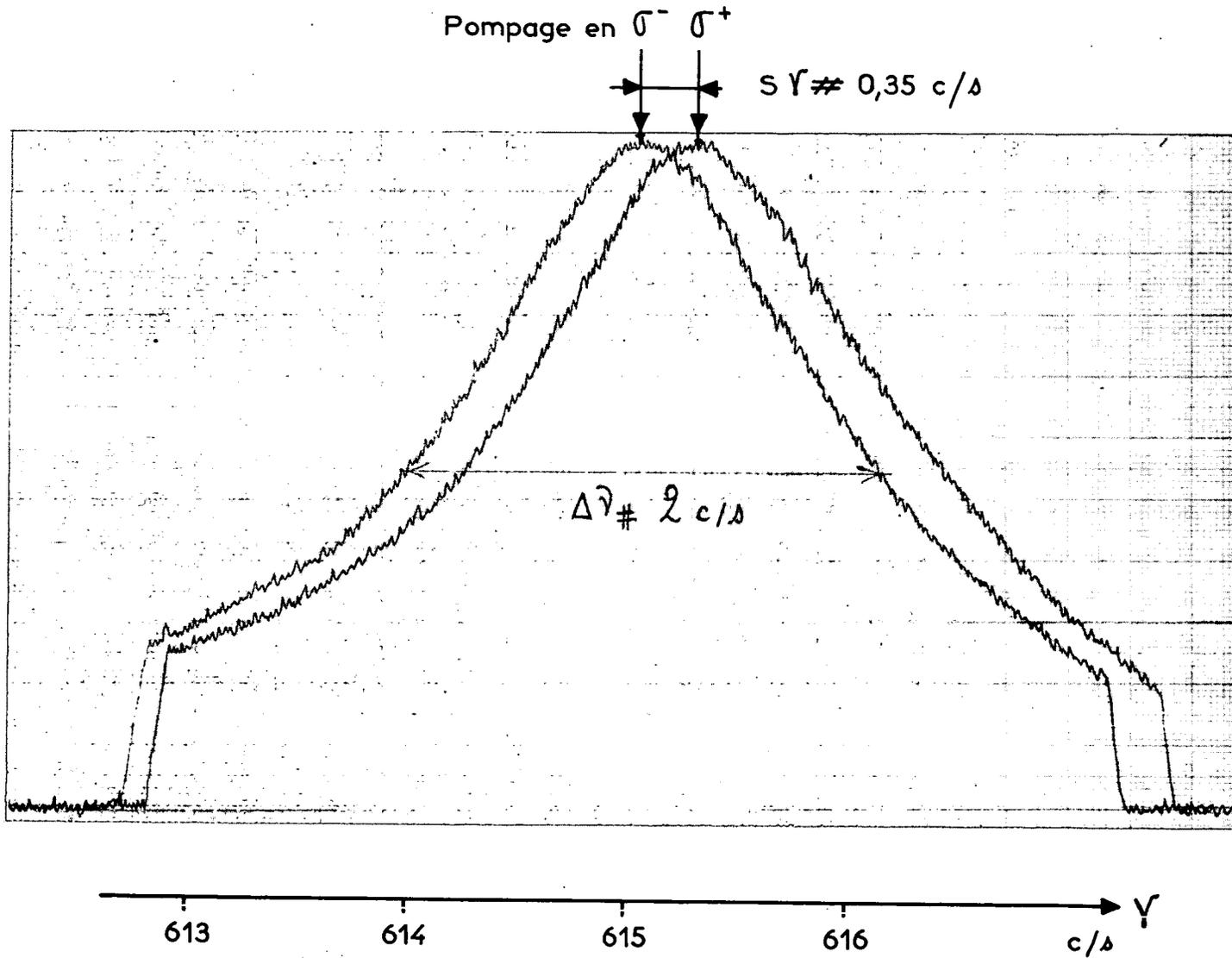
.../...

Ainsi, lorsque $T_p \ll T_2$, c'est-à-dire lorsque l'élargissement optique est très supérieur à la largeur de relaxation des raies, le rapport du déplacement optique à l'élargissement optique, au lieu de tendre vers Γ/ω_{hf} comme le laissaient prévoir les formules (16), tend vers $\frac{(\alpha-\beta)\Gamma}{\omega_{hf}}$. La résolution des raies observées en σ^+ et en σ^- (déplacées de $+(\alpha-\beta)\delta\omega_f^2$ et de $-(\alpha-\beta)\delta\omega_f^2$) sera donc $\frac{2(\alpha-\beta)\Gamma}{\omega_{hf}}$. Si l'on tient compte par ailleurs d'un élargissement thermique $1/T_2$ du même ordre que $1/T_p$ et d'un élargissement de radiofréquence également de l'ordre de $1/T_p$ nécessaire pour observer la raie de résonance, on arrive à une résolution expérimentale des deux raies de l'ordre de $\frac{2}{3}(\alpha-\beta)\frac{\Gamma}{\omega_{hf}}$

qui vaut environ 1/7 dans le cas présent (en prenant $\alpha = 0,822$, $\beta = 0,178$ et $\omega_{hf} \simeq 3\Gamma$). Sur la figure 14, on a tracé, en champ faible, les raies de résonance de ^{111}Cd dans l'état fondamental, pour un pompage en σ^+ et pour un pompage en σ^- . On observe bien un écart entre ces raies de l'ordre de grandeur convenable si on le compare à leurs largeurs. Il est donc facile de vérifier qualitativement l'existence des déplacements optiques entraînés par la conservation de cohérence hyperfine dans l'état excité, de vérifier leur comportement avec la polarisation du faisceau pompant et de vérifier qu'ils ne s'annulent pas en champ nul. On a, en particulier, observé ces déplacements sur une résonance magnétique à fréquence nulle (voir chapitre VI, § B).

Ces comportements sont très différents de ceux des déplacements analogues décrits par COHEN-TANNOUDJI. Ils montrent qu'en champ magnétique nul, les transitions réelles entraînent une précession apparente des spins nucléaires dans l'état fondamental. Elle est due à la précession hyperfine dans l'état excité (où l'atome passe une fraction τ/T_p de son temps) qui est ramenée dans l'état fondamental par l'excitation optique. Le signe de ces déplacements de fréquence donne immé-

.../...



Déplacement de la fréquence de résonance nucléaire de ^{111}Cd du à la conservation de "cohérence hyperfine"

Figure 14

diatement le signe de la constante de structure hyperfine a . Ici encore on trouve que $a > 0$ pour le niveau 5^1P_1 de ^{111}Cd et ^{113}Cd . En effet, ces deux isotopes ayant des moments nucléaires négatifs, ω_f est positif. On trouve que $\delta\omega_f^2$ est positif pour l'excitation σ^+ (la fréquence de résonance est augmentée) et négatif pour l'excitation en σ^- . Ceci entraîne que la structure hyperfine du niveau excité est positive.

Cependant, la vérification quantitative détaillée des formules (16) serait difficile, en particulier à cause de la diminution du déplacement entraîné par la lumière de mauvaise polarisation. Nous nous sommes donc contentés de cette très satisfaisante vérification qualitative qui nous a permis de mettre en évidence le caractère particulier, en accord avec la théorie, des déplacements observés et d'obtenir une vérification complémentaire du signe de a .

E/ PHASE DE LA MODULATION DE LA LUMIERE DE FLUORESCENCE

1°) Rappels théoriques

Lorsqu'on effectue une expérience de résonance magnétique dans l'état fondamental, on crée, dans le référentiel tournant, une composante transversale \vec{M}_\perp de l'aimantation nucléaire. Si l'on revient dans le référentiel du laboratoire, \vec{M}_\perp a deux composantes M_x et M_y (dans le plan xOy perpendiculaire à la direction du champ statique) qui sont modulées à la fréquence ω du champ de radiofréquence. L'amplitude de la résultante de M_x et de M_y est proportionnelle à

$$(46) \quad M_\perp = \omega_1 \frac{\sqrt{\Delta\omega^2 + \frac{1}{\tau_2^2}}}{\Delta\omega^2 + \frac{1}{\tau_2^2} + \omega_1^2 \frac{\tau_1}{\tau_2}}$$

τ_1 et τ_2 sont les temps de relaxation longitudinal et transversal de la vapeur (relaxations thermique et optique incluses).

$\omega_1 = \gamma H_1$ est proportionnel à l'amplitude H_1 du champ de radiofréquence. $\Delta\omega = \omega - \gamma H_0 + \delta\omega_f$ est l'écart à résonance : il tient compte du déplacement de fréquence $\delta\omega_f$ dû à la circulation de cohérence (hertzienne

.../...

et hyperfine) lors des transitions réelles.

Il est clair, d'après ce que nous avons vu précédemment, que $\delta\omega_F$ n'est pas le même pour un pompage en σ^+ et pour un pompage en σ^- .

Si $\omega_1 \sin \omega t$ est la composante du champ tournant produisant la transition dans l'état fondamental, le long de Oy, M_x et M_y ont les expressions suivantes (pour un pompage en σ^+) :

$$(47) \quad \begin{cases} M_x = M_{\perp} \sin (\omega t - \psi) \\ M_y = -M_{\perp} \cos (\omega t - \psi) \end{cases}$$

avec

$$(48) \quad \operatorname{tg} \psi = \Delta\omega \times \tau_2$$

Lorsqu'on traverse la résonance magnétique, $\Delta\omega$ varie de $-\infty$ à $+\infty$ et, lorsque $\omega_1 < \frac{1}{\sqrt{\tau_1\tau_2}}$, M_{\perp} présente un maximum aigu

lorsque $\Delta\omega = 0$. Lorsque $\omega_1 > \frac{1}{\sqrt{\tau_1\tau_2}}$, M_{\perp} présente un minimum pour

$\Delta\omega = 0$, entouré de deux maxima symétriques. Nous nous placerons désormais toujours dans le cas où $\omega_1 < \frac{1}{\sqrt{\tau_1\tau_2}}$. Quant à ψ , il croît de $-\pi/2$ à $+\pi/2$, lorsque $\Delta\omega$ croît de $-\infty$ à $+\infty$.

Ces résultats sont bien connus. Ils ont été analysés en détail par COHEN-TANNOUDJI (7).

Si l'on reprend maintenant la formule (19) donnant $L_F^+(\omega)$, on se souvient qu'elle traduit la présence dans la lumière de fluorescence polarisée en σ^+ /Oy d'une composante modulée à la fréquence ω .

Ceci apparaît clairement si on reprend cette formule (19) en utilisant

les relations $\frac{\sigma_{+-} + \sigma_{-+}}{2} = M_x$ et $\frac{\sigma_{-+} - \sigma_{+-}}{2i} = M_y$.

On obtient alors (pour un pompage en σ^+)

$$(49) \quad L_F^+(\omega) = \left(\Gamma^2 - \frac{3a^2x}{2}\right) M_x + \frac{3a\Gamma}{2} (1+x) M_y$$

où $x = (2g_J\mu_B H_0) / 3a$.

.../...

Cette formule a pour cas particulier (à un facteur près) la formule (37) obtenue en champ très faible ($x = 0$).

Si on reporte les formules (47) dans la formule (49), on obtient

$$(50) \quad \left\{ \begin{array}{l} \text{(a)} \quad L_F^+(\omega) = \frac{M_{\perp}}{\sqrt{(\Gamma^2 - \frac{3a^2x}{2})^2 + \frac{9a^2}{4} \Gamma^2(1+x)^2}} \sin(\omega t - \psi + \phi^+) \\ \text{(b)} \quad \text{tg } \phi^+ = \frac{3a}{2} \Gamma \frac{1+x}{\Gamma^2 - \frac{3a^2x}{2}} \end{array} \right.$$

$L_F^+(\omega)$ est donc bien une fonction sinusoïdale de ω . Sa phase par rapport à la projection sur Oy du champ de radiofréquence tournant est $-\psi + \phi^+$. Lorsqu'on traverse la résonance magnétique, elle varie de $-\pi/2$ à $+\pi/2$ comme ψ ; par ailleurs elle présente un déphasage constant ϕ^+ .

En champ faible ($x = 0$), $\text{tg } \phi^+ = \frac{3a}{2\Gamma}$. Lorsque $a \gg \Gamma$, $\phi^+ = \pi/2$: c'est le déphasage de $\pi/2$ qui existe à résonance ($\psi = 0$) entre \vec{M}_{\perp} et le champ tournant. Lorsque $a \sim \Gamma$, il existe un déphasage supplémentaire $\phi^+ - \frac{\pi}{2}$ dont l'origine est due à la conservation partielle des cohérences hyperfines dans l'état excité. Lorsque $x \neq 0$ (en champ quelconque), il s'y ajoute l'influence de la conservation partielle (et non plus totale comme lorsque $x = 0$) des cohérences Zeeman dans l'état excité.

Si maintenant le pompage optique s'effectue en σ^- , différentes modifications interviennent :

1°) \vec{M} étant au départ créé en sens inverse le long de Oz par le pompage optique, \vec{M}_{\perp} aura une direction opposée à celle du cas précédent, donc, à résonance ($\psi = 0$), et lorsque $a \gg \Gamma$ et $x = 0$, le déphasage restant entre $L_F^-(\omega)$ et la composante sur Oy du champ de radiofréquence tournant sera $\phi^- = -\frac{\pi}{2}$.

.../...

2°) La conservation de la cohérence hyperfine dans l'état excité change de signe par rapport au cas précédent, par conséquent, en champ faible ($x = 0$), à la place de $(\phi^+ - \frac{\pi}{2})$, on doit avoir $-(\phi^+ - \frac{\pi}{2}) = \phi^- + \frac{\pi}{2}$ (puisque $+\frac{\pi}{2}$ est devenu par ailleurs $-\frac{\pi}{2}$), donc en champ faible, on aura $\phi^- = -\phi^+$. Le signe du déphasage dû à la conservation partielle de cohérence hertzienne ne change par contre pas.

3°) Le centre de la raie de résonance n'a plus lieu pour la même valeur de H_0 ($\omega - \gamma H_0 + \delta\omega_f^+ = 0$), mais pour une valeur telle que $\omega - \gamma H_0 + \delta\omega_f^- = 0$. On sait que $\delta\omega_f^+ \neq \delta\omega_f^-$ à cause du déplacement de fréquence dû à la conservation des cohérences hyperfines dans l'état excité (voir § précédent).

Ceci se résume par ce changement de position du centre de la raie de résonance d'une part et par la valeur

$$(51) \quad \text{tg } \phi^- = - \frac{3a}{2} \Gamma \frac{1-x}{\Gamma^2 + \frac{3a}{2}x}$$

d'autre part qui traduit les remarques 1°) et 2°). La formule (50-a) reste alors valable en σ^- à condition de remplacer ϕ^+ par ϕ^- et $\delta\omega_f^+$ par $\delta\omega_f^-$ dans l'expression de M_{\perp} .

Les formules (50) et (51) ne sont que la reprise des formules (21) et (22) où l'on envisage en outre un écart à résonance $\Delta\omega$.

Notre but est de mettre en évidence expérimentalement la différence de phase $\phi^+ - \phi^-$ entre les modulations $L_F^+(\omega)$ et $L_F^-(\omega)$ pour un pompage en σ^+ et en σ^- . Cette différence est essentiellement liée à la valeur du paramètre a/Γ .

En champ faible : si $a \gg \Gamma$, $\phi^+ - \phi^- = \pi$ et si $a \ll \Gamma$, $\phi^+ - \phi^- = 0$. N'étant ni dans le premier cas, ni dans le second, la valeur expérimentale de $\phi^+ - \phi^-$ nous donnera directement une mesure de

$$\frac{2\omega_{hf}}{3\Gamma} = \frac{a}{\Gamma} = \frac{1}{3} (\text{tg } \phi^+ - \text{tg } \phi^-) = \frac{2}{3} \text{tg } \frac{\phi^+ - \phi^-}{2} \quad (\phi^+ = -\phi^-)$$

.../...

2°) Première méthode expérimentale

Si l'on passe sans précaution d'un pompage en σ^+ à un pompage en σ^- , il est clair que $\Delta\omega$ change si H_0 ne change pas (à cause du terme en $\delta\omega_f$); ψ va donc changer et cet effet s'ajoutera au changement de ϕ^+ en ϕ^- . On opère donc de la façon suivante :

La composante $L_F(\omega)$ est extraite du signal photoélectrique recueilli sur Oy (en polarisation σ^+/Oy), par une amplification électronique sélective à la fréquence ω . On observe $L_F(\omega)$ sur l'écran d'un oscilloscope. Le déclenchement du balayage horizontal linéaire de cet oscilloscope est provoqué par le générateur de radiofréquence lui-même. On observe ainsi une sinusoïde qui se déplace horizontalement lorsque sa phase change par rapport au champ de radiofréquence. C'est ce qui se passe lorsqu'on balaye $\Delta\omega$ au voisinage de zéro : ψ varie de $-\pi/2$ à $+\pi/2$, et M_{\perp} (c'est-à-dire l'amplitude de la sinusoïde) passe par un maximum. Sur une photographie posée pendant tout le balayage de la résonance, apparaît l'enveloppe de chacune des arches des sinusoïdes de modulation observées (on peut donc mesurer sur l'axe des abscisses la phase des modulations). La position horizontale des maxima de cette enveloppe représente la phase de $L_F(\omega)$, à résonance (soit lorsque $\Delta\omega^{\pm} = 0$ et M_{\perp} est maximum). Cette phase est ϕ^+ ou ϕ^- suivant que l'on pompe en σ^+ ou σ^- . La figure 15 montre la photographie d'une telle séquence.

Si on répète cette opération successivement pour un pompage en σ^+ et pour un pompage en σ^- et que l'on superpose les deux résultats sur la même photo (fig. 16), l'écart entre les maxima observés en σ^+ et en σ^- est $\phi^- - \phi^+$. L'échelle est donnée par deux maxima successifs en σ^+ , qui sont distants de 2π .

Sur la figure 16, on peut encore une fois s'assurer du signe de a : le maximum correspondant au pompage en σ^+ ayant lieu "avant" (de la gauche vers la droite), celui correspondant au pompage en σ^- , on peut affirmer que a est positif. Par ailleurs, cette photographie ayant

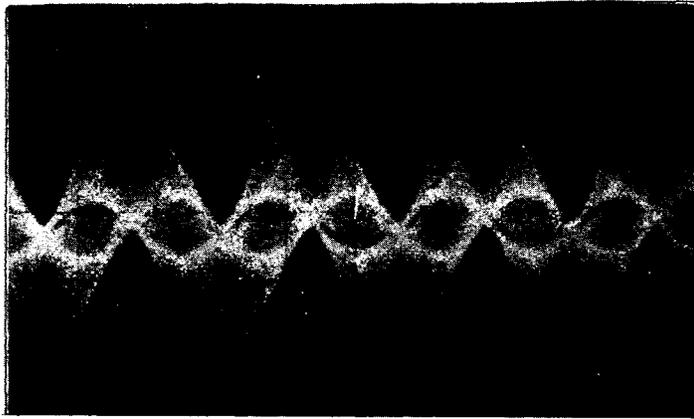


Figure 15

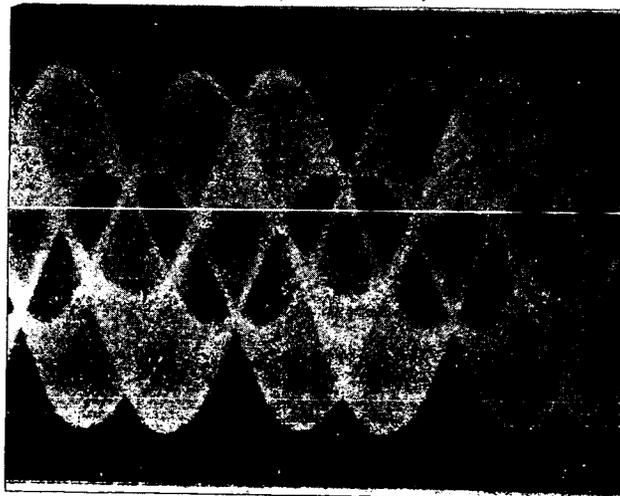
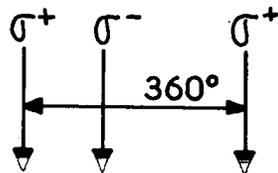


Figure 16

été faite en champ faible ($x \ll 1$), on a $\text{tg}\left(\frac{\phi^+ - \phi^-}{2}\right) = \frac{\omega_{hf}}{\Gamma}$.

On trouve de cette façon $\frac{\omega_{hf}}{\Gamma} = \text{tg}(68,5^\circ \pm 2^\circ) = 2,5 \pm 0,3$. La valeur déduite des mesures de LURIO et NOVICK est $2,79 \pm 0,16$. Ces deux valeurs sont donc en accord, notre mesure étant encore deux fois moins précise que celle de LURIO.

Cependant, notre mesure a été effectuée dans des conditions où la qualité de la polarisation du faisceau de pompage est particulièrement bonne (faisceau lumineux peu ouvert). Ceci est possible dans ce cas parce que l'on observe un angle de phase indépendant de T_p , et qui est mesurable même avec des taux d'orientation nucléaires faibles. Lorsqu'il n'en est pas ainsi (faisceau de pompage mal polarisé) nous avons vérifié théoriquement et expérimentalement que les maxima de la figure 17 tendent à devenir équidistants. Une fois encore, la mauvaise qualité de la polarisation circulaire peut fausser de façon très importante des observations quantitatives.

Signalons enfin qu'en champ H_0 intermédiaire ($x \sim 1$), le déphasage dû à la survivance des cohérences hertziennes dans l'état excité s'ajoute à l'effet précédent. Ce déphasage ne change pas de signe lorsqu'on passe du pompage σ^+ au pompage σ^- . Sur la figure 17, on voit que la somme vectorielle du vecteur représentant la modulation de la lumière de fluorescence lié aux cohérences hertziennes et de celui lié aux cohérences hyperfines (dont la phase change de signe quand on passe de σ^+ à σ^-) change d'amplitude totale lorsqu'on passe de σ^+ à σ^- : Ainsi, l'amplitude du signal modulé $L_F^+(\omega)$ est différente de l'amplitude $L_F^-(\omega)$. Cet effet s'ajoute à celui créé par le fait que l'efficacité même du processus de pompage optique est différente en σ^+ et en σ^- (formules (40)). Ceci entraîne éventuellement une différence d'amplitude de M_{\perp} dans ces deux cas. Enfin les probabilités de transition qui jouent pour le pompage jouent également pour la détection et ceci laisse également prévoir que la lumière modulée a une amplitude moins grande

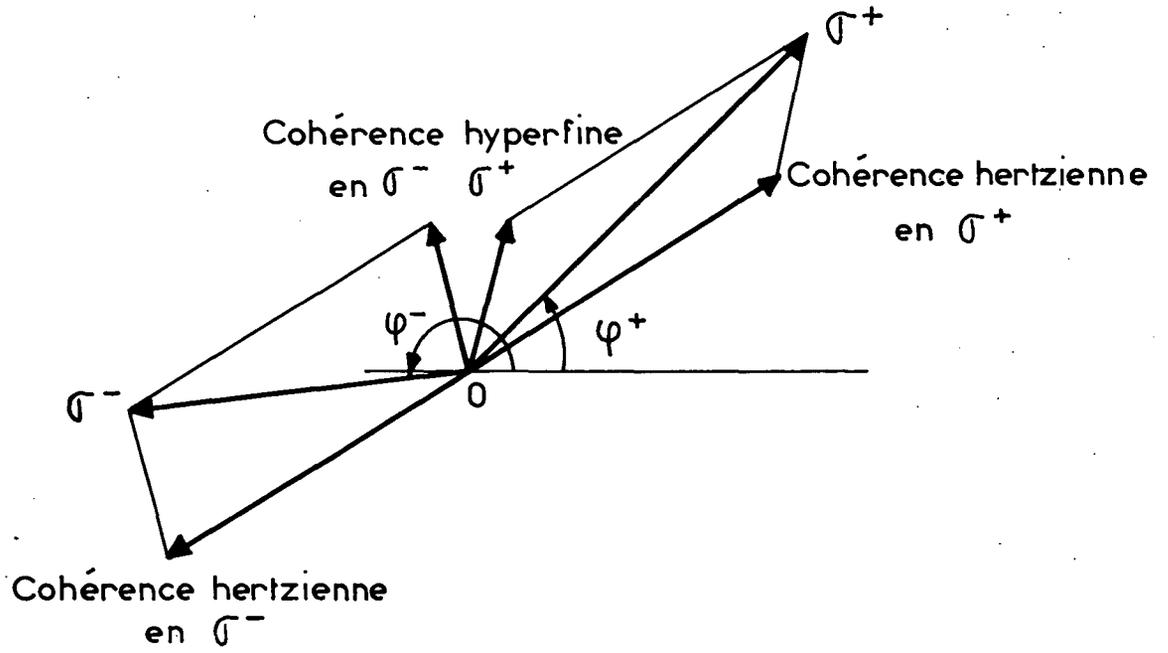


Figure 17

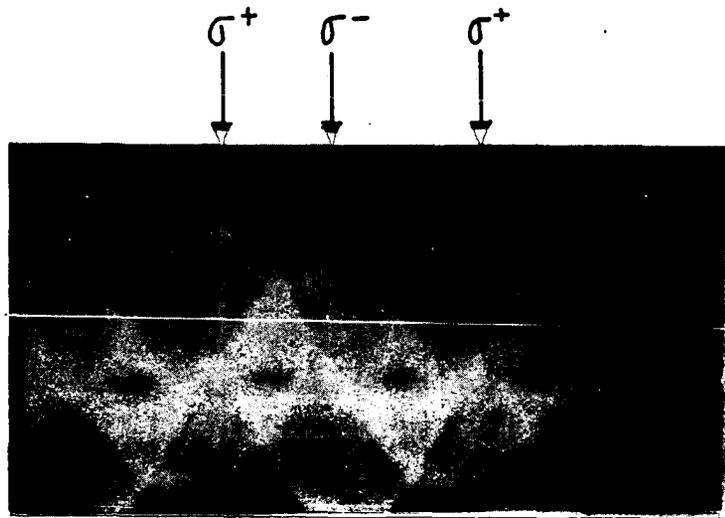


Figure 18

en σ^- qu'en σ^+ . Ces trois effets s'ajoutent. Sur la photo de la figure 18, prise à 20 Gauss, il apparaît très nettement une différence d'amplitude des deux modulations.

En résumé, nous avons obtenu

- . une vérification qualitative satisfaisante des prévisions théoriques;
- . une vérification supplémentaire du signe de a ;
- . une possibilité plus facile dans ce cas de s'affranchir des problèmes de polarisation en diaphragmant le faisceau de pompage.

La mesure de phase décrite ici est un moyen très direct d'accéder à la valeur même du paramètre a/Γ , et ceci de façon indépendante de l'intensité lumineuse pompante.

Ces mesures peuvent s'effectuer de façon un peu différentes comme nous allons le voir maintenant.

3°) Enregistrement direct de la phase de la lumière de fluorescence

On peut, au lieu d'opérer comme précédemment sur un écran d'oscilloscope, enregistrer graphiquement la phase même du signal modulé mesuré au phasemètre. Elle vaut (en σ^+) $\phi^+ - \psi$ (formule (50)) : elle varie avec $\Delta\omega$ comme $\phi^+ - \text{Arctg } \Delta\omega \cdot \tau_2$. La figure 19 est un enregistrement de $\phi^+ - \psi$ (en ordonnée), en fonction de $\Delta\omega$. Une première remarque s'impose : on peut définir la largeur $\Delta\omega_0$ d'une telle courbe (fig. 19) en prenant la distance des deux points symétriques (par rapport au centre de symétrie de cette courbe) et déphasés entre eux de $\pi/2$. Cette largeur est $2/\tau_2$, et ceci quelle que soit la valeur de ω_1 qui n'intervient nulle part ici. La largeur de la courbe donnant la phase de la modulation de la lumière de fluorescence, en fonction de $\Delta\omega$, présente une "largeur" $\Delta\omega_0$ indépendante de l'amplitude H_1 du champ de radiofréquence. $\Delta\omega_0$ permet une mesure directe de τ_2 , temps de relaxation transversal (thermique et optique) de la vapeur.

.../...

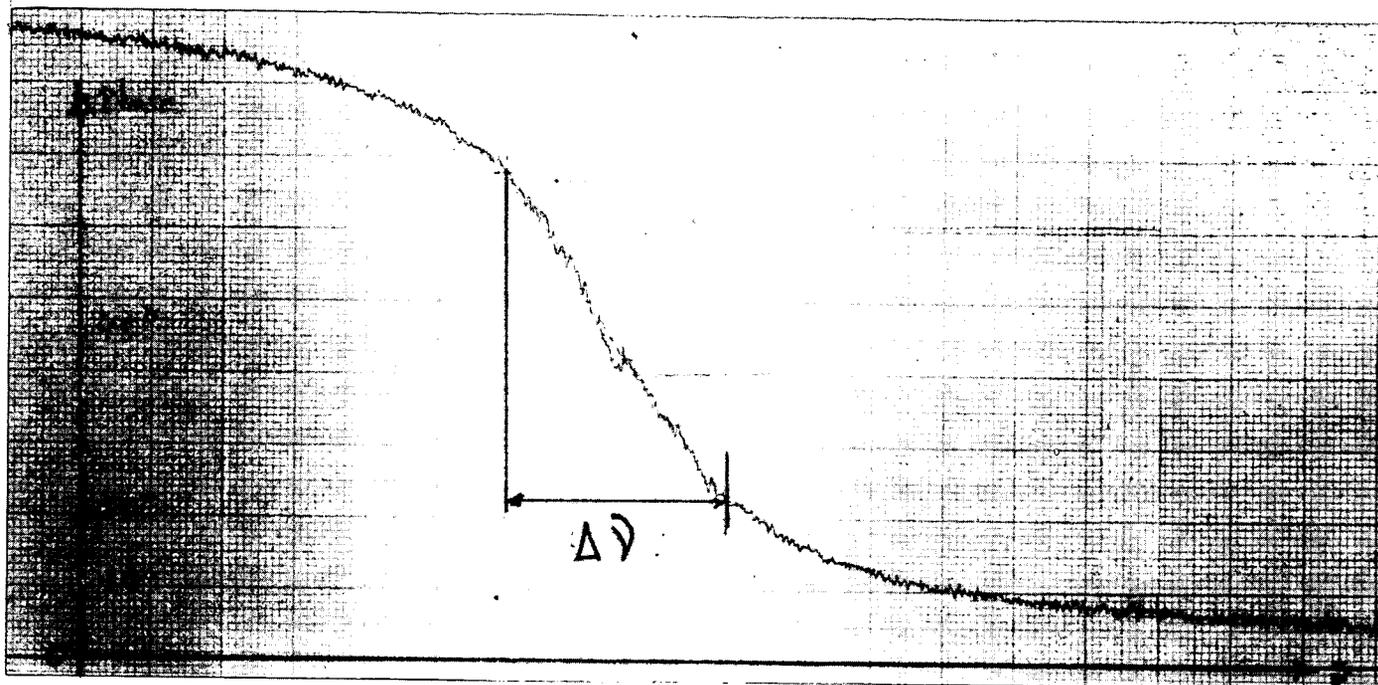


Figure 19

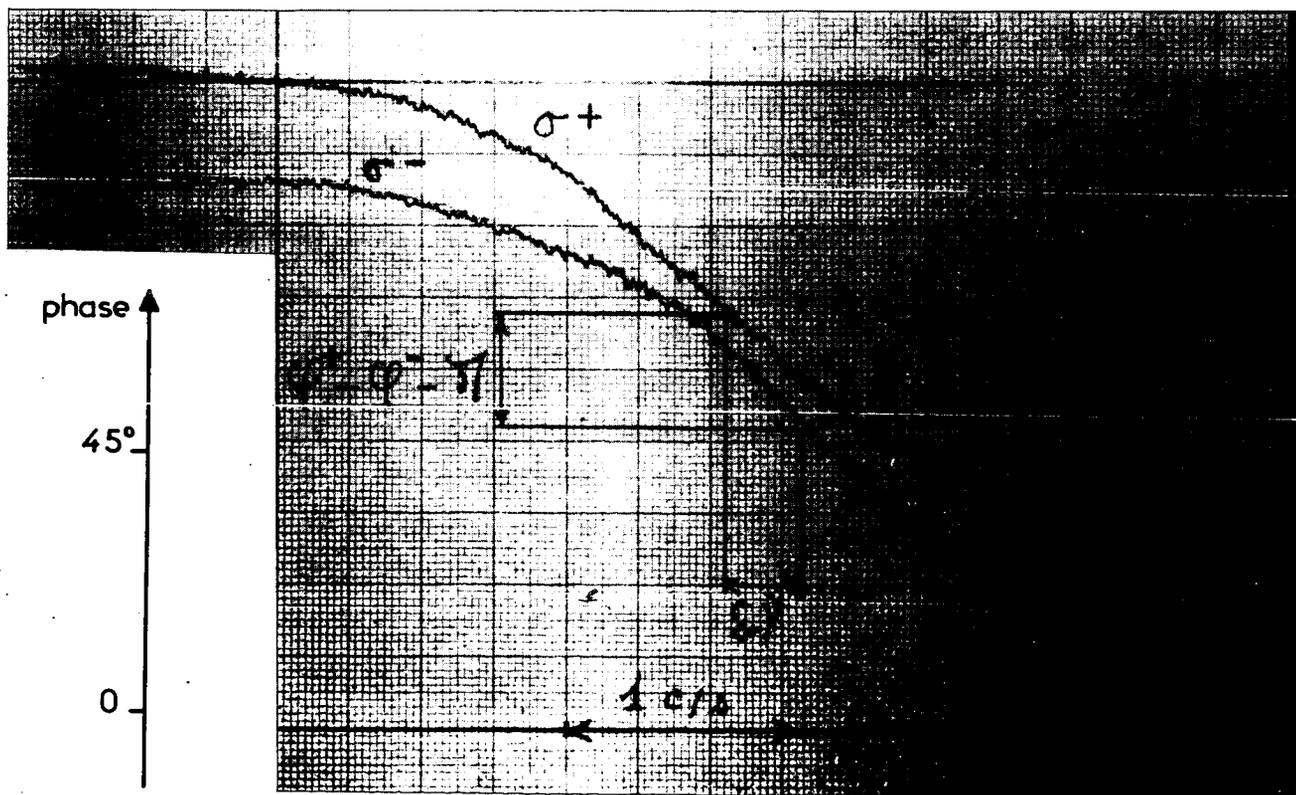


Figure 20

Sur la figure 20, on a porté les courbes de phase observées en pompage σ^+ et en pompage σ^- . Cette dernière a été décalée de π de façon à mettre en évidence l'effet lié à la survivance de la cohérence hyperfine. On constate alors :

. d'une part, que ces deux courbes sont décalées horizontalement : c'est le déplacement optique de fréquence ($\sim 2\delta\omega_f^2$) des résonances magnétiques nucléaires pour un pompage en σ^+ et en σ^- . Cet effet a déjà été commenté plus haut.

. d'autre part, ces courbes sont décalées verticalement : c'est le déphasage $\phi^+ - (\phi^- + \pi)$. Ce déphasage est parfaitement observable et mesurable sur les "ailes" de ces courbes (qui sont peu sensibles à l'influence de $\delta\omega_f^2$).

On peut ainsi, sur un même enregistrement des courbes de phase de L_F , observer le déplacement de fréquence de résonance et le déphasage de la lumière de fluorescence lorsqu'on passe de σ^+ à σ^- . En ce qui concerne la mesure de $\delta\omega_f^+ - \delta\omega_f^-$, cette technique est un peu plus avantageuse que celle décrite précédemment (chap. V, § C), car les courbes de phase sont plus fines (pas d'élargissement en γH_1).

Cette technique a permis de mettre en évidence clairement un effet qui reste pour le moment inexpliqué : les figures 21-a à 21-f montrent les résultats obtenus de façon analogue, lorsqu'on élève progressivement la température du queusot de la cellule de 93°C à 140°C. La tension de vapeur du cadmium passe de $6 \cdot 10^{-8}$ à $5 \cdot 10^{-6}$ mm de mercure (et la densité de $1,6 \cdot 10^9$ à $1,2 \cdot 10^{11}$ atomes par cm^3). Les deux courbes de phase en σ^+ et en σ^- se rapprochent alors progressivement pour finalement se confondre presque parfaitement : $\delta\omega_f^2$ et $\phi^+ - (\phi^- + \pi)$ tendent simultanément vers zéro. On pourrait expliquer ce fait par l'influence de la diffusion multiple cohérente de la raie $2288 \overset{\circ}{\text{A}}$ qui allonge la durée de vie apparente du niveau 5^1P_1 et augmente donc le facteur a/Γ .

.../...

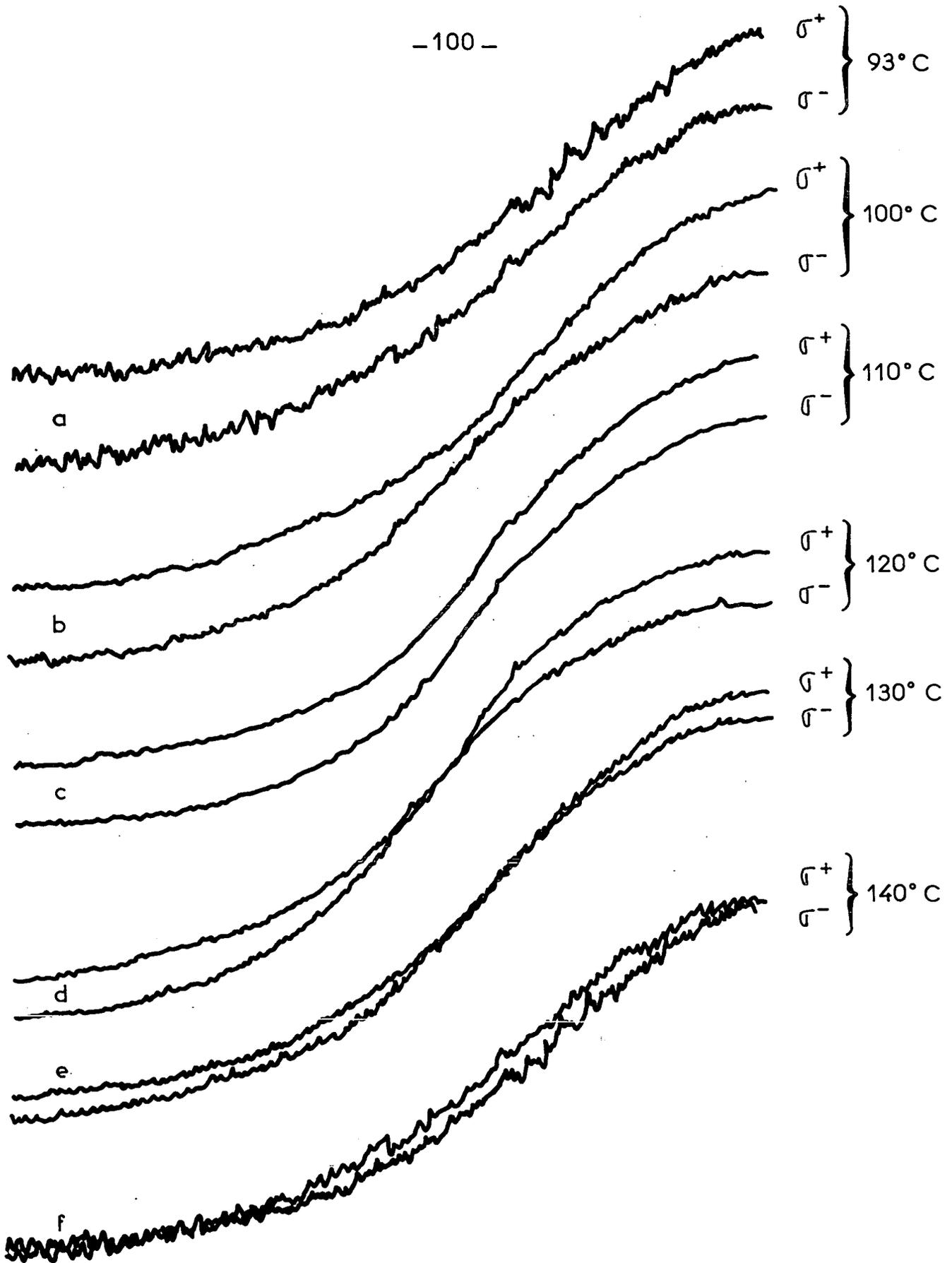


Figure 21

La diffusion multiple cohérente est, en effet, très importante sur cette raie, à ces températures, pour un isotope pair (23). Le calcul montre cependant qu'on ne peut s'attendre, dans notre cas (isotope impair), à des effets aussi importants. Par ailleurs, un allongement de T_p (lié à l'accroissement de la densité d'atomes) ne pourrait expliquer la diminution de $\phi^+ - (\phi^- + \pi)$. L'explication de ce phénomène reste donc obscure.

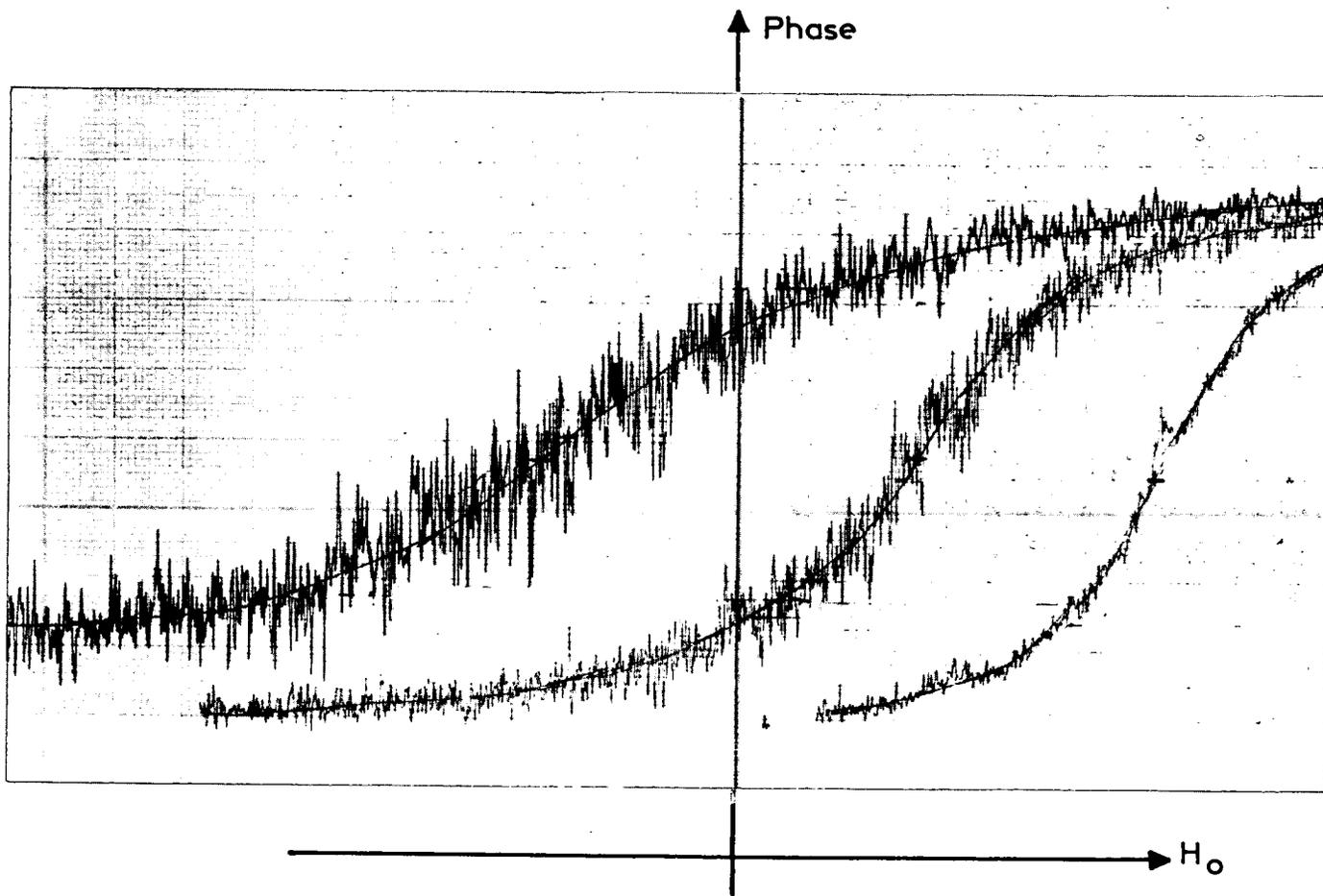
Pour terminer, nous citerons une autre expérience que nous avons effectuée par cette technique : nous avons songé à utiliser le fait que la largeur des courbes $\psi = \text{Arctg } \Delta\omega \cdot \tau_2$ est indépendante de ω_1 pour mettre en évidence l'effet BLOCH-SIEGERT (29) : lorsqu'on fait une expérience de résonance magnétique avec un champ alternatif linéaire, on sait que la composante du champ H_1 , tournant dans le sens opposé à ω_f , ne produit pas de transition, mais déplace la résonance magnétique vers les bas champs, d'une quantité de l'ordre de $(\frac{H_1}{2H_0})^2$ en valeur relative.

Cet effet est généralement masqué par l'élargissement des courbes produit par le champ de radiofréquence H_1 . Sur la figure 22, on montre les résultats observés à la fréquence de 70 c/s ($H_0 \sim 70$ mGauss) pour des champs H_1 croissants : les courbes se déplacent nettement dans le sens prévu, mais cependant s'élargissent tandis que le rapport signal sur bruit diminue.

Ce dernier effet est facile à comprendre; lorsque H_1 est grand, l'amplitude de la modulation dont on mesure la phase tombe à zéro à résonance, c'est-à-dire précisément lorsque sa phase varie rapidement. Il en résulte un abaissement considérable du rapport signal sur bruit dans ce cas.

L'élargissement de radiofréquence que l'on observe sur les courbes de phase reste cependant très inférieur à celui que l'on a sur les courbes de double résonance (environ dix fois plus petit) :

.../...



Effet "Bloch - Siegert" observé sur la phase de la lumière de fluorescence

Figure 22

ceci permet donc de mettre l'effet BLOCH-SIEGERT en évidence, de façon beaucoup plus nette. La cause de l'élargissement résiduel dont il est question ici tient probablement au fait que la relation

$\psi = \text{Arctg } \Delta\omega \cdot \tau_2$ cesse d'être valable lorsque l'intensité du champ alternatif H_1 devient du même ordre de grandeur que le champ statique H_0 . Un calcul théorique exact des formes de courbes correspondantes ne peut être fait que numériquement (ce calcul est en cours actuellement).

F/ REMARQUES

Les observations décrites ci-dessus permettent toutes d'atteindre de façon plus ou moins directe une information relative à la grandeur et au signe de la constante de structure hyperfine a de l'état excité. Il est important de se rendre compte si de telles méthodes sont avantageuses pour mesurer effectivement des structures hyperfines. Quatre méthodes sont possibles :

1°) Observation de la courbe donnant la lumière π réémise en fonction du champ magnétique, pour une excitation σ^+ ou σ^- .

2°) Observation du taux de polarisation nucléaire atteint en fonction du champ magnétique, pour une illumination en σ^+ , σ^- ou sans polariseur, dans la direction du champ magnétique.

3°) Observation du déplacement de la fréquence de résonance magnétique nucléaire dans l'état fondamental pour un pompage en σ^+ et en σ^- .

4°) Observation du déphasage de la lumière de fluorescence modulée à la fréquence du champ de radiofréquence, lors d'une expérience de résonance magnétique dans l'état fondamental, et lorsqu'on passe de l'excitation σ^+ à l'excitation σ^- .

.../...

Nous ferons les commentaires suivants :

1°) Intérêt métrologique de la première méthode : Il s'agit d'un signal d'anticroisement, très large si a est grand. En outre, la mauvaise qualité de la polarisation circulaire de la lumière excitatrice élargit légèrement les courbes, mais surtout déplace de façon importante la position des maxima. Il paraît cependant possible d'améliorer considérablement la polarisation circulaire excitatrice en utilisant des faisceaux moins ouverts ou en prenant des lames $\lambda/4$ au lieu de $33\lambda/4$.

Dans cette dernière hypothèse, on peut remarquer que cette méthode présente la même simplicité expérimentale qu'une expérience de croisements de niveaux (¹⁷); par contre, la largeur d'un "anticroisement" est supérieure à celle d'un croisement ($\sqrt{\Gamma^2 + 2a^2}$ au lieu de Γ) : il est préférable d'utiliser le signal de croisements de niveaux pour déterminer a , lorsque $a \gg \Gamma$. Par contre, la méthode actuelle semble être valable dès que $a \sim \Gamma$. D'autre part, dans l'anticroisement observé ici, seuls deux niveaux de l'état excité interviennent (quel que soit le champ magnétique). Ce n'est pas le cas d'un croisement de niveaux qui apparaît sur l'aile d'une courbe d'effet Hanle dès que $a \sim \Gamma$. Cette remarque peut conduire à préférer une expérience d'anticroisements à une expérience de croisements, lorsque $a \sim \Gamma$ (cependant la situation se complique un peu pour des spins nucléaires supérieurs à $1/2$). Enfin, le fait que le maximum se produise pour une excitation en σ^+ (et non pour une excitation en σ^-) entraîne que $a > 0$. Cette détermination du signe de a est importante, car dans le cas où $I = 1/2$, le seul croisement de niveau observable ne donne aucune indication sur le signe de a (c'est un croisement $\Delta m = 2$).

Il semble donc, en résumé, que cette méthode constitue un complément utile de la méthode des croisements de niveaux pour mesurer des structures hyperfines lorsque $a \sim \Gamma$, et pour mesurer le signe de a (quelle que soit sa valeur).

.../...

2°) L'observation des taux d'orientation nucléaires atteints dans l'état fondamental est une mesure plus difficile que la précédente. Les résultats que l'on peut en tirer sont très analogues. La position du maximum est également déplacée par les défauts de polarisation circulaire, mais cette fois-ci vers les champs élevés. Par ailleurs, les courbes sont affinées par les défauts de la qualité de la polarisation. Une information supplémentaire peut, par ailleurs, être tirée de l'observation de la courbe obtenue en lumière naturelle (où aucun problème de polarisation ne se pose). Cette courbe a pour équation $\frac{(p^+ - p^-)^2}{p^+ + p^-}$.

Elle présente un maximum pour une valeur de H_0 dépendant de la valeur de a/Γ . Ceci permet en principe une mesure de ce paramètre. En pratique, la position de ce maximum est assez floue car la courbe est assez plate pour cette valeur de H_0 .

3°) L'observation du déplacement de fréquence $\delta\omega_f^2$ dépend essentiellement de la largeur des courbes de résonance observées. Dans la mesure où l'efficacité du processus de pompage optique est grande ($T_p \ll T_1$), on peut espérer que la largeur des courbes de résonance sera essentiellement d'origine optique ($T_p \ll T_2$). Analysons alors la situation en champ faible (formule (16) pour $\omega_f = 0$) :

$$(52) \quad \left\{ \begin{array}{l} \delta\omega_f = \frac{1}{T_p} \frac{\Gamma\omega_{hf}}{\Gamma^2 + \omega_{hf}^2} \\ \frac{1}{\tau_p} = \frac{1}{T_p} \frac{\omega_{hf}^2}{\Gamma^2 + \omega_{hf}^2} \end{array} \right.$$

Le rapport du déplacement des courbes de résonance à leur largeur $1/\tau_p$ est, dans ces conditions, $\delta\omega_f \times \tau_p = \frac{\Gamma}{\omega_{hf}}$. On voit que plus la largeur naturelle Γ est grande par rapport à la structure hyperfine ω_{hf} de l'état excité, plus ce rapport est grand

.../...

(c'est-à-dire que le déplacement des raies de résonance sera d'autant mieux résolu dans l'état fondamental). Cette remarque est intéressante : elle indique que l'on peut espérer ainsi observer et mesurer éventuellement des structures hyperfines à très inférieures à la largeur naturelle Γ des niveaux. Il faudrait cependant pour cela produire l'orientation nucléaire par pompage optique, ce qui se révélera très difficile dans ce cas.

4°) Reste enfin la méthode utilisant la phase de la lumière de fluorescence. Son principal intérêt est de permettre une mesure directe de la valeur de ω_{hf}/Γ , et ceci, indépendamment de la valeur de T_p , et sans crainte de l'élargissement des raies. Cette méthode permet la mesure de structures hyperfines très petites, puisque pour $\omega_{hf}/\Gamma = 1/10$ e, on trouve encore un déphasage de 9° soit 18° de différence entre les phases en σ^+ et en σ^- .

Ici, comme dans le cas précédent 3°), on peut imaginer, si l'orientation nucléaire est impossible à obtenir par la raie dont on veut observer la très faible structure hyperfine, de produire l'orientation nucléaire par pompage à l'aide d'une autre raie de résonance. Par exemple, si l'on parvenait à orienter ^{67}Zn par la raie $3076 \overset{\circ}{\text{Å}}$, on pourrait chercher à mettre en évidence les effets liés à l'excitation supplémentaire par la raie de résonance $4^1\text{S}_0 - 4^1\text{P}_1$ à $2138 \overset{\circ}{\text{Å}}$ (pour laquelle $a/\Gamma \ll 1$). De telles expériences seront certainement difficiles, en particulier à cause des tensions de vapeurs très différentes qui sont nécessaires pour avoir une absorption comparable sur les deux raies. Nous avons cependant actuellement un programme de recherche en cours sur ce point (pompage optique de ^{67}Zn).

.../...

CHAPITRE VI

LE POMPAGE OPTIQUE EN CHAMP TRES FAIBLE

Nous décrivons simplement ici deux expériences réalisées dans ce domaine. L'une est la mise en évidence l'effet Hanle dans l'état fondamental 5^1S_0 , l'autre est une expérience de "résonance magnétique à fréquence nulle", mettant en évidence l'influence de la précession hyperfine de l'état excité ramenée dans l'état fondamental par le cycle de pompage optique. Signalons aussi que de nombreuses expériences dans le domaine des champs magnétiques très faibles ont depuis été réalisées par HAROCHE et COHEN-TANNOUDJI (8).

A/ L'EFFET HANLE DANS L'ETAT FONDAMENTAL

Il s'agit d'une expérience de pompage transversal. Cet effet a été observé initialement sur ^{111}Cd pompé par la raie 2288 \AA (30). L'excitation lumineuse (fig. 23) se fait dans la direction de Oz avec la polarisation σ^+ . Le seul champ magnétique statique appliqué, H_x , est transversal : il est parallèle à Ox et balayé lentement autour de la valeur zéro. On observe la lumière réémise dans la direction de Oy. Si l'on analyse cette lumière par un polariseur d'axe parallèle à Oz, on observe un signal proportionnel à $1 - M_z$ (formule (34-d)). D'après la formule (32), ce signal varie avec $H_x = \omega_x / \gamma$ comme une courbe d'absorption. C'est ce que l'on observe sur la photo de la figure 24 (courbe supérieure).

Si l'on analyse la lumière de fluorescence vers +Oy par un analyseur circulaire droit et vers -Oy par un analyseur circulaire gauche et si l'on fait la différence des deux signaux photoélectriques ainsi obtenus, on obtient (formules (37) et (32)) une courbe de dispersion proportionnelle à M_y . C'est ce que montre la courbe inférieure de la figure 24.

.../...

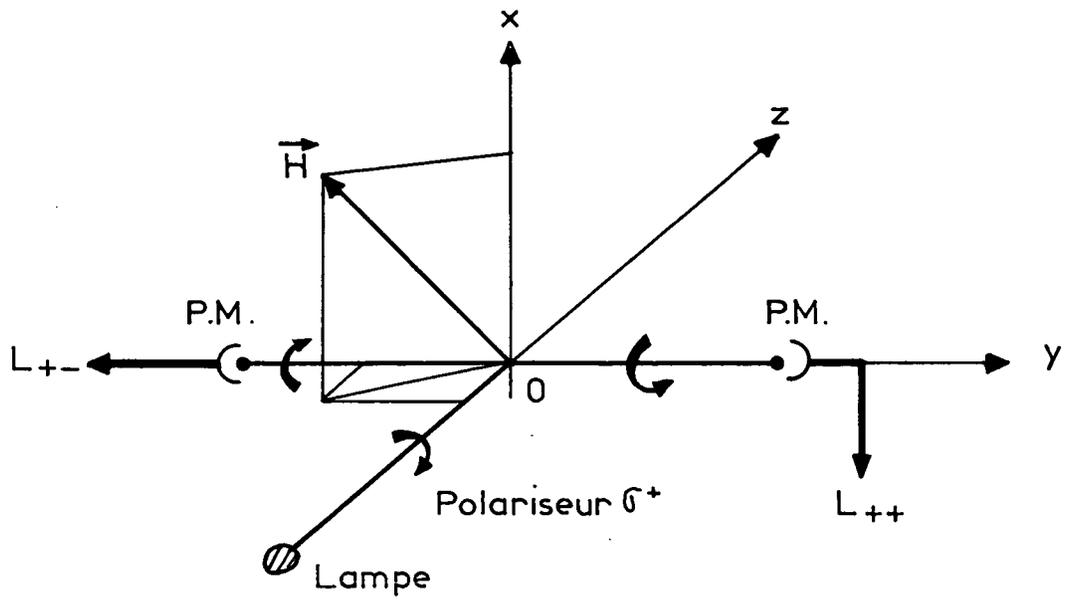


Figure 23

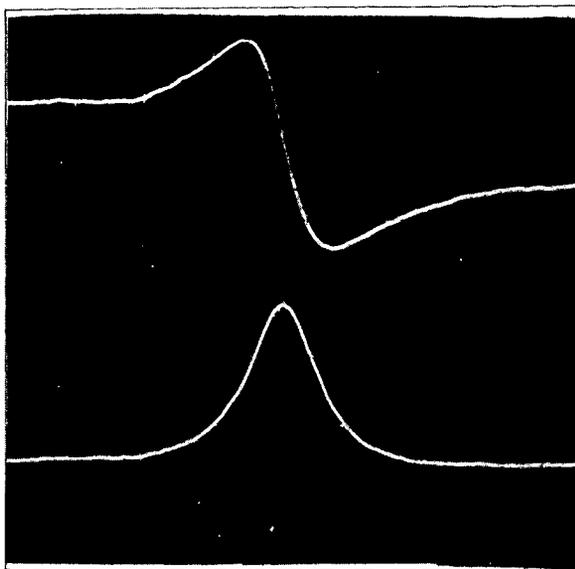


Figure 24

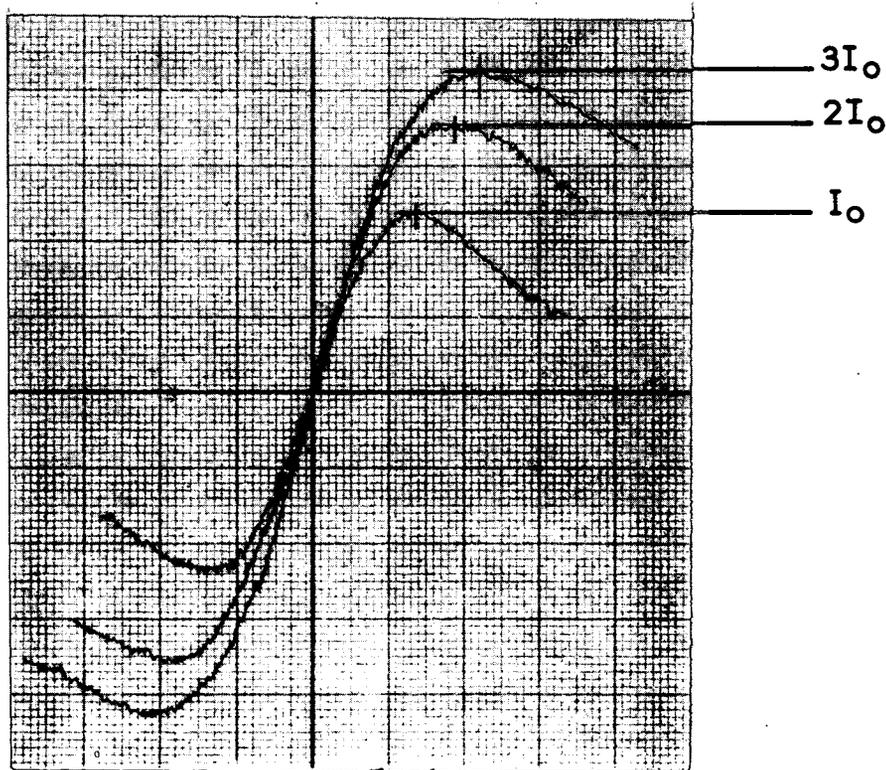


Figure 25

Par ailleurs, nous avons enregistré graphiquement des courbes de dispersion analogues à la courbe inférieure de la figure 24. On observe (fig. 25) que lorsqu'on diminue l'intensité lumineuse de la lampe de pompage, la largeur de ces courbes diminue. Ceci vérifie l'équation donnant $1/\tau_2$ dans le système (28). On a pu vérifier que ces largeurs sont bien égales aux largeurs des courbes de résonance magnétique extrapolées à champ de radiofréquence nul, ou aux largeurs des courbes de phase de la figure 20. Ces différentes largeurs ont toutes le même comportement avec l'intensité lumineuse.

B/ "RESONANCE MAGNETIQUE A FREQUENCE NULLE"

Le pompage s'effectuant toujours de la même manière dans la direction de Oz , on applique maintenant un champ statique fixe H_x le long de Ox et un champ H_z lentement variable autour de la valeur zéro le long de Oz . On est alors dans les conditions d'observation d'une courbe de résonance à fréquence nulle (H_x statique). Comme on le voit facilement sur la figure 23, cette situation est analogue à celle qui existe dans le référentiel tournant lors d'une expérience de résonance magnétique ordinaire (H_x joue ici le rôle dévolu, dans ce cas, à H_1). Si l'on observe la lumière de fluorescence réémise le long de Oy et polarisée parallèlement à Oz (dont l'intensité est toujours proportionnelle à $1 - M_z$), on observe des courbes absolument analogues à des courbes de résonance magnétique. La figure 26 montre un réseau de telles courbes de résonance tracées pour différentes valeurs de H_1 . Ce réseau est identique aux réseaux habituels de résonance magnétique d'un spin $1/2$. La figure 27 montre deux courbes de résonance à fréquence nulle, l'une pour un pompage en σ^+ , l'autre pour un pompage en σ^- . On peut observer que ces deux courbes sont légèrement décalées en abscisse. C'est le déplacement optique de fréquence $\delta\omega_f$, déjà signalé. Il montre que ce n'est pas en champ H_z nul que la vitesse apparente de la préces-

.../...

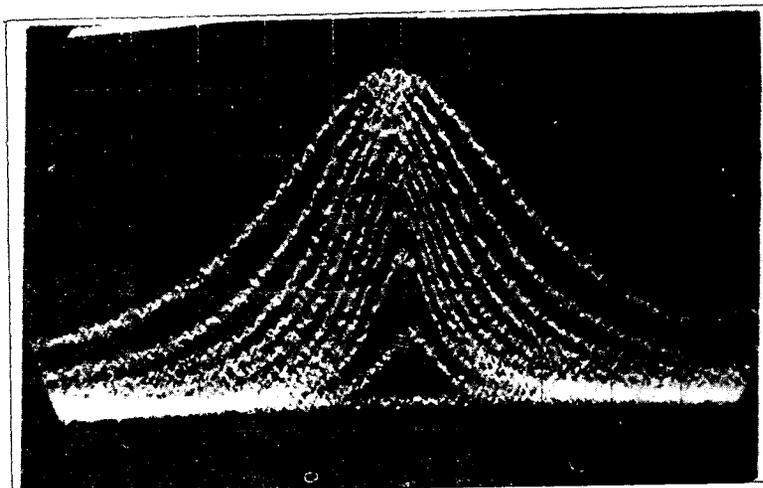


Figure 26

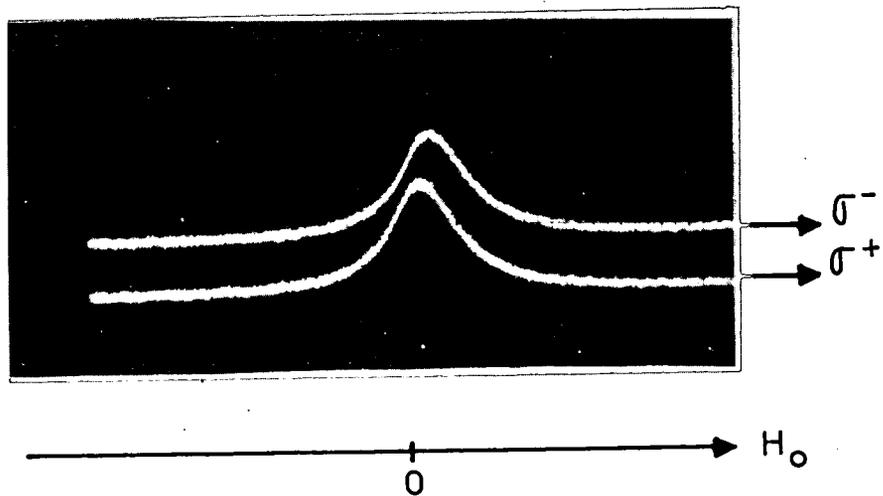


Figure 27

sion de Larmor dans l'état fondamental autour de Oz est nulle : c'est pour un champ $\pm \delta\omega_f/\gamma$ (\pm suivant que l'excitation se fait en σ^+ ou en σ^- par rapport à Oz).

Si (en pompage σ^+/Oy) on observe la différence $L_{++} - L_{+-}$ des signaux photoélectriques obtenus sur l'axe Oy pour deux polarisations circulaires inverses, on obtient au contraire (formule (37)) un signal proportionnel à

$$\frac{\omega_{hf}}{\omega_{hf}^2 + \Gamma^2} \times (\omega_{hf} M_y - \Gamma M_x)$$

Le terme $\frac{\omega_{hf} \Gamma}{\omega_{hf}^2 + \Gamma^2} M_x$ n'est différent de zéro que lorsque $\omega_{hf} \sim \Gamma$.

Comme nous le signalons plus haut, lorsqu'on effectue une expérience de résonance magnétique à la fréquence ω , on a la même situation dans le référentiel tournant et ce terme en M_x est celui qui est responsable de la différence de phase entre la modulation observée sur la lumière de fluorescence et la projection sur Ox du champ tournant. Nous avons vu que ce déphasage ϕ est tel que (en champ faible) $\text{tg } \phi = \omega_{hf}/\Gamma$. Il change de signe lorsqu'on passe de $L_{++} - L_{+-}$ à $L_{-+} - L_{--}$ (formules (34) et (35)), c'est-à-dire d'un pompage en σ^+/Oz à un pompage en σ^-/Oz .

Dans le cas actuel (H_x statique), M_x et M_y sont donnés par les formules (31) : en fonction de $H_z = \omega_z/\gamma$, ce sont respectivement des courbes de dispersion et d'absorption. Lorsque H_x varie, les amplitudes de ces courbes suivent les lois tracées sur la figure 28. En champ H_x fort, l'amplitude de la courbe d'absorption tend vers zéro et celle de la courbe de dispersion vers 1. En champ faible, le rapport de l'amplitude de la courbe de dispersion à celle de la courbe d'absorption tend vers 1. Ceci montre que, si en champ H_x faible, on doit s'attendre à un mélange dans le rapport ω_{hf}/Γ d'une courbe d'absorption et d'une courbe de dispersion ($\omega_{hf}/\Gamma \sim 3$), en champ fort, on doit observer

.../...

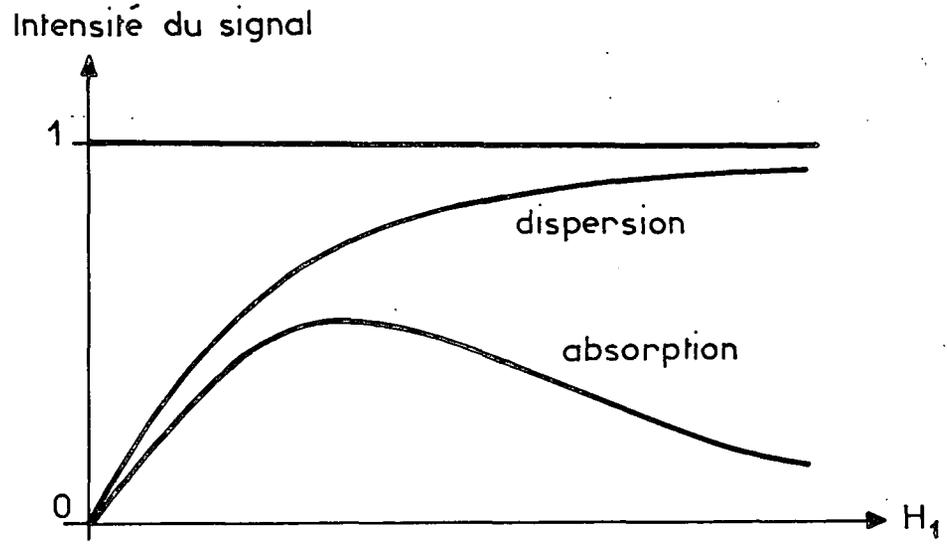


Figure 28

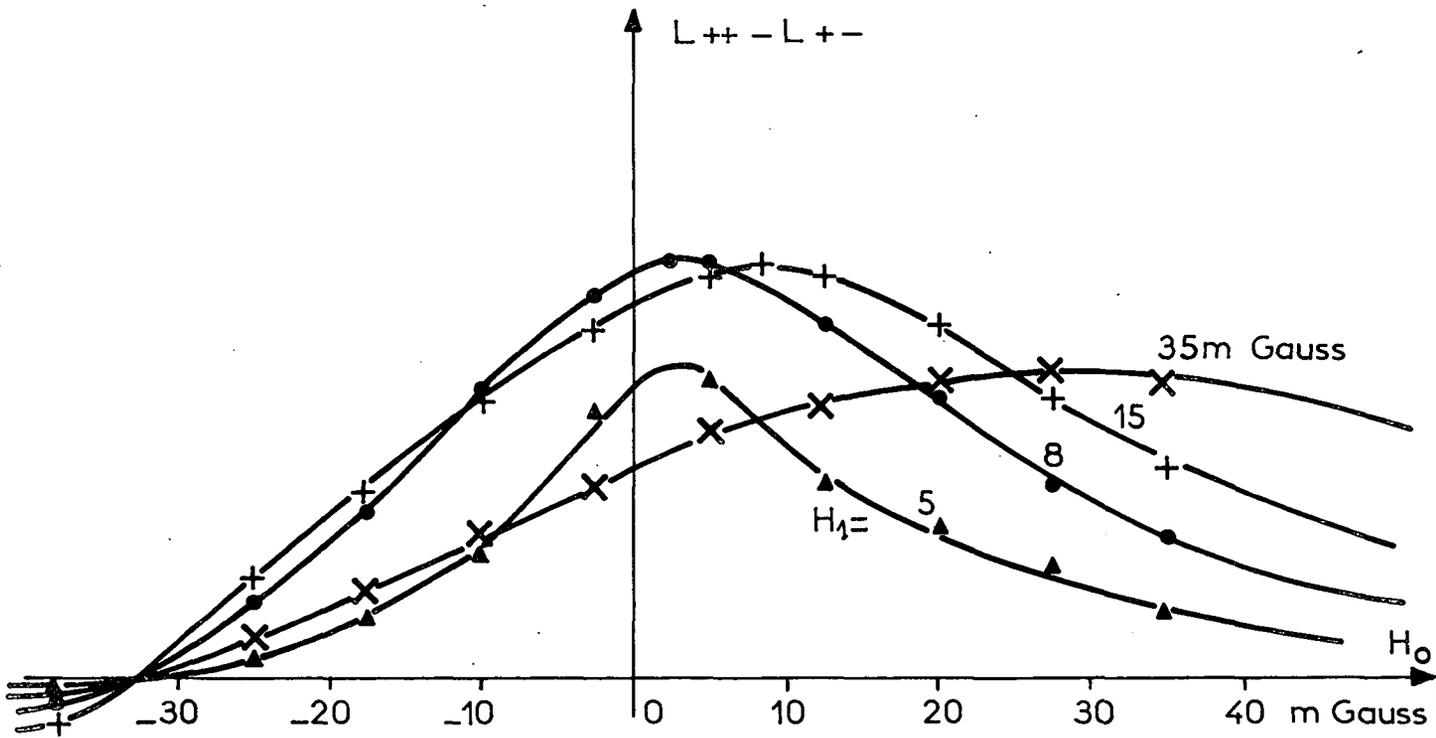


Figure 29

une courbe de dispersion presque pure. Sur la figure 29, on a représenté en traits pleins les courbes théoriques : elles ont un point commun ($L_{++} - L_{+-} = 0$) lorsque H_z a la valeur $H_z = - \frac{\omega_{hf}}{\Gamma} \times \frac{1}{\gamma \cdot \tau_f}$ (γ est le rapport gyromagnétique et τ_f (équation (28)) le temps de relaxation dans l'état fondamental). Les points sont expérimentaux, tout le réseau étant ajusté à l'aide d'un point. On voit nettement, lorsque H_x croît, la prédominance croissante de la courbe de dispersion alors que c'est l'absorption qui domine lorsque H_x est petit.

Il faut remarquer cependant que si, au lieu de choisir Oy comme direction d'observation, on choisissait une direction située obliquement entre Ox et Oy, dans le plan xOy, on observerait, si ω_{hf}/Γ était très grand devant 1, des courbes présentant les mêmes caractères que celles de la figure 29. Il en serait de même s'il existait un champ magnétique le long de Oy tel que le champ résultant dans le plan xOy fasse un angle de l'ordre de 18° (en supposant toujours $\omega_{hf}/\Gamma \gg 1$) avec la direction d'observation. Pour s'assurer que l'effet observé est bien lié à la valeur particulière de $\frac{\omega_{hf}}{\Gamma}$ (~ 3), il a fallu d'une part s'assurer de l'orthogonalité de la direction d'observation et du champ magnétique appliqué (ce qui est facile à quelques degrés près), d'autre part, s'assurer qu'il n'existe pas de champ magnétique parasite le long de Oy. Pour cela, on peut avantageusement observer le renversement adiabatique des spins dans un champ H_z oscillant (effet Dehmelt) ⁽³¹⁾ : lorsque H_x est ramené à zéro, ce signal disparaît, ce qui garantit qu'il n'existe pas de champ le long de Oy avec la précision voulue.

.../...

CHAPITRE VII

L'ORIENTATION NUCLEAIRE DU CADMIUM PAR LA RAIE 3261 Å

Comme le montre le tableau 1 (chap. V, § A), il est possible d'envisager de produire l'orientation nucléaire du cadmium par pompage optique par la raie $5^1S_0 - 5^3P_1$ à 3261 Å. Les avantages et les inconvénients liés à l'utilisation de cette raie sont les suivants : la très longue durée de vie du niveau 5^3P_1 (tableau 1) est tout d'abord très défavorable puisqu'elle entraîne une faible probabilité d'absorption. Par contre, la longueur d'onde plus grande de cette raie entraîne de meilleures conditions de transmission optique et éventuellement de polarisation. Mais l'intérêt essentiel de cette raie est que sa structure hyperfine magnétique pour ^{111}Cd et ^{113}Cd est nettement plus grande que sa largeur Doppler (fig. 8). Outre le fait que les questions d'efficacité du cycle de pompage optique ne se posent plus ici, cette structure hyperfine permet d'envisager tant pour le pompage lui-même que pour la détection optique de l'orientation nucléaire, des techniques de "raie étroite", telles que pompage sur une composante hyperfine donnée, détection de l'orientation par absorption modulée ou effet Faraday modulé, etc.

Nous étudierons d'abord les conditions expérimentales du pompage optique par cette raie, puis, à titre d'application, nous exposerons comment l'usage de ces techniques permet une mesure précise du rapport des moments magnétiques nucléaires de ^{111}Cd et ^{113}Cd .

.../...

A/ CONDITIONS EXPERIMENTALES

Elles sont sensiblement différentes des conditions nécessaires pour produire l'orientation par la raie 2288 Å, et cela pour trois raisons essentielles :

1°) La tension de vapeur nécessaire pour obtenir une absorption raisonnable ($k_0 l \sim 1$) de la raie 3261 Å est très supérieure à celle qu'il faut pour absorber la raie 2288 Å. Les températures de queusot correspondantes sont mises en évidence sur la figure 9 : lorsque la raie 3261 Å est convenablement absorbée, et donne lieu à un signal de fluorescence (vers 200°C), la raie 2288 Å est complètement absorbée à travers quelques fractions de millimètre et ne donne lieu à aucune fluorescence.

2°) Pour la même raison, les lampes utilisées pour la raie 3261 Å doivent être plus chaudes que pour la raie 2288 Å. Dans la pratique, on utilise des lampes plus épaisses (7 mm par exemple) et contaminées par du cadmium métallique. Le disque même de la lampe est placé dans un four et chauffé vers 300°C. On ne craint pas dans ce cas de renversement des raies par autoabsorption, ce qui permet l'utilisation de ces lampes plus épaisses et contaminées. Malgré cela, l'efficacité du pompage optique ($1/T_p$) est inférieure à ce qu'elle est sur la raie 2288 Å. De nouvelles lampes sont à l'étude.

3°) Les méthodes de détection.

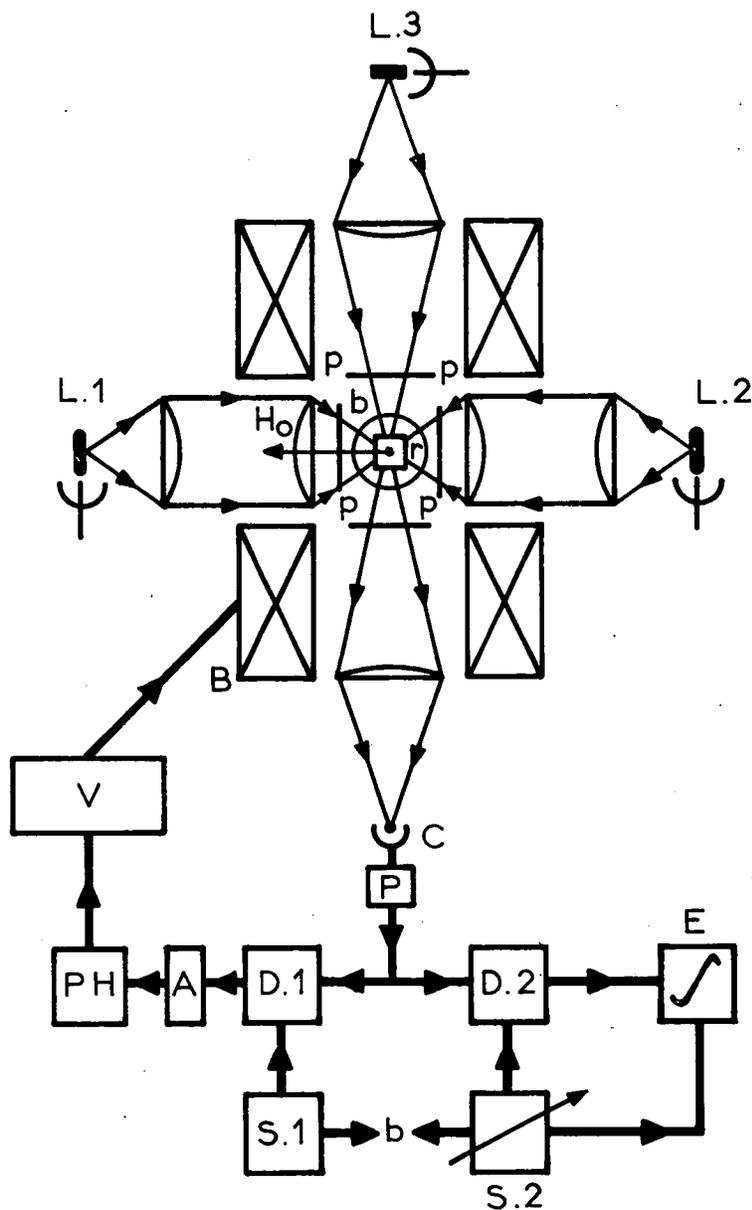
Les méthodes de détection par observation de la polarisation de la lumière de fluorescence sont utilisables, comme sur la raie 2288 Å. La différence essentielle réside dans le fait que la modulation de la lumière de fluorescence n'est plus observable dès que le champ magnétique H_0 atteint environ 1 Gauss : les sous-niveaux Zeeman de l'état excité sont alors distants d'une quantité supérieure à leur

largeur naturelle, ce qui interdit toute conservation de cohérence à très basse fréquence. Nous avons utilisé les techniques de modulation de l'absorption ou de l'effet Faraday ⁽²²⁾ d'un faisceau croisé. Ce second faisceau, à angle droit du faisceau de pompage (fig. 30) est issu d'une lampe remplie de cadmium 116 (d'une pureté de 96%). La raie émise par cette lampe (fig. 8) est distante d'environ une demi-largeur Doppler des raies d'absorption $5^1S_0 - 5^3P_1$, $F = 3/2$ de ^{111}Cd et ^{113}Cd et de trois largeurs Doppler des composantes $F = 1/2$ de ces isotopes. On peut alors, dans une expérience de résonance magnétique, observer une modulation de la lumière transmise à travers la cellule, parce que l'absorption porte sur la seule composante $F = 3/2$: il suffit pour cela de placer sur ce faisceau un polariseur circulaire.

Si, par contre, on place la cellule de résonance entre deux polariseurs linéaires à 45° l'un de l'autre (sur ce faisceau croisé), la modulation observée est celle de l'effet Faraday transversal. Dans ce dernier cas, on améliore le signal (légèrement d'ailleurs), en interposant entre la lampe à ^{116}Cd et la cellule de résonance, un filtre rempli d'une vapeur de ^{111}Cd très pur ($> 99\%$) qui absorbe sur le faisceau croisé les longueurs d'onde émises par la lampe qui coïncident avec la composante $F = 3/2$. Seule subsiste alors dans la lumière reçue par la cellule, la partie de la raie de ^{116}Cd qui est éloignée d'environ une largeur Doppler de la raie d'absorption ($F = 3/2$) de ^{111}Cd : comme on le sait, cette situation est très favorable à l'observation de l'effet Faraday transversal.

Les modulations précédentes sont alors préamplifiées à la sortie même du photomultiplicateur, amplifiées sélectivement et analysées par une détection synchrone dont la "référence" est issue du générateur de radiofréquence lui-même. Suivant la phase de ce signal de référence, on peut extraire la composante de l'aimantation transversale en phase (courbe de dispersion) ou en quadrature (courbe d'absorption)

.../...



Légende

L.1 L.2 : Lampe à ^{111}Cd	P : Préamplificateur
L.3 : Lampe à ^{116}Cd	D.1 D.2 : Détections synchrones
r : Cellule de résonance	S.1 S.2 : Synthetiseurs de fréquence à quartz
p : Polariseurs	E : Enregistreur XY
b : Bobines de radio fréquence	A : Amplificateur
B : Bobines de champ statique	PH : Correcteur de phase et filtre passe_bas
C : Cellule photo électrique	V : Alimentation varian

Figure 30

avec le champ tournant de radiofréquence. Si cette phase n'est pas parfaitement réglée, on obtient un signal qui est la somme d'un terme de dispersion et d'un terme d'absorption :

$$(53) \quad S(\omega, H_0) = A \frac{L \times (\omega - \gamma H_0)}{L^2 + (\omega - \gamma H_0)^2} + B \frac{L^2}{L^2 + (\omega - \gamma H_0)^2}$$

L est la largeur des courbes de résonance.

B/ MESURE DU RAPPORT DES MOMENTS MAGNETIQUES NUCLEAIRES DE ^{111}Cd ET ^{113}Cd (32)

Pour illustrer l'utilisation que l'on peut faire de tels signaux, nous allons décrire ici la mesure du rapport des moments magnétiques nucléaires de ^{111}Cd et ^{113}Cd en phase vapeur.

Ayant rempli une cellule de résonance d'un mélange à parts égales de ^{111}Cd et ^{113}Cd , on opère comme indiqué ci-dessus pour observer les résonances magnétiques nucléaires de ces deux isotopes dans l'état fondamental. Les signaux observés sont donnés par l'expression (53) dans laquelle γ prend la valeur γ_{111} ou γ_{113} . On règle les phases des détecteurs synchrones de façon à rendre B le plus petit possible, aussi bien pour ^{111}Cd que pour ^{113}Cd . Les courbes sont alors très proches de courbes de dispersion pures et on peut utiliser l'une d'elles (celle de ^{111}Cd par exemple) pour asservir H_0 à la valeur pour laquelle $S_{111} = 0$. Cette valeur est telle que $A_{111}(\omega_{111} - \gamma_{111} \cdot H_0) + B_{111} L_{111} = 0$. On balaie alors ω_{113} de façon à tracer le signal $S_{113}(\omega_{113})$, à H_0 constant; on l'enregistre. Il est facile, sur ce signal, de déterminer son centre $\omega_{113} = \gamma_{113} H_0$. On sait, en effet, (fig. 31), que l'ordonnée du signal au centre d'un tel mélange de courbes d'absorption et de dispersion est la somme algébrique des ordonnées de son maximum et de son minimum. On a alors

$$\frac{\gamma_{113}}{\gamma_{111}} = \frac{\omega_{113}}{\omega_{111} + \frac{B_{111}}{A_{111}} L_{111}}$$

.../...

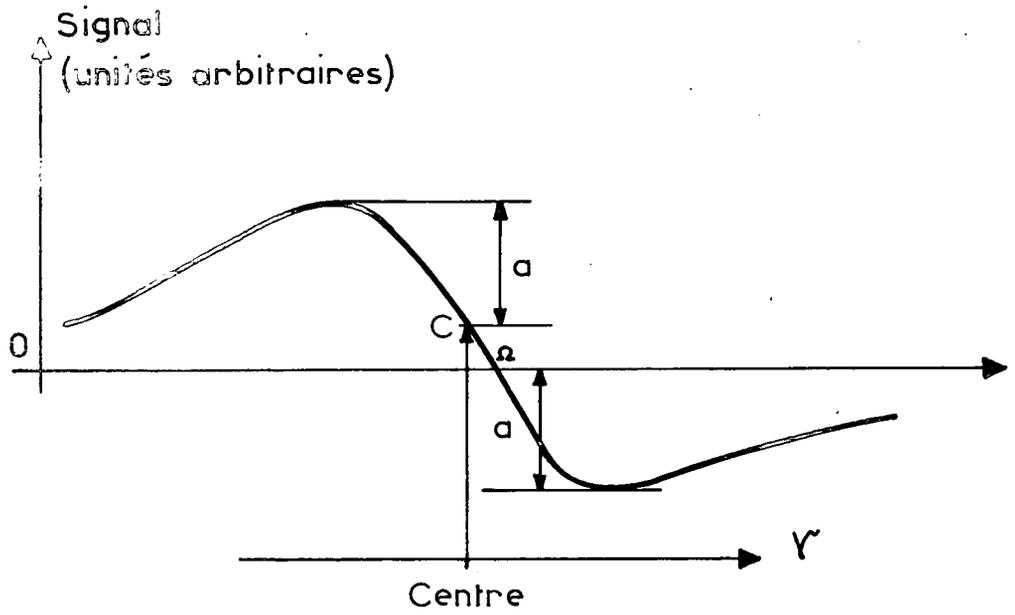
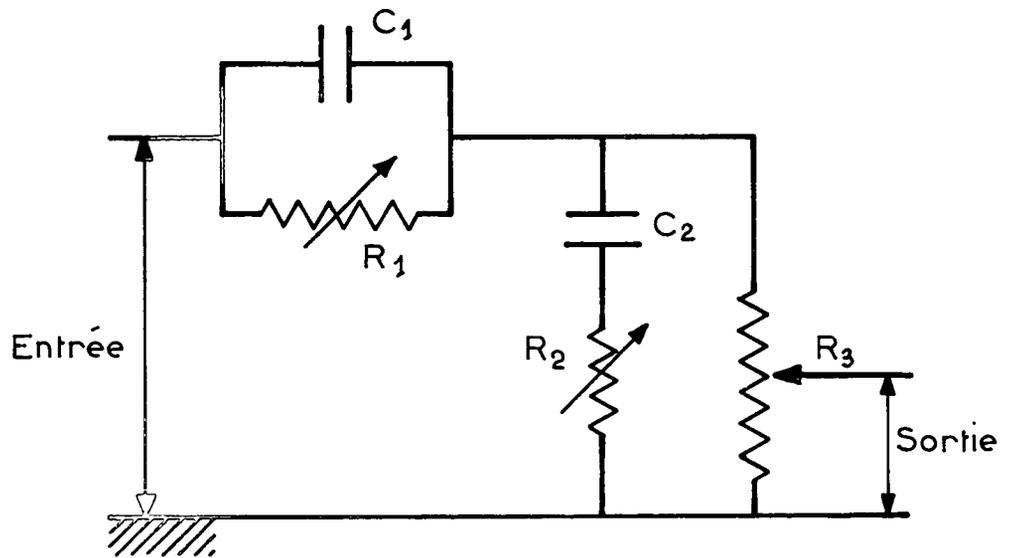


Figure 31



Circuit PH

Figure 32

Il reste à déterminer la valeur de $\frac{B_{111}}{A_{111}} L_{111}$. Pour cela, sans rien toucher au montage optique ni à la détection (c'est-à-dire laissant les coefficients A et B inchangés), dans une opération symétrique de la précédente, on asservit le champ magnétique au zéro de la résonance magnétique de ^{113}Cd , à une fréquence ω'_{113} (très voisine en pratique de ω_{113}). On trace dans ce champ H'_0 la résonance magnétique de ^{111}Cd dans laquelle on détermine le centre $\omega^c_{111} = \gamma_{111} H'_0$ et le zéro $\omega^o_{111} = \gamma_{111} H'_0 - \frac{B_{111}}{A_{111}} L_{111}$. On en tire la valeur $\frac{B_{111}}{A_{111}} L_{111} = \omega^c_{111} - \omega^o_{111}$.

Finalement

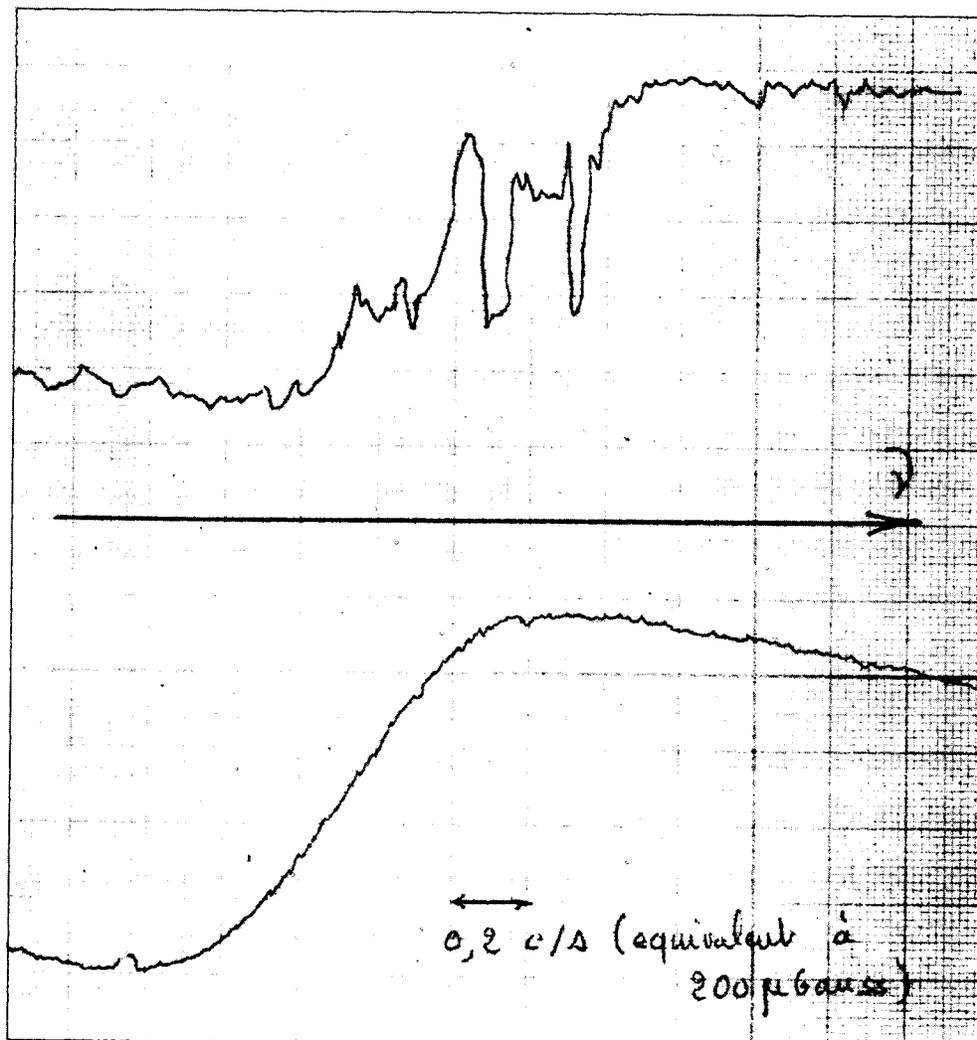
$$(54) \quad \frac{\gamma_{113}}{\gamma_{111}} = \frac{\omega_{113}}{\omega_{111} + \omega^c_{111} - \omega^o_{111}}$$

Cette méthode est réversible et conduit donc à deux déterminations du rapport $\gamma_{113}/\gamma_{111}$ cherché.

La figure 33 représente une résonance de ^{111}Cd à 100 Kc/s, en haut sans asservir H_0 , en bas en asservissant H_0 au zéro de la résonance de ^{113}Cd . Le gain de rapport signal sur bruit est très important. La largeur de ces raies est d'environ 1c/s, point sur lequel nous reviendrons dans le chapitre suivant.

La figure 30 représente le schéma d'ensemble de l'expérience. On remarque sur cette figure, après l'amplificateur continu A, un circuit marqué PH dont le rôle est le suivant : il est clair que si la phase du signal de correction de l'asservissement est correcte à très basse fréquence (il corrige le courant débité par l'alimentation Varian dans un sens tel que la résonance soit recentrée), il n'en est plus de même pour des perturbations magnétiques atteignant quelques cycles par seconde. En effet, dans ce cas, les spins eux-mêmes (dont le temps de relaxation est de l'ordre de la seconde) introduisent un déphasage à de telles fréquences et le signal de correction effectivement appliqué

.../...



Sans
asservissement

avec
asservissement
sur
la résonance
de
 ^{113}Cd

Résonance magnétique de ^{113}Cd

Figure 33

à l'entrée de l'alimentation Varian peut avoir une phase telle qu'il s'ajoute au signal d'erreur magnétique au lieu de s'en retrancher. Dans ce cas, l'ensemble du circuit d'asservissement se met à osciller, ce qui se produit effectivement en pratique à une fréquence de 2 à 3 cycles par seconde. Pour éviter un tel accident, on a introduit le circuit correcteur PH dont le schéma est représenté sur la figure 32. Le potentiomètre R_1 permet de régler le circuit R_1C_1 de façon à "relever" un peu la phase au voisinage de la fréquence d'accrochage. Ceci augmente légèrement la fréquence à laquelle le circuit oscille (jusque vers 5 à 6 c/s). Le potentiomètre R_2 accorde alors le circuit R_2C_2 qui n'est autre qu'un filtre passe-bas destiné à abaisser le gain en dessous de 1 à la fréquence où le circuit a tendance à osciller. On supprime ainsi l'oscillation. Enfin, le potentiomètre R_3 règle le gain de l'ensemble de la boucle d'asservissement.

Ainsi réglée, cette dernière "répond" aux perturbations magnétiques extérieures avec une constante de temps de l'ordre de 0,3 seconde et maintient le champ moyen constant à environ 8 μ Gauss près comme le montre clairement la courbe inférieure de la figure 33. Les standards de fréquence utilisés sont à quartz (synthétiseurs Schlumberger FSl) stables à $5 \cdot 10^{-9}$ par jour. Nous avons effectué plus de 100 mesures à diverses valeurs du champ magnétique (50, 100 et 150 Gauss), pour diverses températures de la cellule de résonance, diverses intensités des lampes, du champ de radiofréquence, diverses polarisations, etc. Aucun déplacement de fréquence affectant la valeur du rapport $\gamma_{1111}/\gamma_{1113}$ n'a pu être observé. Il faut noter que la cellule contenant deux isotopes du même atome, la correction diamagnétique est la même pour les deux et le rapport de leurs fréquences de résonance est bien le rapport de leurs moments magnétiques μ . Nous avons trouvé en définitive :

.../...

$$\frac{\mu_{113}}{\mu_{111}} = 1,0460840 \pm 2 \cdot 10^{-7}$$

en prenant pour erreur deux fois la dispersion des résultats à 150 Gauss. Cette mesure est en accord avec des mesures effectuées par ailleurs (³³). Elle est environ 10 fois plus précise.

Afin de rattacher ces fréquences de résonance à celles des isotopes du mercure et du proton dans le même champ magnétique, une mesure a par la suite été effectuée sur un mélange ¹⁹⁹Hg - ¹¹¹Cd en phase vapeur dans la même cellule de résonance. La technique précédente a pu être utilisée dans ce dernier cas avec le même succès (³⁴).

.../...

CHAPITRE VIII

ETUDE DE LA RELAXATION NUCLEAIRE DE ^{111}Cd ET ^{113}Cd (35)

Les deux isotopes du cadmium étudiés, 111 et 113, ayant un spin nucléaire de 1/2, il était légitime de penser que leurs relaxation seraient très analogues à celles de ^{199}Hg (3). Cependant, alors qu'après quelques jours à la température ordinaire, les cellules à ^{199}Hg (de 4 x 4 x 4 cm) ont des temps de relaxation T_1 de l'ordre de la seconde, nous avons observé pendant longtemps pour ^{111}Cd et ^{113}Cd des valeurs de T_1 de l'ordre de 100 msec. Par contre, dès que nous avons eu la possibilité de chauffer les parois de la cellule de résonance jusque vers 600°C, un allongement très appréciable et irréversible des temps de relaxation T_1 a pu être observé. Après avoir donné un bref aperçu des méthodes expérimentales employées, nous présenterons les résultats obtenus pour les comparer à ceux du mercure 199.

A/ TECHNIQUE DE MESURE DES TEMPS DE RELAXATION

1°) Mesure de T_2

Nous nous sommes peu intéressés à T_2 dans la mesure où notre première préoccupation était d'obtenir une grande efficacité du pompage optique. Cependant, nous avons toujours mesuré l'ordre de grandeur de T_2 , soit par extrapolation des largeurs des courbes de résonance à intensité lumineuse nulle, soit, lorsque cela était possible, par la mesure de la constante de temps d'amortissement de l'aimantation transversale, observée sur l'effet Faraday transversal modulé.

2°) Mesure de T_1

Lorsque T_1 est long, il est avantageux d'observer la relaxation dans le noir, technique mise au point par CAGNAC (3) sur ^{199}Hg .

.../...

La méthode est rapide et donne de bons résultats pour des temps de relaxation de l'ordre de la seconde. Cependant, dans de nombreux cas, nous nous sommes heurtés à des problèmes de rapport signal sur bruit, en particulier pour les constantes de temps courtes (de 100 à 500 msec) pour lesquelles l'efficacité du pompage optique est moins bonne; cela impose l'utilisation de deux faisceaux de pompage de grandes ouvertures angulaires, ce qui rend difficile l'utilisation de la séquence de relaxation dans le noir (il faudrait un parfait synchronisme dans l'obturation des deux faisceaux). Nous avons alors opéré de la façon suivante : les spins nucléaires étant orientés, on leur applique une impulsion de radiofréquence d'intensité et de durée telles qu'ils sont renversés de π . On observe alors une exponentielle de pompage optique environ deux fois plus grande que l'exponentielle de pompage ordinaire (à partir de spins désorientés) et dont la constante de temps est τ_1 telle que $1/\tau_1 = 1/T_1 + 1/T_p$.

En extrapolant les résultats des mesures de τ_1 à intensité lumineuse nulle, on mesure ainsi T_1 . L'intérêt de cette méthode est qu'elle nous a rendu possible une amélioration considérable du rapport signal sur bruit (en particulier aux intensités lumineuses faibles) car elle se prête à l'utilisation d'un analyseur multiéchelles. Rappelons que le principe de cet appareil est le suivant : après une impulsion de déclenchement (la même que celle qui déclenche l'impulsion de radiofréquence), le signal est découpé en 1024 intervalles de temps Δt_i . Pour chaque intervalle de temps, l'intensité moyenne du signal est convertie en un nombre n_i , emmagasiné dans une mémoire portant le numéro i correspondant. On obtient ainsi, mis en mémoire, un fac-similé numérique du signal. Si l'on recommence N fois l'opération en déclanchant N fois l'impulsion de radiofréquence (donc le signal de pompage optique), on somme dans les 1024 canaux de la mémoire les informations numériques

.../...

recueillies au cours de N passages successifs. Le fac-similé numérique obtenu en définitive contient alors N fois le signal intéressant (qui s'ajoute toujours au contenu antérieur des mémoires) mais ne contient que la valeur quadratique moyenne du bruit sur N passages, donc un bruit \sqrt{N} fois plus grand qu'au premier passage. Le gain en rapport signal sur bruit est donc de \sqrt{N} . Il ne reste alors qu'à enregistrer le contenu des mémoires sur un enregistreur XY ou à l'afficher sur l'écran d'un oscilloscope pour mesurer avec une précision très largement accrue la constante de temps cherchée. L'appareil employé est un "Enhancetron" Nuclear Data ND800. La figure 34 représente en a la photographie d'un "signal" photographié directement sur l'écran d'un oscilloscope. Le cas est très défavorable, l'intensité lumineuse étant très faible. En b, le signal extrait du bruit par le "Enhancetron" après 400 passages. La durée du balayage est dans ce cas de 1 seconde, la durée totale de la mesure ayant été de 10 minutes environ.

B/ RESULTATS EXPERIMENTAUX

Les premières mesures ont porté sur des cellules dont les parois et le queusot étaient portés à environ 120°C.

Comme nous l'avons signalé plus haut les temps de relaxation que nous avons observés ainsi sur ^{111}Cd et ^{113}Cd ont été de l'ordre de 100 msec, et ceci pendant des mois, sans constater aucune amélioration sensible. T_1 et T_2 sont alors à peu près égaux et par ailleurs on n'observe aucune variation notable de ces constantes de temps avec le champ magnétique (jusqu'à 200 Gauss environ). Cependant dès les premières mesures, on avait pu observer que T_1 augmentait légèrement lorsque la température des parois de la cellule passait de 120°C à 300°C. Lorsqu'on revenait à 120°, T_1 reprenait sensiblement sa valeur initiale. Nous avons alors construit un four (fig. 11) capable d'élever la tempé-

.../...

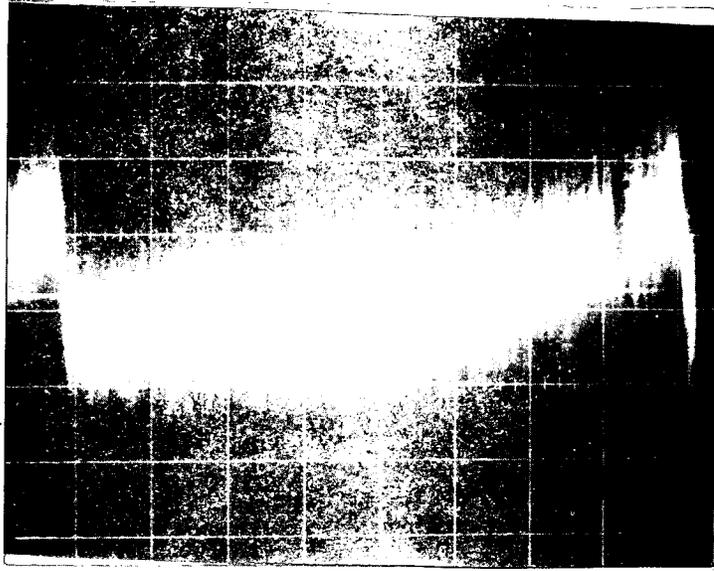


Figure 34 a

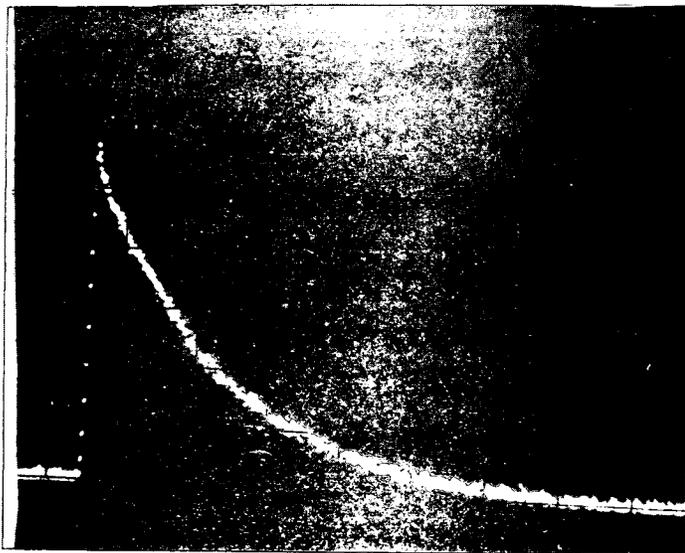


Figure 34 b

rature des parois de la cellule de résonance jusque vers 600°C, le queusot restant à 100°C environ.

Lors d'un premier cycle de chauffage, on a observé que T_1 est passé de 100 msec (à 120°C) à 180 msec à 500°C (partie $\alpha\beta$ de la figure 35), puis est revenu à 140 msec à 120°C, c'est-à-dire à une valeur légèrement plus élevée que la valeur initiale. Nous avons alors procédé à un second chauffage à 500°C. L'allongement de T_1 s'est avéré beaucoup plus important (de 140 msec à 2 sec) et un hystérésis important a encore eu lieu (retour à 500 msec à 120°C). En répétant l'opération plusieurs fois, on a obtenu les courbes $\alpha'\beta'$, $\alpha''\beta''$ et $\alpha'''\beta'''$ de la figure 35. En définitive la situation s'est stabilisée sur une courbe voisine de $\alpha'''\beta'''$, c'est-à-dire $T_1 = 1$ sec à 120°C et 5,5 sec à 500°C.

Cet allongement considérable de T_1 est accompagné d'un allongement comparable de T_2 bien que T_2 n'augmente pas autant que T_1 par élévation de température. On obtient en définitive T_2 de l'ordre de 1 seconde à 120°C. La figure 36 montre des courbes de résonance de ^{111}Cd sur une cellule avant traitement (36-a) et sur une cellule après traitement (36-b). L'intensité du signal a augmenté, le rapport signal sur bruit s'est accru et la largeur de la courbe a diminué.

On a constaté par ailleurs qu'une cellule ainsi traitée et "stabilisée" sur la droite $\alpha'''\beta'''$ garde ses propriétés même si elle est chauffée à 800°C pendant plusieurs jours, le queusot étant maintenu à la température ordinaire. Par contre, une cellule dans sa période "initiale" ($T_1 \sim 100$ msec) garde ses (mauvaises) caractéristiques même si la cellule est portée à 800°C pendant plusieurs jours, le queusot restant à la température ordinaire (c'est-à-dire lorsque les parois sont chauffées en l'absence de vapeur de cadmium). Enfin, le même traitement imposé à diverses cellules a toujours conduit à un allongement irréversible des temps de relaxation et ceci par un facteur

.../...

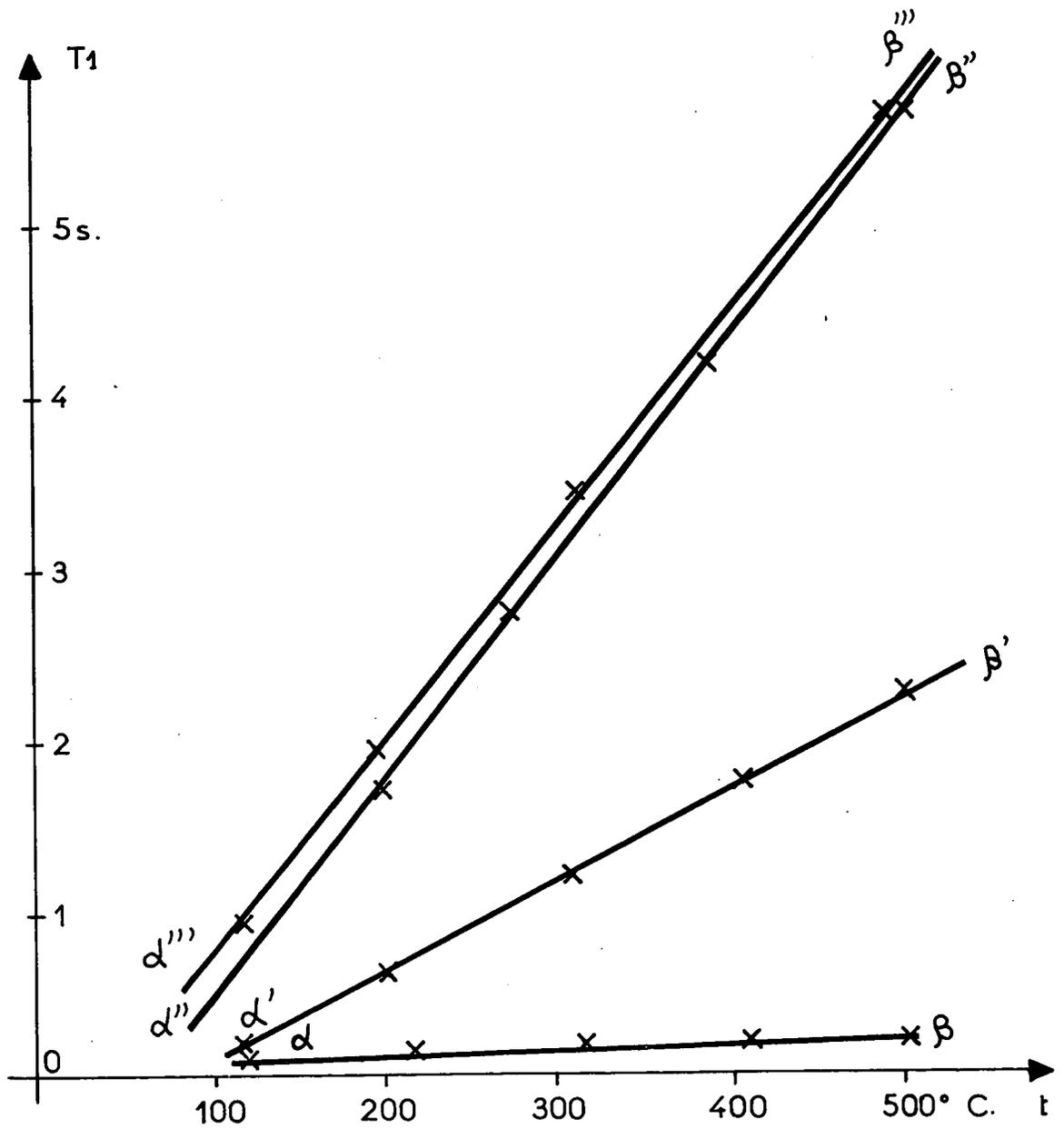


Figure 35

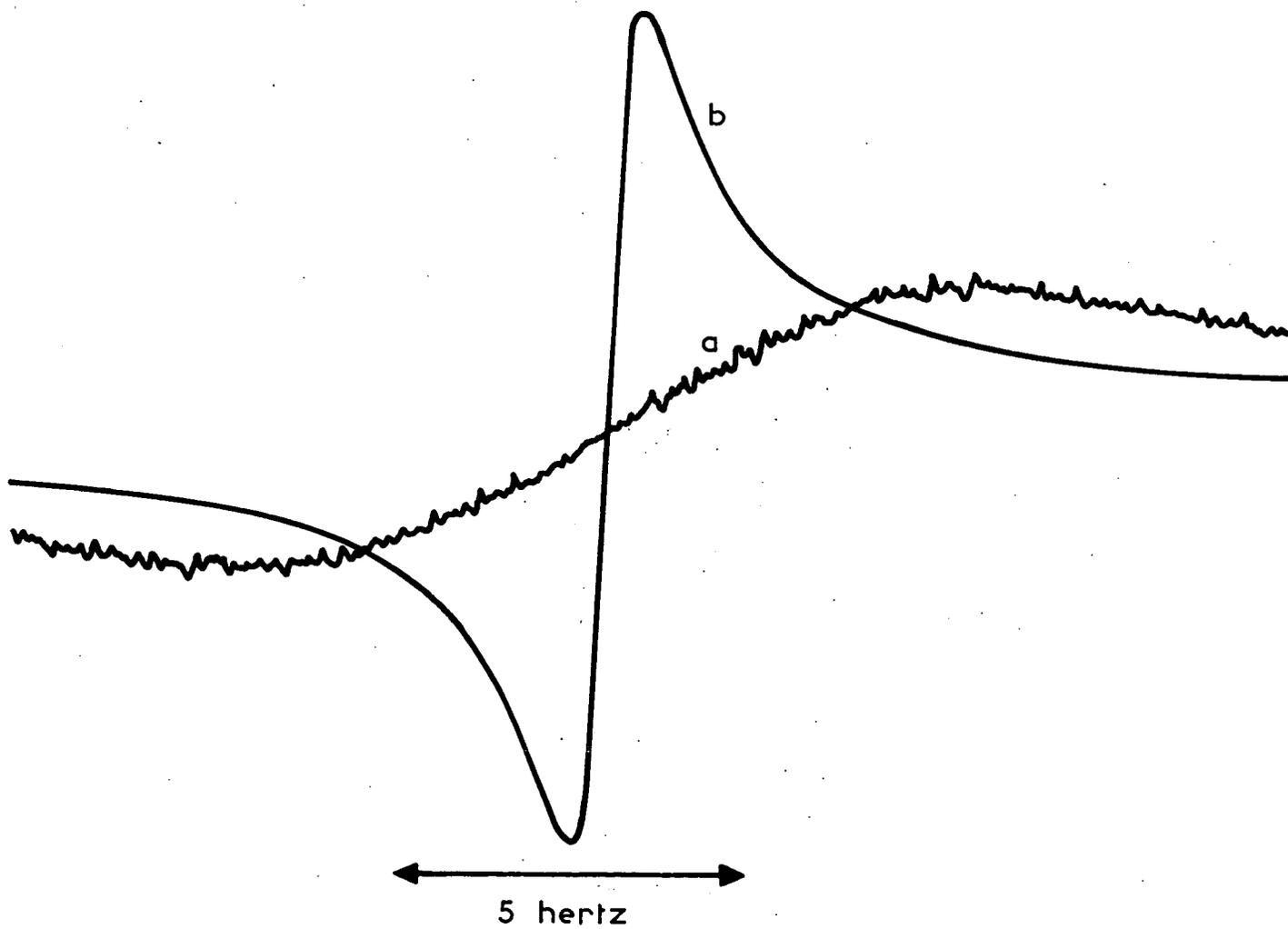


Figure 36

toujours de l'ordre de 10. On peut donc résumer la situation de la façon suivante :

. Une cellule vierge remplie en l'absence de toute contamination par du cadmium métallique et soigneusement dégazée présente des temps de relaxation courts (100 msec).

. Par chauffage des parois en présence de vapeur de cadmium, on peut améliorer considérablement ces temps de relaxation (jusque vers 1 sec).

. Cette amélioration est un processus irréversible.

On peut enfin noter que ce processus varie assez peu suivant que le queusot est à 100°C ou 200°C, que l'illumination se fait à 2288 Å ou à 3261 Å de façon intense ou avec peu de lumière. Enfin, qu'il ne s'agit certainement pas d'un effet de dégazage, des mesures directes

ayant montré que pour des pressions d'azote ou d'hélium de plusieurs millimètres de mercure, T_1 s'allonge par des facteurs inférieurs à 2.

C/ COMPARAISON AVEC LE MERCURE 199

Il est intéressant de comparer les résultats précédents avec ceux obtenus pour la relaxation du mercure 199 ⁽³⁾ ⁽³⁶⁾. On constate en effet un comportement très analogue des cellules dans ce cas : on trouve qu'immédiatement après remplissage, les temps de relaxation T_1 et T_2 sont assez mauvais (100 msec). Ils restent mauvais si le queusot de la cellule est maintenu en permanence dans l'air liquide (c'est-à-dire en l'absence de vapeur de mercure), même si les parois sont à température élevée. Si par contre, on laisse le queusot à la température ordinaire, on constate que pendant plusieurs jours, les temps de relaxation croissent pour se stabiliser à des valeurs pouvant atteindre 15 sec pour T_1 et 5 sec pour T_2 . Il convient donc ici encore de distinguer la période "initiale" analogue à la période initiale de cellules

.../...

à vapeur de cadmium, de la période "stabilisée" qui dans l'un et l'autre cas présente des temps de relaxation beaucoup plus longs. Les processus de formation des cellules sont dans les deux cas quasiment irréversibles (sauf par ouverture des cellules à l'air et nouveau remplissage); seules diffèrent les températures nécessaires à la phase de formation. La température ordinaire suffit pour le mercure qui a alors une forte tension de vapeur; 100° C pour le queusot et 400°C à 500°C pour la cellule sont au contraire nécessaires pour "former" une cellule à cadmium.

Une autre différence existe cependant entre le cas du cadmium 111 ou 113 et celui du mercure 199. Si dans le cas de ^{199}Hg on peut observer une variation de T_1 (allongement) avec la valeur du champ magnétique, ce n'est pas le cas pour le cadmium. Il est probable que ceci est dû à l'existence d'un temps de corrélation ou d'un temps de séjour sur les parois, plus court pour le cadmium que pour le mercure. Cependant, l'origine de la relaxation de ^{111}Cd et ^{113}Cd dans des cellules "stabilisées" n'est pas encore élucidée à l'heure actuelle (pas plus, d'ailleurs, que celle de ^{199}Hg).

D/ POSSIBILITES D'ORIENTATION NUCLEAIRE DE ^{67}Zn

Après notre échec initial pour obtenir l'orientation nucléaire de ^{67}Zn , nous avons repris à plusieurs reprises des tentatives d'orientation nucléaire de cet isotope, par pompage par la raie 3076 \AA ($4^1\text{S}_0 - 4^1\text{P}_1$), pour laquelle $a \gg \Gamma$. La longue durée de vie du niveau 4^1P_1 ($3 \cdot 10^{-5}$ sec) (9) exige des sources lumineuses très intenses et ceci d'autant plus que ^{67}Zn possède un spin nucléaire élevé (5/2), et probablement donc des temps de relaxation courts. Nous pensons actuellement qu'une nouvelle tentative n'est pas totalement vaine si les améliorations suivantes sont adoptées :

.../...

. Par un traitement thermique similaire à celui résumé sur la figure 35, nous espérons améliorer la cellule de résonance jusqu'à obtenir, à des températures élevées, des temps de relaxation raisonnables (de l'ordre de 1 seconde).

. Par l'emploi de nouvelles lampes plus épaisses (peut-être cylindriques jusqu'à 10 cm d'épaisseur, excitées par des solénoïdes à plus basse fréquence (25 Mc/s), nous pensons obtenir des flux lumineux beaucoup plus intenses.

. Par l'utilisation d'un analyseur multiéchelle, nous pourrions peut-être extraire un signal très faible du bruit de fond.

. Enfin, par l'utilisation de lames $\lambda/4$ de bonne qualité, on peut espérer produire une orientation de ^{67}Zn (et non pas un alignement comme on a cherché à l'obtenir jusqu'ici sans polariseur), ce qui laisserait espérer des signaux plus importants.

.../...

CONCLUSION

Nous avons étendu aux isotopes impairs stables du cadmium la méthode d'orientation nucléaire par pompage optique. Une telle orientation a pu être observée par pompage par la "vraie" raie de résonance à 2288 Å et par la raie d'intercombinaison à 3261 Å.

En ce qui concerne la raie 2288 Å, on a pu établir la théorie générale du cycle d'orientation nucléaire par pompage optique lorsque la constante de structure hyperfine a de l'état excité est du même ordre de grandeur que la largeur naturelle Γ de ce niveau, et cela pour toutes les valeurs du champ magnétique. Cette théorie prévoit de nombreuses particularités du cycle de pompage liées à la survivance des cohérences hyperfines dans l'état excité, et au découplage de \vec{I} et \vec{J} (dans l'état excité) par le champ magnétique. Citons parmi elles :

- la différence d'efficacité des cycles de pompage optique en σ^+ et en σ^- en champ intermédiaire, et la possibilité qui en résulte d'obtenir une orientation nucléaire par pompage en lumière naturelle;

- un déplacement lumineux de la fréquence de résonance magnétique dans l'état fondamental (lié aux transitions réelles), qui possède des caractéristiques très différentes de celles des déplacements lumineux observés jusqu'ici;

- un déphasage de la modulation de la lumière de fluorescence qui change de signe lorsqu'on passe en champ nul d'un pompage en σ^+ à un pompage en σ^- et qui permet d'atteindre directement la valeur du paramètre a/Γ , etc.

Nous avons réussi à mettre en évidence la plupart des effets prévus par la théorie (notamment ceux que nous citons ci-dessus),

.../...

certaines ayant pu être vérifiées quantitativement (efficacité du pompage optique en champ intermédiaire), d'autres ayant seulement donné lieu à des vérifications qualitatives (déplacement de fréquence lié à la conservation de cohérence hyperfine).

Ceci nous a permis de remesurer les structures hyperfines de ^{111}Cd et ^{113}Cd dans l'état 5^1P_1 et de déterminer leur signe sans ambiguïté. Nous avons par ailleurs proposé de nouvelles méthodes permettant la mesure de structures hyperfines très petites, et de leurs signes.

En ce qui concerne la raie 3261 Å (qui ne produit pas les particularités précédentes puisque pour elle $a \gg \Gamma$), on l'a utilisée pour mesurer avec précision le rapport des moments magnétiques nucléaires μ_{111}/μ_{113} .

Nous avons enfin observé et interprété l'effet Hanle dans l'état fondamental et ébauché une étude de la relaxation de ^{111}Cd et ^{113}Cd sur les parois de silice de la cellule de résonance.

Le travail précédent a permis d'approfondir le mécanisme de la production d'une orientation nucléaire par pompage optique :

Une transition dipolaire électrique ne peut agir directement sur l'orientation du spin nucléaire \vec{I} . Elle oriente par contre le spin électronique \vec{J} et ce dernier transmet son orientation à \vec{I} par l'intermédiaire de l'interaction hyperfine $a \vec{I} \cdot \vec{J}$; lorsque $a \ll \Gamma$, ce dernier processus n'a pas le temps de se produire et l'efficacité du pompage est faible.

Un point important de cette analyse est le suivant : la largeur Δ de la raie excitatrice étant grande devant la structure hyperfine de l'état excité, l'absorption d'un photon peut être considérée comme un processus instantané devant le couplage hyperfin. Le spin nucléaire \vec{I} n'est donc pas affecté par un tel processus et ce n'est que par la suite, pendant le séjour de l'atome dans l'état excité, que

.../...

l'orientation produite sur \vec{J} peut se transmettre à \vec{I} . Une telle situation n'est pas unique et se retrouve en particulier pour de nombreux phénomènes de collision :

- . collision mercure excité (dans le niveau 6^3P_1)-mercure dans le niveau fondamental ($1S_0$) (³⁷)
- . collision mercure excité-gaz rares (³⁸)
- . collisions d'échange de spins entre alcalins dans l'état fondamental (³⁹)
- . excitation par choc électronique (⁴⁰), etc.

On peut noter encore qu'une situation très analogue à celle décrite dans cet exposé se présente dans l'étude de la relaxation dans les solides (relaxation ORBACH (⁴¹)). Dans ce cas, l'excitation n'est plus optique mais fait intervenir l'absorption d'un phonon.

Ces remarques ont des prolongements immédiats : une transition dipolaire électrique n'agit pas directement sur \vec{J} en réalité, mais sur \vec{L} , le transfert d'orientation à \vec{J} se faisant par l'interaction de structure fine $A \vec{L} \vec{S}$. On voit donc qu'un grand nombre des études décrites plus haut sont susceptibles d'être transposées dans ce cas. Une deuxième remarque peut être faite : si l'on part d'une vapeur où existe une orientation nucléaire de \vec{I} , l'interaction $A \vec{I} \vec{J}$ est susceptible d'orienter \vec{J} . Des expériences sont en cours au laboratoire pour vérifier et mettre à profit cette propriété.

D'autres prolongements du travail décrit ci-dessus sont en cours d'étude au laboratoire :

Production de l'orientation nucléaire des isotopes radioactifs du cadmium et mesure de leurs moments magnétiques nucléaires.

Nouvelles tentatives d'orientation nucléaire de ^{67}Zn .

Etude de l'origine de la relaxation de ^{111}Cd et ^{113}Cd et étude comparée des relaxations de ^{111}Cd et ^{199}Hg sur la même paroi (les deux éléments étant placés simultanément dans la même cellule).

.../...

Essai de mise en évidence de l'effet Hanle dans l'état fondamental d'atomes alcalins par pompage optique (des raies d'une très grande finesse devant être observées dans ce cas).

APPENDICE

Il s'agit de calculer, pour toute valeur de H_0 , d'une part les valeurs propres de $H = g_J \mu_B H_0 J_z + a \vec{I} \cdot \vec{J}$, d'autre part ses fonctions propres dont les coefficients du développement sur la base $|m_J m_I\rangle$ sont les coefficients de couplage vectoriel $\langle m_J m_I | F, m_F \rangle$. Remarquons que F n'est plus un bon nombre quantique dès que $H_0 \neq 0$, mais qu'il est simplement pris par continuité pour repérer les différents niveaux d'énergie.

Les deux problèmes précédents sont résolus simultanément en cherchant les solutions du système d'équations linéaires homogène :

$$\sum_{m_J m_I} \langle m'_J m'_I | H | m_J m_I \rangle \langle m_J m_I | F, m_F \rangle - E \langle m'_J m'_I | F, m_F \rangle = 0$$

Le déterminant du système doit être nul, ce qui donne les valeurs de E . La résolution du système donne alors les coefficients $\langle m_J m_I | F, m_F \rangle$ à un facteur près. Ce facteur est déterminé par la condition de normalisation $\sum_F |\langle m_J m_I | F, m_F \rangle|^2 = 1$, les signes étant pris de telle façon qu'en champ faible, on retrouve les coefficients de CLEBSCH-GORDAN.

1) Cas d'un spin nucléaire $I = 1/2$

a) Energies des sous-niveaux F, m_F :

Elles sont les suivantes :

$$(55) \quad \left\{ \begin{array}{l} E_{3/2, +3/2} = \frac{a}{2} \pm \omega_z \\ E_{3/2, +1/2} = \frac{1}{2} \left\{ -\frac{a}{2} \pm \omega_z + \sqrt{\left(-\frac{a}{2} \pm \omega_z\right)^2 + 2a^2} \right\} \\ E_{1/2, +1/2} = \frac{1}{2} \left\{ -\frac{a}{2} \pm \omega_z - \sqrt{\left(-\frac{a}{2} \pm \omega_z\right)^2 + 2a^2} \right\} \end{array} \right. \quad (\omega_z = g_J \mu_B H_0)$$

.../...

b) Les coefficients de couplage vectoriel sont les suivants (avec la notation $\langle m_J, m_I \mid F, m_F \rangle$)

$$(56) \left\{ \begin{array}{l} \langle +1, +\frac{1}{2} \mid \frac{3}{2}, +\frac{3}{2} \rangle = 1 \\ \langle 0, +\frac{1}{2} \mid \frac{3}{2}, +\frac{1}{2} \rangle = \pm \langle \pm 1, \mp \frac{1}{2} \mid \frac{1}{2}, \pm \frac{1}{2} \rangle = \sqrt{\frac{E_{1/2, \pm 1/2}}{E_{1/2, \pm 1/2} - E_{3/2, \pm 1/2}}} \\ \mp \langle 0, +\frac{1}{2} \mid \frac{1}{2}, \pm \frac{1}{2} \rangle = \langle \pm 1, \mp \frac{1}{2} \mid \frac{3}{2}, \pm \frac{1}{2} \rangle = \sqrt{\frac{E_{3/2, \pm 1/2}}{E_{3/2, \pm 1/2} - E_{1/2, \pm 1/2}}} \end{array} \right.$$

Tous ces coefficients sont réels. Leurs signes sont tels qu'on retrouve, en champ faible, les coefficients de CLEBSCH-GORDAN avec la convention de MESSIAH (réf. ⁴², page 478). Par ailleurs, on peut vérifier facilement que (avec les notations de la figure 5)

$$a_1 b_1 + a_2 b_2 = 0 \quad \text{et} \quad a_1^2 + a_2^2 = 1, \text{ quel que soit } H_0$$

2) Cas d'un spin nucléaire I = 3/2

a) Energie des sous-niveaux F, m_F :

$$(57) \left\{ \begin{array}{l} E_{5/2, \pm 5/2} = \frac{3}{2} a \pm \omega_z \\ E_{5/2, \pm 3/2} = \frac{1}{2} \left\{ \frac{a}{2} \pm \omega_z + \sqrt{\left(\frac{a}{2} \pm \omega_z\right)^2 + 6a^2} \right\} \\ E_{3/2, \pm 3/2} = \frac{1}{2} \left\{ \frac{a}{2} \pm \omega_z - \sqrt{\left(\frac{a}{2} \pm \omega_z\right)^2 + 6a^2} \right\} \end{array} \right.$$

Les énergies des 6 sous-niveaux pour lesquels $m_F = \pm 1/2$ sont solutions des deux équations

$$(58) \quad E^3 + 2aE^2 - \left[\left(\frac{a}{2} \pm \omega_z\right)^2 + \frac{5a^2}{2} \right] E - \frac{a^2}{2} \left[\left(\frac{a}{2} \pm \omega_z\right) + 7a \right] = 0$$

Lorsque $H_0 = 0$ ($\omega_z = 0$), on retrouve les valeurs $E_{5/2} = \frac{3a}{2}$
 $E_{3/2} = -a$ et $E_{1/2} = -\frac{5a}{2}$.

.../...

La figure 37 montre les niveaux d'énergie de l'anticroisement triple $m_F = +\frac{1}{2}$.

b) Les coefficients de recouplage $\langle m_J, m_I \mid F, m_F \rangle$:

$$\begin{aligned}
 & \langle +1, +\frac{3}{2} \mid \frac{5}{2}, +\frac{5}{2} \rangle = 1 \\
 & \langle 0, +\frac{3}{2} \mid \frac{5}{2}, +\frac{3}{2} \rangle = +\langle +1, +\frac{1}{2} \mid \frac{3}{2}, +\frac{3}{2} \rangle = \sqrt{\frac{E_{3/2, +3/2}}{E_{3/2, +3/2} - E_{5/2, +5/2}}} \\
 & \mp \langle 0, +\frac{3}{2} \mid \frac{3}{2}, +\frac{3}{2} \rangle = \langle +1, +\frac{1}{2} \mid \frac{5}{2}, +\frac{3}{2} \rangle = \sqrt{\frac{E_{5/2, +3/2}}{E_{5/2, +3/2} - E_{3/2, +3/2}}} \\
 (59) \quad & \langle +1, \mp \frac{1}{2} \mid F_1, +\frac{1}{2} \rangle = \frac{\varepsilon_1^{\pm} \alpha (E_1 - \mu)}{\sqrt{(E_1 - \lambda)(E_1 - \mu)(E_1 - E_2)(E_1 - E_3)}} \\
 & \langle 0, +\frac{1}{2} \mid F_1, +\frac{1}{2} \rangle = \frac{\varepsilon_1^{\pm} (E_1 - \lambda)(E_1 - \mu)}{\sqrt{(E_1 - \lambda)(E_1 - \mu)(E_1 - E_2)(E_1 - E_3)}} \\
 & \langle -1, +\frac{3}{2} \mid F_1, +\frac{1}{2} \rangle = \frac{\varepsilon_1^{\pm} \beta (E_1 - \lambda)}{\sqrt{(E_1 - \lambda)(E_1 - \mu)(E_1 - E_2)(E_1 - E_3)}}
 \end{aligned}$$

Dans ces dernières valeurs ($m_F = \pm\frac{1}{2}$), E_1, E_2, E_3 sont les permutations circulaires de $E_{5/2, \pm 1/2}$, $E_{3/2, \pm 1/2}$ et $E_{1/2, \pm 1/2}$. Par ailleurs

$$\varepsilon_{5/2}^{\pm} = \varepsilon_{3/2}^{\pm} = +1, \quad \varepsilon_{3/2}^{-} = \varepsilon_{1/2}^{\pm} = -1.$$

$$\text{Enfin, } \alpha = 2a^2, \quad \beta = \frac{3}{2} a^2, \quad \lambda = -\frac{a}{2} \mp \omega_z \quad \text{et} \quad \mu = -\frac{3a}{2} \mp \omega_z$$

Ayant les coefficients de recouplage en fonction des énergies des sous-niveaux, on peut alors, en utilisant la formule (10) de JPI, calculer un signal d'anticroisement quelconque (donc l'efficacité d'un processus de pompage optique). En effet, seules interviennent dans ces formules des fonctions symétriques des racines de l'équation

.../...

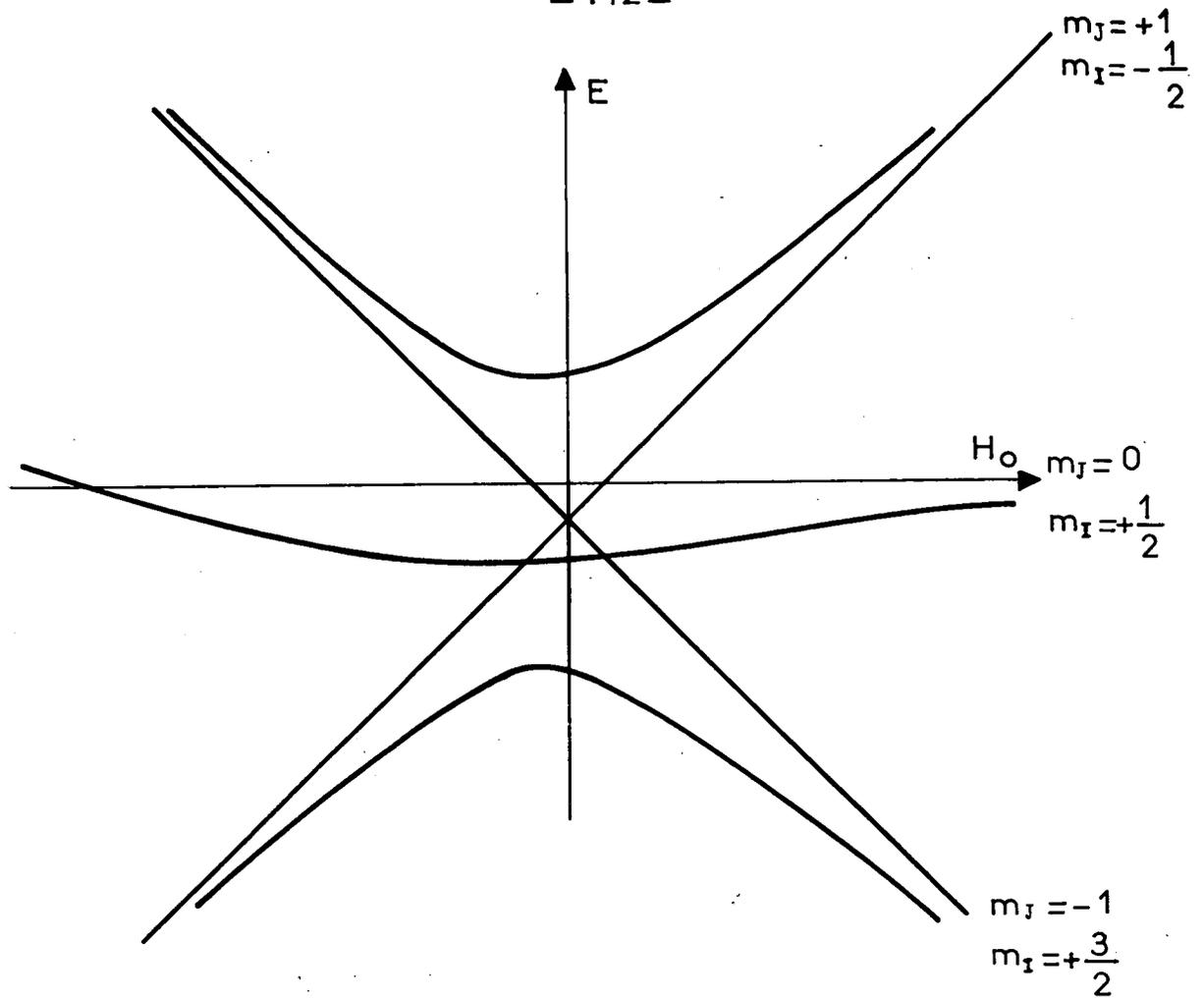


Figure 37

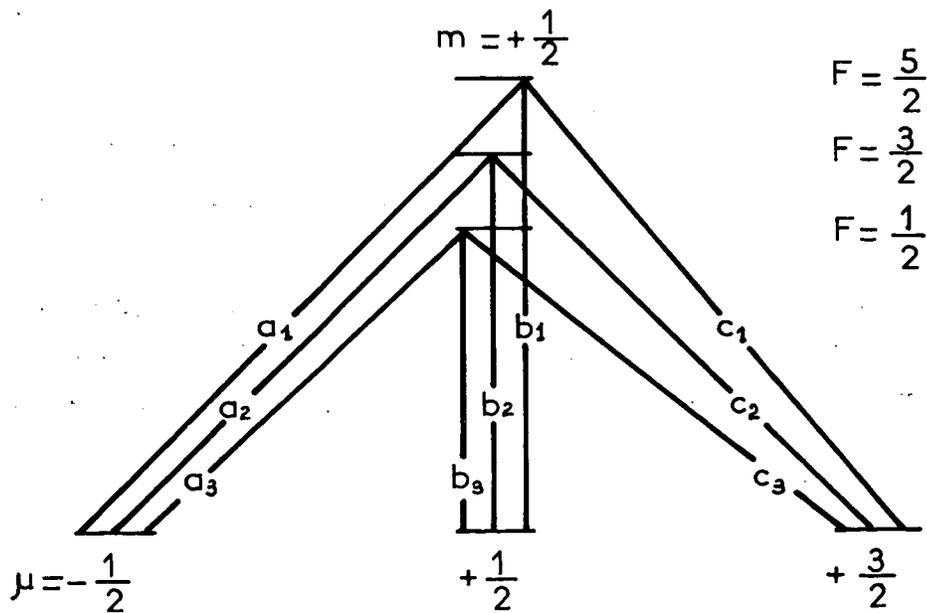


Figure 38

aux énergies. A titre d'exemple, on a calculé la lumière π réémise lorsque l'excitation se fait en σ^+ à partir du sous-niveau $\mu = -1/2$ de l'état fondamental (fig. 38). Avec les notations de cette figure, ce signal vaut :

$$S = a_1 b_1 a_2 b_2 \times \frac{(E_2 - E_1)^2}{(E_2 - E_1)^2 + \Gamma^2} + a_2 b_2 a_3 b_3 \frac{(E_3 - E_2)^2}{(E_3 - E_2)^2 + \Gamma^2} + a_3 b_3 a_1 b_1 \frac{(E_3 - E_1)^2}{(E_3 - E_1)^2 + \Gamma^2}$$

Les a et les b sont, les coefficients de recouplage correspondant aux transitions indiquées.

Tous calculs faits, on trouve

$$S = \alpha^2 \cdot \frac{-\Gamma^4 + (s_1^2 + 2s_2 - 6s_1\mu + 7\mu^2)\Gamma^2 + (3s_1s_3 - s_2^2) + \mu(s_1s_2 - 9s_3) + \mu^2(3s_2 - s_1^2)}{\Gamma^2(\Gamma^2 + s_1^2 - 2s_2)^2 + 18s_1s_2s_3 - 27s_3^2 - 4s_2^3 - 4s_1^3s_3 + s_1^2s_2^2}$$

α et μ ont été donnés plus haut. s_1 , s_2 et s_3 sont les fonctions symétriques des racines de l'équation aux énergies (équ. (58)), de degrés 1, 2 et 3.

ooooo
ooo
o

BIBLIOGRAPHIE

- JPl J.C. LEHMANN - J. de Phys. 1964, 25, 809
- (1) F. BITTER et J. BROSSEL - Phys. Rev. 1952, 85, 1051
- (2) B. CAGNAC, J. BROSSEL et A. KASTLER - C.R. 1958, 246, 1827
B. CAGNAC - J. de Phys. 1958, 19, 863
B. CAGNAC et J. BROSSEL - C.R. 1959, 249, 77
- (3) B. CAGNAC - Thèse, Paris, 1960; Ann. de Phys. 1961, 6, 467
- (4) W.T. WALTER - Q.P.R., M.I.T. n° 65, April 15, 1962
- (5) W.T. WALTER et M.J. STAVN - Q.P.R., M.I.T. n° 70, July 15, 1963
- (6) C. COHEN-TANNOUDJI - J. de Phys. 1963, 24, 653
- (7) C. COHEN-TANNOUDJI - Thèse, Paris, 1962; Ann. de Phys. 1962, 7,
423 et 469
- (8) C. COHEN-TANNOUDJI et S. HAROCHE - C.R. 1965, 261, 5400 et
1966, 262 B, 37 et 268
- (9) M. DUMONT - Thèse 3e cycle, Paris, 1962
- (10) M.N. McDERMOTT et R. NOVICK - J.O.S.A. 1961, 51, 1008
- (11) J.C. LEHMANN - Thèse 3e cycle, Paris, 1963
- (12) I.M. POPESCU et L.N. NOVIKOV - C.R. 1964, 259, 1321
- (13) M.A. BOUCHIAT - Thèse, Paris, 1964; Publ. Scient. et Techn. du
Ministère de l'Air, 1965, N.T. 146, page 73
- (14) T.G. ECK, L.L. FOLDY et H. WIEDER - Phys. Rev. Lett. 1963, 10, 239
- (15) J. BROSSEL et F. BITTER - Phys. Rev. 1952, 86, 308
J. BROSSEL - Advances in Quantum Electronics, Columbia University
Press, 1961, p. 109
- (16) G.W. SERIES - Phys. Rev. Lett. 1963, 11, 13
- (17) F.D. COLEGROVE, P.A. FRANKEN, R.R. LEWIS, R.H. SANDS - Phys. Rev.
Lett. 1959, 3, 420
P.A. FRANKEN - Phys. Rev. 1961, 121, 508
- (18) A.C.G. MITCHELL et M.W. ZEMANSKY - Resonance Radiation and
Excited Atoms, Cambridge University Press, London, 1961,
p. 258
- (19) J.M. WINTER - Thèse, Paris, 1958; Ann. de Phys. 1959, 4, 745

.../...

- (20) J.H. SHIRLEY - Phys. Rev. 1965, 138, 4B, 979
- (21) H.G. DEHMELT - Phys. Rev. 1957, 105, 1924
W.E. BELL et A.L. BLOOM - Phys. Rev. 1957, 107, 1559
- (22) J. MANUEL et C. COHEN-TANNOUJJI - C.R. 1963, 257, 413
- (23) A. LURIO et R. NOVICK - Phys. Rev. 1964, 134, A608
- (24) J. BUTAUX - Diplôme, Caen 1962
- (25) P. THADDEUS et R. NOVICK - Phys. Rev. 1962, 126, 1774
- (26) F.M. KELLY et E. TOMCHUK - Proc. Phys. Soc., 1959, 74, 689
- (27) F.M. KELLY et E. TOMCHUK - Proc. Phys. Soc., 1961, 78, 1304
- (28) F. QUARRÉ et A. OMONT - C.R. 1966, 263 B, 41
- (29) F. BLOCH et A. SIEGERT - Phys. Rev. 1940, 57, 522
- (30) J.C. LEHMANN et C. COHEN-TANNOUJJI - C.R. 1964, 258, 4463
- (31) H.G. DEHMELT - Phys. Rev. 1957, 105, 1486
- (32) M. LEDUC et J.C. LEHMANN - C.R. 1966, 262 B, 736
- (33) M.N. McDERMOTT, R.L. CHANEY et P.W. SPENCE - B.A.P.S., 1966, 11, 354
- (34) M. LEDUC, J. BROSEL et J.C. LEHMANN - C.R. 1966 (à paraître)
- (35) J.C. LEHMANN et J. BROSEL - C.R. 1966, 262 B, 624
- (36) C. COHEN-TANNOUJJI et J. BROSEL - C.R. 1964, 258, 6119
- (37) A. OMONT - J. de Phys. 1965, 26, 26
- (38) J.P. FAROUX - C.R. 1966, 262 B, 41
- (39) F. GROSSETÊTE - J. de Phys. 1964, 25, 383
- (40) J.P. DESCUBES - C.R. 1964, 259, 3733
- (41) R. ORBACH - Proc. Roy. Soc. 1961, 264 A, 458
- (42) A. MESSIAH - Mécanique Quantique (Dunod, Paris, 1960)