



HAL
open science

Etude théorique et expérimentale des propriétés physiques d'atomes en interaction avec des photons de radiofréquence

Serge Haroche

► **To cite this version:**

Serge Haroche. Etude théorique et expérimentale des propriétés physiques d'atomes en interaction avec des photons de radiofréquence. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 1971. Français. NNT: . tel-00011809

HAL Id: tel-00011809

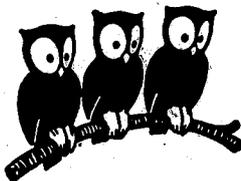
<https://theses.hal.science/tel-00011809v1>

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.

LABORATOIRE DE PHYSIQUE
DE L'ÉCOLE NORMALE
SUPÉRIEURE



THÈSE DE DOCTORAT D'ÉTAT ES SCIENCES PHYSIQUES

présentée

A L'UNIVERSITÉ PARIS VI

par

Serge H A R Q U E

pour obtenir le grade de Docteur ès Sciences

la thèse :

"ÉTUDE THÉORIQUE ET EXPÉRIMENTALE DES PROPRIÉTÉS PHYSIQUES
D'ATOMES HABILLES PAR DES PHOTONS DE RADIOFRÉQUENCE"

le 24 JUIN 1971 devant la Commission d'Examen :

MM. A. KASTLER

J. BROUILLÉ

C. COHEN-TANNOUDJI

A. ABRAGAM

P.G. DE GENNES

Président

Examineurs

N° d'enregistrement

au C.N.R.S.

AO 5942

THESE DE DOCTORAT D'ETAT ES SCIENCES PHYSIQUES

présentée

A L'UNIVERSITE PARIS VI

par

Serge H A R O C H E

pour obtenir le grade de Docteur ès Sciences

Sujet de la thèse :

"ETUDE THEORIQUE ET EXPERIMENTALE DES PROPRIETES PHYSIQUES
D'ATOMES HABILLES PAR DES PHOTONS DE RADIOFREQUENCE"

Soutenu le 24 JUIN 1971 devant la Commission d'Examen :

MM. A. KASTLER	Président
J. BROSEL	} Examineurs
C. COHEN-TANNOUJJI	
A. ABRAGAM	
P.G. DE GENNES	

Cette thèse a été effectuée au Laboratoire de Physique de l'Ecole Normale Supérieure au cours des années 1967 - 1970. Je remercie vivement les Professeurs KASTLER et BROUSSEL pour l'accueil qu'ils m'ont réservé dans leur groupe de recherche et pour les conditions de travail exceptionnelles qu'ils y ont créées.

L'étude présentée ici est le résultat du travail de toute une équipe de recherche dirigée par C. COHEN-TANNOUDJI à qui je suis très heureux d'exprimer ici ma profonde reconnaissance; il a su en effet, avec la gentillesse et la compétence que tout le monde lui connaît, animer le travail de l'équipe et lui transmettre son enthousiasme scientifique.

C'est avec plaisir que je remercie également tous les membres du groupe qui ont participé à l'étude sur l'atome "habillé" : J. DUPONT-ROC avec lequel j'ai collaboré de façon particulièrement amicale et fructueuse pendant toute la durée de ce travail, C. LHUILLIER-LANDRÉ, M. LE DOURNEUF et G. GRYNBERG qui ont successivement pris part aux recherches et grandement contribué, tant sur le plan théorique qu'expérimental, à l'avancement de cette étude.

Mes remerciements vont également à tous mes camarades de laboratoire pour l'aide qu'ils ont pu m'apporter et à toute l'équipe technique du laboratoire pour l'habileté et l'ingéniosité avec lesquelles elle a toujours su résoudre les problèmes que je lui ai posés. Je tiens en particulier à remercier Mme BERLAND et Mme DOUSSET qui ont su avec compétence et rapidité mettre au point la chaîne multiplicatrice de fréquence sans laquelle une bonne part des expériences rapportées dans ce travail n'aurait pu être menée à bien. Cette chaîne multiplicatrice a été réalisée grâce aux conseils et à l'aide fructueuse de M. ARDITI qui nous a fait profiter avec gentillesse et amabilité de la grande expérience acquise dans ce domaine au laboratoire de l'Horloge Atomique. Je l'en remercie très vivement.

Je suis également très reconnaissant à Mlle BRODSCHI qui a pu, malgré ses nombreuses responsabilités administratives, se charger de la très lourde tâche qu'a été la frappe de ce mémoire.

Je remercie enfin M. ROCARD, Directeur du Laboratoire, pour son hospitalité.

T A B L E D E S M A T I E R E S

<u>INTRODUCTION</u>		p. 1
<u>I - LE FORMALISME GENERAL DE L'ATOME HABILLE</u>		p.13
I-A. Quelques rappels de physique atomique		p.14
I-B. Description du système global "atome + champ de radiofréquence"		p.29
I-C. Les diagrammes d'énergie de l'atome habillé dans le cas d'un spin $J = 1/2$		p.37
I-D. Les propriétés physiques de l'atome habillé		p.47
I-E. Les méthodes spectroscopiques d'exploration du diagramme d'énergie de l'atome habillé		p.64
<u>II - LES EQUATIONS DE BLOCH DE L'ATOME HABILLE</u>		p.69
II-A. Rappels sur l'équation pilote d'un système de spins libres sans interactions		p.70
II-B. La description statistique de l'atome habillé		p.78
II-C. Etude générale de l'équation pilote de l'atome habillé		p.84
II-D. Etude générale du signal détecté		p.90
<u>III - FORME OPERATORIELLE DES EQUATIONS DE BLOCH POUR UN ATOME HABILLE DE SPIN J QUELCONQUE</u>		p.99
III-A. Les niveaux d'énergie de l'atome habillé pour un spin J quelconque		p.101
III-B. La description opératorielle de l'atome habillé		p.112
III-C. Description d'une expérience dans le formalisme opératorielle : généralisation de la notion de référentiel tournant		p.123
<u>IV - LE CALCUL DES RESONANCES MAGNETIQUES DE COHERENCE DANS LE FORMALISME DE L'ATOME HABILLE</u>		p.131
IV-A. Etude générale du signal résonnant		p.132
IV-B. Etude des caractéristiques du pompage		p.136
IV-C. Etude des résonances magnétiques de cohérence détectées en orientation		p.139
IV-D. Etude des résonances magnétiques de cohérence détectées en alignement		p.145
<u>V - LES PROPRIETES MAGNETIQUES DE L'ATOME HABILLE EN CHAMP STATIQUE FAIBLE</u>		p.149
V-A. Propriétés magnétiques d'un atome habillé en champ statique faible par des photons de radiofréquence polarisés linéairement		p.150

V-B.	Transfert résonnant de cohérence entre niveaux atomiques différents habillés par un champ de radiofréquence polarisé linéairement	p.167
V-C.	Propriétés magnétiques d'un atome habillé en champ statique faible par des photons de radiofréquence polarisés circulairement	p.189
VI -	<u>ABSORPTION ET DIFFUSION D'UN DEUXIEME CHAMP ELECTROMAGNETIQUE PAR L'ATOME HABILLE</u>	p.201
VI-A.	Etude générale du spectre d'absorption de l'atome habillé	p.202
VI-B.	Spectre Zeeman d'un atome habillé en champ statique faible	p.211
VI-C.	Diffusion de lumière par l'atome habillé	p.222
VII -	<u>LA RELAXATION DE L'ATOME HABILLE PAR DES CHAMPS DE RADIOFREQUENCE INTENSES</u>	p.247
VII-A.	Rappels sur la relaxation magnétique d'un atome libre ..	p.250
VII-B.	Description générale de la relaxation magnétique d'un atome habillé par un champ de radiofréquence en polarisation π	p.253
VII-C.	Influence de l'amplitude et de la fréquence du champ habitlant sur la relaxation magnétique	p.257
VIII -	<u>INTRODUCTION A L'ETUDE EXPERIMENTALE</u>	p.265
VIII-A.	Généralités	p.265
VIII-B.	Description générale du montage et des techniques expérimentales	p.267
IX -	<u>ETUDE EXPERIMENTALE DES PROPRIETES PHYSIQUES DES ISOTOPES IMPAIRS DU MERCURE HABILLES PAR UN CHAMP DE RADIOFREQUENCE</u>	p.275
IX-A.	Etude expérimentale des divers types de résonance de l'atome habillé	p.275
IX-B.	Etude expérimentale des propriétés magnétiques de l'atome habillé en champ statique faible	p.282
X -	<u>ETUDE EXPERIMENTALE DES COLLISIONS D'ECHANGE DE SPINS ENTRE ATOMES ALCALINS HABILLES</u>	p.291
X-A.	Etude expérimentale du transfert de cohérence entre ^{133}Cs et ^{87}Rb habillés par un champ de radiofréquence polarisé linéairement	p.291
X-B.	Etude expérimentale de la relaxation transversale d'atomes de ^{87}Rb habillés par un champ de radiofréquence tournant	p.297

XI -	<u>LES RESONANCES HYPERFINES OBSERVABLES SUR DES ATOMES ⁸⁷Rb</u>		
	<u>HABILLES PAR UN CHAMP DE RADIOFREQUENCE</u>	p.301
	XI-A. Description générale du montage expérimental et principales caractéristiques des résonances hyperfines observées		p.301
	XI-B. Le spectre hyperfin d'atomes de ⁸⁷ Rb habillés par un champ de radiofréquence linéaire	p.305
	XI-C. Relaxation magnétique d'atomes de ⁸⁷ Rb habillés. Largeur de la raie hyperfine 0 ↔ 0	p.311
	XI-D. Le spectre hyperfin d'atomes de ⁸⁷ Rb habillés par un champ de radiofréquence tournant	p.316
	<u>CONCLUSION</u>	p.319
	<u>APPENDICES</u>		
	I	p.A1
	II	p.A4
	III	p.A10
	IV	p.A16
	V	p.A33
	VI	p.A38
	<u>REFERENCES</u>		

I N T R O D U C T I O N

LES DIVERS EFFETS RESONNANTS DE LA SPECTROSCOPIE HERTZIENNE

La Spectroscopie Hertzienne est la branche de la Physique Atomique consacrée à l'étude des transitions induites entre les niveaux d'énergie d'un système matériel par un champ de radio- ou d'hyperfréquence. Son domaine d'application est extrêmement vaste, tant en raison de la gamme de fréquences qu'elle couvre, que de la diversité des phénomènes résonnants qu'on peut y observer. Initialement conçue comme un moyen puissant d'investigation des niveaux d'énergie dans des expériences de jets atomiques ou moléculaires ⁽¹⁾, elle s'est étendue par la suite au domaine de la résonance magnétique électronique ⁽²⁾ et nucléaire ⁽³⁾ sur des échantillons solides ou liquides. Elle a vu enfin ses possibilités s'enrichir considérablement avec l'avènement des méthodes optiques de préparation et de détection du système atomique. L'étude de nombreux niveaux d'énergie dans des gaz à très faible pression est alors devenue possible : la méthode de "double résonance", mise au point par BROSSEL et BITTER ⁽⁴⁾, a permis de détecter la résonance magnétique dans des états atomiques excités; le pompage optique suggéré en 1950 par KASTLER ⁽⁵⁾ a rendu possible l'extension des études précédentes aux états fondamentaux, possédant un paramagnétisme électronique ⁽⁶⁾ ou nucléaire ⁽⁷⁾. Citons également toutes sortes de variantes de ces expériences dans lesquelles l'excitation ou le pompage optique sont remplacés, lorsqu'ils ne peuvent être directement utilisés, par d'autres méthodes de préparation du système étudié : double résonance sur des états atomiques excités et alignés par bombardement électronique ⁽⁸⁾; résonance magnétique sur des états atomiques fondamentaux ⁽⁹⁾, voire même sur des électrons libres ⁽¹⁰⁾, orientés par collisions d'échange de spin avec des atomes alcalins pompés optiquement, etc.

Le raffinement des techniques expérimentales a d'autre part permis d'enrichir la Spectroscopie Hertzienne de toute une série d'effets physiques nouveaux qui sont venus s'ajouter au phénomène simple de résonance magnétique ordinaire : des résonances liées à l'absorption simultanée de plusieurs quanta du champ de radiofréquence ont été observées pour la première fois dans des expériences de pompage optique ⁽¹¹⁾ et étudiées en détail par WINTER ⁽¹²⁾; AUTLER et TOWNES ont, par ailleurs, mis en évidence un effet intéressant de dédoublement des raies spectrales émises par un atome dont les niveaux sont soumis à l'action d'un champ de radiofréquence résonnant ⁽¹³⁾. Enfin, les techniques du pompage optique transversal ⁽¹⁴⁾ en offrant la possibilité de préparer de façon continue le système atomique dans une superposition cohérente de sous-niveaux Zeeman a, dans un Passé plus récent,

permis l'observation de toute une classe de nouveaux phénomènes résonnants : après ALEXANDROV et al (¹⁵), SERIES et al (¹⁶), GENEUX et al (¹⁷), POLONSKY et al (¹⁸), nous avons nous-même observé (¹⁹) des résonances nouvelles qui se distinguent nettement par leurs caractéristiques (positions, largeurs, intensités, etc.) des résonances magnétiques ordinaires et que nous qualifierons du terme général de "résonances magnétiques de cohérence".

LE CARACTERE CLASSIQUE DU CHAMP DE RADIOFREQUENCE

La plupart des formalismes théoriques utilisés pour interpréter les effets précédents ont, à quelques rares exceptions près (²⁰), été basés sur un traitement classique du champ de radiofréquence. Etant donné le nombre extraordinairement élevé de photons présents dans le champ, le choix d'un tel traitement semble en effet naturel : les phénomènes d'émission spontanée sont complètement négligeables devant l'absorption et l'émission induite, si bien qu'aucun effet qui ne pourrait être expliqué à l'aide d'une représentation classique du champ n'est susceptible d'apparaître. Une telle description est donc d'un point de vue théorique entièrement justifiée... Elle semble d'autre part s'imposer étant donné le caractère "cohérent" du champ de radiofréquence produit par les oscillateurs utilisés dans les expériences de Spectroscopie Hertzienne : la phase du champ étant parfaitement définie, il paraît tout indiqué de le considérer comme une grandeur classique représentée par une fonction périodique du temps ...

LE ROLE DES PHOTONS DANS LE DOMAINE DES RADIOFREQUENCES

Cependant, bien que le formalisme semi-classique du rayonnement permette de décrire complètement tous les effets de la Spectroscopie Hertzienne, il est bien connu que ceux-ci s'interprètent souvent de façon très simple en termes quantiques d'absorption ou d'émission de photons de radiofréquence par le système atomique. C'est en particulier le cas des transitions à plusieurs quanta : en appliquant les règles de conservation de l'énergie et du moment angulaire au cours de l'absorption de p photons de radiofréquence par l'atome, on est capable de prévoir, beaucoup plus commodément que par le calcul classique, la position des diverses résonances observables.

L'idée vient alors immédiatement d'essayer d'appliquer les mêmes principes pour interpréter les résonances magnétiques de cohérence citées plus

haut. Ces résonances sont bien comprises dans le formalisme semi-classique. Diverses interprétations en ont été données ⁽¹⁵⁾⁽¹⁶⁾⁽¹⁸⁾⁽²¹⁾⁽²²⁾. Toutes sont basées sur l'étude de l'évolution forcée d'une superposition cohérente de sous-niveaux Zeeman atomiques. Cette superposition, introduite dans le système par l'excitation optique transversale, subit des oscillations forcées induites par le couplage entre l'atome et la radiofréquence. Le calcul montre que ces oscillations présentent des variations résonnantes pour certaines valeurs du champ statique \vec{H}_0 appliqué aux atomes. Par exemple, pour un champ de radiofréquence oscillant parallèle au champ \vec{H}_0 (c'est-à-dire en polarisation π), on prévoit par le calcul et on observe expérimentalement ⁽¹⁵⁾⁽¹⁷⁾⁽¹⁸⁾ sur une assemblée de spins 1/2 un spectre de résonances apparaissant dans des champs tels que $\omega_0 = p\omega$ ($\omega_0 = -\gamma H_0$, γ rapport gyromagnétique des spins; ω pulsation de la radiofréquence; $p = 1, 2, 3 \dots$). Pour un champ de radiofréquence qui oscille perpendiculairement à \vec{H}_0 (polarisation σ), nous avons mis par contre en évidence théoriquement ⁽²¹⁾ et expérimentalement ⁽¹⁹⁾ un spectre "pair" $\omega_0 = 2p\omega$ de nouvelles résonances magnétiques de cohérence.

Si l'on cherche à comprendre physiquement le rôle des photons dans ces diverses résonances, on rencontre immédiatement de sérieuses difficultés. On ne peut en effet manifestement pas les interpréter en termes de transitions réelles entre niveaux d'énergie atomiques accompagnées de l'absorption ou de l'émission de photons de radiofréquence. On observe en effet ces phénomènes résonnants en pompage purement transversal, dans des conditions où il n'existe aucune différence de populations entre les sous-niveaux Zeeman +1/2 et -1/2 et il est donc impossible de détecter de telles transitions même si elles venaient à se produire. D'autre part, ces transitions ne pourraient en aucun cas assurer la conservation globale de l'énergie et du moment cinétique du système : si le champ de radiofréquence a une polarisation π , chaque photon transporte en effet un moment angulaire nul le long de \vec{H}_0 et l'absorption ou l'émission d'un nombre quelconque de quanta de radiofréquence ne peut fournir le moment cinétique nécessaire à une transition $\Delta m = \pm 1$; de même si le champ de radiofréquence a une polarisation σ , il résulte de la superposition de deux composantes circulaires droite et gauche correspondant à des photons de moment cinétique $+\hbar$ ou $-\hbar$ le long de \vec{H}_0 ; seul un nombre impair d'entre eux permettrait par suite d'induire des transitions $\Delta m = \pm 1$ et on ne comprend pas du tout de cette façon l'apparition d'un spectre pair de résonance ...

Ainsi, si les transitions à plusieurs quanta peuvent s'interpréter de façon très simple -et très commode- en termes corpusculaires, il n'en est pas

de même des nouveaux phénomènes résonnants que nous venons de décrire, pour lesquels le rôle joué par les photons de radiofréquence reste mystérieux... Pourtant, les mêmes photons interviennent manifestement dans les deux types d'effets et il est donc intéressant de comprendre comment ils se manifestent physiquement dans les résonances magnétiques de cohérence. En plus de l'intérêt purement théorique posé par ce problème, on peut en effet espérer que la compréhension quantique des processus mis en jeu nous permettra, comme c'est le cas pour les transitions à plusieurs quanta, d'interpréter, de façon plus physique et plus simple que ne le fait le formalisme semi-classique, les principales propriétés de ces résonances (positions, intensités, largeurs, etc.).

OBJET DE CE TRAVAIL

Les considérations précédentes nous ont conduit à adopter pour la description du champ de radiofréquence et de son interaction avec le système atomique un formalisme entièrement quantique. C'est l'étude de ce formalisme et de l'interprétation qu'il permet de donner de tous les effets -déjà connus ou originaux- de la Spectroscopie Hertzienne qui constitue l'objet théorique essentiel de ce travail.

Nous verrons notamment que le point de vue quantique permet de comprendre de façon globale et synthétique l'ensemble des phénomènes résonnants mentionnés plus haut, à l'aide d'images physiques simples qui précisent les divers rôles joués par les photons de radiofréquence; de plus, nous serons tout naturellement amenés, grâce à ce point de vue, à prévoir et à étudier en détail des effets physiques originaux qui apparaissent de façon moins évidente dans le formalisme classique... Nous montrerons ainsi que, malgré les apparences, le formalisme quantique non seulement ne complique pas l'interprétation des phénomènes observés, mais présente sur le formalisme classique de nombreux avantages pratiques et conceptuels que nous allons maintenant passer brièvement en revue.

LES AVANTAGES DU POINT DE VUE QUANTIQUE ADOPTE DANS CE TRAVAIL

1. Existence d'un hamiltonien indépendant du temps. Généralisation de la notion de référentiel tournant.

En traitant quantiquement le champ électromagnétique, on introduit dans le formalisme une certaine symétrie, absente dans le point de vue classique;

au lieu de considérer le champ comme une perturbation extérieure appliquée au système, on le met sur le même plan que le milieu matériel en considérant que le système atomique et la radiofréquence constituent en quelque sorte deux sous-systèmes physiques en interaction. L'évolution du système global "atome + champ" qu'ils constituent est alors régie par un hamiltonien indépendant du temps dont l'étude est, en principe, beaucoup plus simple que celle de l'hamiltonien dépendant du temps de la théorie classique. Remarquons d'ailleurs que l'on cherche dans le formalisme classique à s'affranchir dans la mesure du possible de la dépendance temporelle de l'hamiltonien en passant par exemple dans un référentiel tournant avec la radiofréquence (²³). Une telle opération n'est cependant possible que si le champ est polarisé circulairement. La quantification du champ permet en quelque sorte de généraliser la notion de passage au référentiel tournant dans le cas d'une polarisation quelconque du champ. C'est d'ailleurs en essayant de calculer exactement l'évolution d'un spin dans un champ de radiofréquence polarisé linéairement que SHIRLEY (²⁴) a été amené, avant nous, à constater l'analogie formelle qui existe entre les opérations consistant à quantifier le champ et celles qui visent à éliminer la dépendance temporelle de l'hamiltonien.

2. Introduction des diagrammes d'énergie du système "atome + champ". Interprétation à l'aide de ces diagrammes de tous les effets résonnants de la Spectroscopie Hertzienne.

L'existence d'un hamiltonien indépendant du temps nous permet de définir de véritables niveaux d'énergie pour le système physique étudié, ce qui est exclu dans le formalisme classique. Chacun de ces niveaux est associé à un état stationnaire du système global "atome + photons de radiofréquence". Tracés en fonction du champ statique H_0 , ces niveaux constituent de véritables diagrammes d'énergie pour le système global étudié. L'évolution libre d'une observable quelconque de ce système ne peut s'effectuer qu'aux diverses fréquences de Bohr correspondant aux différents couples de niveaux de ces diagrammes qui permettent ainsi de construire simplement les diagrammes de fréquence introduits par PRYCE (²⁵), AUTLER et TOWNES (¹³), SERIES (¹⁶) ou SHIRLEY (²⁴). Cependant, dans la mesure où les diagrammes que nous venons de définir correspondent aux vraies énergies d'un système physique isolé, leur interprétation est plus claire que celle de simples diagrammes de fréquence et on peut, à partir de leur forme générale, déduire très simplement l'ensemble des propriétés d'un système atomique couplé à un champ de radiofréquence, tout comme on peut, à partir du diagramme Zeeman d'un atome libre, prévoir les propriétés magnétiques de cet atome.

L'allure générale des diagrammes d'énergie du système "atome + champ" peut se déduire, sans aucun calcul, de simples arguments de symétrie basés sur les règles de sélection des transitions dipolaires magnétiques. On constate très simplement que les diagrammes ainsi obtenus présentent, pour des valeurs précises du champ H_0 , un certain nombre d'anticroisements (*) et de croisements de niveaux d'énergie. Nous montrerons en détail que les transitions à un ou plusieurs quanta d'une part, les résonances magnétiques de cohérence d'autre part, reflètent respectivement l'existence de ces anticroisements et croisements de niveaux. Ces diverses résonances constituent ainsi, pour l'atome couplé à un champ de radiofréquence, une simple généralisation d'effets résonnants qui, dans le cas d'atomes libres, ont été étudiés par ECK et al (26) pour les anticroisements, par FRANKEN et al (27) pour les croisements de niveaux. Le rôle des photons de radiofréquence dans ces résonances apparaît également de façon claire au simple examen des diagrammes d'énergie : les anticroisements n'existent que par suite d'un couplage entre deux états de même énergie du système global "atome + champ" comprenant en général des nombres de photons différents; ils traduisent donc l'existence de processus d'absorption et d'émission réels (conservant l'énergie et le moment cinétique) d'un ou plusieurs photons de radiofréquence par l'atome. Les croisements correspondent par contre à l'intersection de deux états du système global qui ne peuvent se repousser car ils ne sont couplés à aucun ordre (absence de toute transition réelle au point de croisement). Nous verrons que les phénomènes résonnants qui apparaissent en ces points ne sont observables que par suite d'une contamination des états qui se croisent par des niveaux d'énergie différente, ce que l'on peut interpréter en terme d'absorption ou d'émission virtuelles (ne conservant pas l'énergie) de photons de radiofréquence par l'atome.

(*) Deux niveaux appartenant à un anticroisement passent à une distance minimale non nulle l'un de l'autre pour une certaine valeur du champ magnétique.

Notons enfin que la présence des anticroisements permet également d'expliquer, du fait de la séparation des niveaux du diagramme en plusieurs branches qui se repoussent, la démultiplication des raies spectrales (effet AUTLER-TOWNES (¹³)) mentionnée plus haut... Les diagrammes d'énergie du système "atome + champ" nous donnent ainsi, de façon synthétique, une vision d'ensemble de tous les effets résonnants de la Spectroscopie Hertzienne qui s'interprètent dans des formalismes classiques très divers...

3. Interprétation simple dans le point de vue quantique des effets de saturation.

Les avantages du point de vue quantique se manifestent également lorsqu'on envisage l'interaction du système atomique avec des champs de radiofréquence intenses, permettant de saturer les raies de résonance magnétique. Alors que les méthodes semi-classiques de résolution des équations du mouvement en puissances de la perturbation conduisent à des calculs souvent longs et complexes (²⁸) et peuvent cesser de converger, il est toujours possible, même si l'on n'effectue pas explicitement les calculs, de suivre par continuité la déformation du diagramme d'énergie du système global "atome + champ quantifié" pour des nombres de photons de radiofréquence de plus en plus élevés et de prévoir très simplement les principales propriétés de saturation des diverses résonances observées. C'est ainsi que la déformation progressive des anticroisements de niveaux, lorsque le nombre de photons (donc l'amplitude) du champ de radiofréquence augmente, permet d'interpréter l'élargissement radiatif des résonances magnétiques à un ou plusieurs quanta; on peut également dire que cet élargissement est causé par les transitions réelles de radiofréquence (responsables de la présence des anticroisements) qui raccourcissent en quelque sorte la durée de vie des niveaux soumis à la résonance magnétique. Par contre, les résonances magnétiques de cohérence, associées à des croisements de niveaux qui se déforment beaucoup moins que les anticroisements, lorsqu'on commence à saturer le couplage entre l'atome et le champ, ne subissent pas d'élargissement du même type et restent, pour des intensités de radiofréquence relativement importantes, beaucoup plus fines que les résonances magnétiques ordinaires (on peut dire encore qu'elles sont associées à des transitions virtuelles de radiofréquence qui n'affectent pas la durée de vie des niveaux atomiques).

Enfin, les différents croisements et anticroisements du diagramme se déplacent en général dans le champ statique H_0 lorsque l'amplitude de la radiofréquence augmente; ces déplacements sont liés à des transitions virtuelles de radiofréquence qui perturbent les niveaux d'énergie du diagramme. On explique et on calcule ainsi beaucoup plus simplement que dans le formalisme classique les

déplacements BLOCH-SIEGERT (²⁸) bien connus des divers types de résonances magnétiques.

4. *Prévision d'effets originaux suggérés par le point de vue quantique.*

Si le formalisme quantique nous conduisait simplement à voir sous un éclairage différent des effets déjà connus, son intérêt resterait académique. Son avantage essentiel est sans doute de permettre, par la simplification qu'il apporte à la théorie, de prévoir des phénomènes nouveaux qui, bien qu'également contenus dans le formalisme semi-classique, y sont souvent masqués par la complexité formelle des équations à résoudre.

Certaines caractéristiques des diagrammes d'énergie peuvent en effet refléter des propriétés physiques intéressantes du système étudié. En particulier, la pente à l'origine des niveaux d'énergie du diagramme en fonction du champ magnétique statique H_0 permet de définir un facteur de Landé pour le système "atome + champ" en interaction. L'étude de la déformation du diagramme lorsque le couplage entre l'atome et la radiofréquence augmente montre que, dans certains cas, on peut observer une modification, voire même une annulation de ce facteur de Landé et donc du moment magnétique du système sous l'effet de l'interaction entre l'atome et le champ de radiofréquence. Cette modification a été mise en évidence au cours de ce travail par une série d'expériences de pompage optique, très simples dans leur principe, qui ont permis de tester l'ensemble des propriétés paramagnétiques du système "atome + champ". C'est ainsi qu'ont été observés, entre autres effets, la modification de la dépolarisation magnétique (²⁹), de la précession de Larmor (³⁰), de l'effet Zeeman atomique (³¹), sous l'effet du couplage entre l'atome et un champ oscillant...

Les diagrammes d'énergie du système global sont également d'une grande utilité pour interpréter toute une série d'expériences que l'on peut réaliser sur un système atomique à l'aide d'un champ de radiofréquence A d'intensité quelconque et d'un deuxième champ B de faible intensité et de fréquence variable. On peut alors considérer que B est absorbé ou diffusé par le système constitué par l'atome en interaction avec les photons de A. Les différentes fréquences de Bohr de ce système constituent des fréquences de résonance possibles pour l'absorption et la diffusion du champ B... Une variante de ces expériences consiste à remplacer ce dernier champ par un faisceau optique modulé en intensité ou en polarisation à fréquence variable. On prévoit encore donc ces conditions, qui rappellent les expériences classiques de BELL et BLOOM (³²), une variation résonnante des signaux de détection optique lorsque la fréquence de modulation est égale à une

des fréquences de BOHR précédemment définies. De nombreuses expériences de ce type ont été réalisées au cours de ce travail (³⁰)(³¹)(³³). Elles nous ont permis, par la mesure des fréquences propres du système global "atome + champ A", de reconstituer expérimentalement son diagramme d'énergie et d'en prouver ainsi concrètement la réalité physique.

Pour être complet dans l'énumération que nous venons de faire des avantages du point de vue quantique, nous devons terminer par deux remarques. La première concerne l'évolution propre du champ de radiofréquence dans une expérience de Spectroscopie Hertzienne. On sait que ce champ subit, sous l'effet du couplage avec le milieu atomique, des modifications (absorption, amplification, dispersion, etc.) corollaires de celles qu'on observe sur les atomes. Le formalisme quantique, dans la mesure où il considère le champ, non pas comme une grandeur classique imposée de l'extérieur aux spins atomiques, mais plutôt comme une partie du système physique global, est particulièrement bien adapté pour l'étude de ces modifications. Cet avantage très appréciable du traitement quantique lorsqu'il s'agit de décrire le couplage du champ électromagnétique avec un milieu atomique relativement dense (³⁴), n'a pas été cependant déterminant dans notre travail où nous nous sommes limités à l'étude d'expériences réalisées sur des vapeurs atomiques à très faible pression, pour lesquelles on peut totalement négliger les modifications de la radiofréquence.

La deuxième remarque concerne plutôt une réserve que l'on pourrait faire au traitement quantique : on peut supposer que, soulignant l'aspect corpusculaire du champ électromagnétique, il n'est pas bien adapté à l'étude des effets de modulation liés à l'aspect "ondulatoire" et "cohérent" de la radiofréquence. Nous montrerons dans ce travail que cette réserve n'est pas justifiée. On peut en effet décrire quantiquement un champ de phase Φ bien définie en superposant des états à nombres n de photons différents. On construit ainsi des états quantiques cohérents (³⁵) pour lesquels les incertitudes conjuguées Δn et $\Delta \Phi$ sont minimisées. En étudiant le couplage de l'atome avec de tels états, on peut rendre compte très aisément des différents effets modulés liés à la cohérence du champ de radiofréquence.

LE CONCEPT D'ATOME HABILÉ PAR DES PHOTONS DE RADIOFREQUENCE

Le traitement quantique du champ électromagnétique permet, comme nous l'avons montré ci-dessus en détail, d'introduire dans le domaine des radiofréquences le langage des photons et d'illustrer les différents effets résonnants par des images physiques simples en termes de processus élémentaires d'absorption ou d'émission de quanta, généralement réservées au domaine de l'électrodynamique quantique. On est ainsi amené naturellement à considérer que le système physique étudié est un atome en train d'absorber et de réémettre en permanence, de façon réelle ou virtuelle, des photons de radiofréquence. L'analogie avec les particules de la théorie quantique des champs, en interaction continue avec les fluctuations du champ électromagnétique du vide est particulièrement frappante, la différence essentielle provenant du fait que le couplage avec le champ est stimulé dans le premier cas, spontané dans le second. Cette analogie nous a conduit, en empruntant le vocabulaire du problème à N corps, à appeler atome "habillé" par les photons de radiofréquence, ou plus simplement atome "habillé", le système constitué par l'atome et le champ quantifié en interaction. De même, ce champ sera souvent qualifié de champ "habillant". Ces dénominations traduisent plus qu'une similitude superficielle entre les deux types de phénomènes; en particulier, la modification du moment magnétique de l'atome habillé, que nous avons signalée plus haut, peut s'apparenter à la modification spontanée du moment magnétique de l'électron (³⁶) sous l'effet du couplage avec les fluctuations du vide (g - 2) ...

LE PLAN DE CE TRAVAIL

L'exposé qui va suivre comporte une partie théorique (chapitres I à VII) et une partie expérimentale (chapitres VIII à XI). Le premier chapitre sera consacré à une description générale du formalisme de l'atome habillé et à une interprétation qualitative dans ce formalisme des différents effets classiques ou nouveaux observés en Spectroscopie Hertzienne, sur lesquels nous aurons l'occasion de revenir plus en détail dans la suite de l'exposé. Nous nous proposerons ensuite de décrire quantitativement les expériences réalisées sur l'atome habillé. Il nous faut alors tenir compte explicitement du couplage des spins, non seulement avec la radiofréquence mais aussi avec un "réseau" responsable de leur pompage et de leur relaxation. Nous introduirons dans ce but les équations de BLOCH de l'atome habillé au chapitre II et montrerons au chapitre III comment on peut simplement, à l'aide

de ces équations, décrire l'évolution d'une observable atomique quelconque. Nous serons alors en mesure d'appliquer le formalisme à un certain nombre de problèmes particuliers : calcul explicite des signaux associés aux divers types de résonance magnétique de cohérence au chapitre IV, étude des propriétés magnétiques de l'atome habillé en champ statique faible au chapitre V où nous décrirons, parmi d'autres effets, la modification du moment magnétique que l'on peut alors observer. Le chapitre VI sera consacré au problème de l'interaction de l'atome habillé avec une deuxième onde électromagnétique dont on étudiera en détail l'absorption et la diffusion. Enfin, nous appliquerons, au chapitre VII, le formalisme de l'atome habillé à l'étude de la relaxation atomique en présence de champs de radiofréquence intenses.

Le premier chapitre expérimental (chapitre VIII) donnera une idée des conditions générales auxquelles doit satisfaire une expérience destinée à mettre clairement en évidence les effets nouveaux prévus dans la partie théorique de ce travail. Nous y montrerons l'intérêt présenté par les méthodes du pompage optique et donnerons une description générale des techniques expérimentales que nous avons utilisées. Les trois derniers chapitres présenteront l'ensemble des résultats expérimentaux que nous avons obtenus en étudiant, grâce au pompage optique, les propriétés d'isotopes impairs du mercure (chapitre IX) ou d'atomes alcalins (chapitres X et XI) habillés par un champ de radiofréquence : des expériences relatives aux résonances magnétiques de cohérence, aux propriétés magnétiques de l'atome habillé en champ faible, aux collisions d'échange de spin entre atomes alcalins habillés et au spectre hyperfin du rubidium 87 en interaction avec un champ de radiofréquence y seront décrites en détail et serviront d'illustration à la théorie de l'atome habillé.

C H A P I T R E I

- LE FORMALISME GENERAL DE L' ATOME HABILLE -

INTRODUCTION

Le but de ce chapitre est de donner un aperçu général sur le formalisme de l'atome habillé; nous y justifions l'intérêt de la quantification du champ électromagnétique pour la description de l'ensemble des propriétés d'un système atomique en interaction avec un champ de radiofréquence.

Lorsque ce champ est décrit quantiquement, nous avons vu que le système global "atome + radiofréquence" peut être considéré comme isolé et son évolution est alors régie par un hamiltonien indépendant du temps. Nous allons montrer qu'une interprétation simple et synthétique de l'ensemble des propriétés de l'atome habillé est possible à partir de l'étude des caractéristiques du diagramme d'énergie de ce hamiltonien. Ces caractéristiques - présence de croisements et d'anticroisements de niveaux, notamment - se rencontrent également sur les diagrammes d'énergie Zeeman d'un atome libre, en absence de radiofréquence. Il en résulte une certaine analogie entre les propriétés de l'atome habillé et celles de l'atome libre, qui permet d'établir un parallèle entre les expériences que nous allons décrire dans ce travail et des expériences bien connues de physique atomique.

Il nous a donc semblé utile de commencer ce chapitre par un rappel sur les diagrammes d'énergie atomiques ainsi que sur les liens existant entre ces diagrammes et les propriétés physiques de l'atome libre (§ I-A). Ce rappel nous permettra en effet de rendre plus claire et plus imagée la description de l'atome habillé dont nous aborderons ensuite l'étude : nous préciserons tout d'abord le formalisme que nous avons adopté en insistant sur la description quantique du champ de radiofréquence et de son couplage avec le système atomique (§ I-B). Puis, nous décrirons les diagrammes de niveaux d'énergie de l'atome habillé pour diverses polarisations du champ de radiofréquence (§ I-C) et montrerons (§ I-D) comment on peut, à partir de ces diagrammes, retrouver des effets physiques bien connus (résonance magnétique, transitions à plusieurs quanta (¹²)), interpréter des phénomènes résonnants plus nouveaux dont certains ont été observés pour la première fois au cours de ce travail (résonances magnétiques de

cohérence ⁽¹⁵⁾⁽¹⁶⁾⁽¹⁷⁾⁽¹⁸⁾⁽¹⁹⁾) et prévoir enfin des effets originaux (modification du moment magnétique de l'atome habillé ⁽²⁹⁾⁽³⁰⁾⁽³¹⁾, etc.). Nous montrerons enfin (§ I-E) comment l'absorption et la diffusion par le système d'une deuxième onde électromagnétique "sonde" permettent d'explorer directement et expérimentalement ces diagrammes. Nous pourrons donner à cette occasion une nouvelle interprétation de phénomènes classiques observés dans des expériences de double irradiation d'un système atomique par deux champs électromagnétiques (double résonance ⁽⁴⁾, doublement de raies AUTLER-TOWNES ⁽¹²⁾, etc.). Des effets nouveaux de modification du spectre Zeeman atomique produits par le couplage avec la radiofréquence ⁽³¹⁾ seront également mis en évidence et reliés très simplement aux propriétés des diagrammes d'énergie précédemment étudiés.

Remarque :

Dans ce chapitre, l'accent est mis sur les idées physiques. Les calculs seront donc évités dans la mesure du possible; ceux qui sont indispensables pour la description quantique du champ de radiofréquence ou la détermination des niveaux d'énergie de l'atome habillé ont déjà fait l'objet de nombreuses publications ⁽³⁷⁾⁽³⁸⁾⁽³⁹⁾ et sont résumés dans les Appendices I, II et III.

I-A. QUELQUES RAPPELS DE PHYSIQUE ATOMIQUE

Envisageons un système atomique dont l'hamiltonien dépend d'un champ magnétique statique H_0 et se met sous la forme générale :

$$\mathcal{H}(H_0) = \mathcal{H}_0(H_0) + \lambda V \quad (\text{I,A,1})$$

$\mathcal{H}_0(H_0)$ représente la partie "principale" de l'hamiltonien, qui seule dépend de H_0 . Nous appellerons $|a\rangle$, $|b\rangle$, ..., d'énergie $E_a(H_0)$, $E_b(H_0)$, ..., ses états propres que nous supposerons indépendants de H_0 . V décrit une "perturbation" à laquelle est soumis le système et λ une constante de couplage réelle ($0 \leq \lambda \leq 1$) mesurant l'intensité de cette perturbation. Supposons que, pour une certaine valeur $\overline{H_0}$ de H_0 , deux états propres de \mathcal{H}_0 , $|a\rangle$ et $|b\rangle$, se croisent :

$$E_a(\overline{H_0}) = E_b(\overline{H_0}) = \overline{E} \quad (\text{I,A,2})$$

Nous nous proposons de montrer comment la perturbation λV modifie les niveaux d'énergie au voisinage du champ $\overline{H_0}$. Nous serons alors amenés à introduire les notions importantes d'anticroisements et de croisements de niveaux et nous montrerons, en nous appuyant sur des exemples classiques comment les caractéristiques de ces croisements et anticroisements sont reliées simplement aux propriétés physiques du système atomique.

1) Etude des anticroisements de niveaux dans un cas simple

Supposons tout d'abord que la perturbation V possède un élément de matrice non nul (que nous supposerons, pour simplifier, réel positif) entre les deux niveaux qui se croisent :

$$\langle a|V|b \rangle = \mathcal{V} \neq 0 \quad (\text{I,A,3})$$

et ne couple par ailleurs ces niveaux à aucun autre :

$$\langle a|V|i \rangle = \langle b|V|i \rangle = 0 \text{ si } i \neq a, b \quad (\text{I,A,4})$$

Nous sommes alors ramenés à un simple problème à deux niveaux, entièrement soluble, pour le calcul des états propres de \mathcal{H} au voisinage du champ $\overline{H_0}$: sous l'effet de V , les deux niveaux $|a \rangle$ et $|b \rangle$ vont se repousser suivant les deux branches d'une hyperbole pour constituer un anticroisement de niveaux centré en $\overline{H_0}$ (voir figure n° 1-a). Les niveaux d'énergie de l'anticroisement s'obtiennent en diagonalisant la perturbation λV à l'intérieur du sous-espace $|a \rangle, |b \rangle$. On obtient immédiatement l'expression des énergies E_{\pm} des deux branches de l'anticroisement :

$$E_{\pm} = \frac{E_a + E_b}{2} \pm \frac{1}{2} \sqrt{(E_a - E_b)^2 + 4\lambda^2 \mathcal{V}^2} \quad (\text{I,A,5})$$

et celle des états propres correspondants :

$$\begin{cases} |+\rangle = -\sin \frac{\theta}{2} |a\rangle + \cos \frac{\theta}{2} |b\rangle \\ |-\rangle = \cos \frac{\theta}{2} |a\rangle + \sin \frac{\theta}{2} |b\rangle \end{cases} \quad (\text{I,A,6})$$

θ étant défini par la relation :

$$\operatorname{tg} \theta = \frac{2\lambda \mathcal{V}}{E_a - E_b} \quad (-\pi < \theta \leq 0) \quad (\text{I,A,7})$$

La distance minimale des deux niveaux E_+ et E_- qui mesure la "force" A de l'anticroisement est égale à $2\lambda \mathcal{V}$. Les états propres du système sont des combinaisons linéaires des états "non perturbés" $|a\rangle$ et $|b\rangle$ qui varient de façon importante lorsqu'on balaye le champ magnétique autour de la valeur $\overline{H_0}$. A cet anticroisement de niveaux dans le diagramme d'énergie de \mathcal{H} sont associés de nombreux phénomènes physiques que nous allons maintenant passer en revue.

a) Battement quantique associé à l'anticroisement

Si on prépare à l'instant $t = 0$ le système dans l'état non perturbé $|a\rangle$, on a à l'instant t une probabilité $P_{a \rightarrow b}(t)$ de le trouver dans l'état $|b\rangle$. Cette probabilité se calcule aisément en inversant la formule (I,A,6). A $t = 0$, le système se trouve en effet dans l'état :

$$|a\rangle = -\sin \frac{\theta}{2} |+\rangle + \cos \frac{\theta}{2} |-\rangle$$

qui devient, à l'instant t ^(*) :

$$|a(t)\rangle = -\sin \frac{\theta}{2} e^{-iE_+t} |+\rangle + \cos \frac{\theta}{2} e^{-iE_-t} |-\rangle \quad (\text{I,A,8})$$

d'où finalement :

$$P_{a \rightarrow b}(t) = |\langle b|a(t)\rangle|^2 = \sin^2 \theta \sin^2 \left(\frac{E_+ - E_-}{2} t \right) \quad (\text{I,A,9})$$

$P_{a \rightarrow b}(t)$ oscille à la fréquence de Bohr correspondant à l'écart des deux branches de l'anticroisement. Cette fréquence est minimale et égale à $\frac{A}{2\pi}$ au point d'anticroisement $\overline{H_0}$; l'amplitude des oscillations est résonnante en ce point ($\sin \theta = 1$). Les oscillations que nous venons de décrire portent le nom de "battements quantiques" et sont souvent observées en physique atomiques : c'est le cas, par exemple, de l'oscillation détectée entre niveaux de parité opposée $nS_{1/2}$ et $nP_{1/2}$ d'atomes hydrogénoïdes. Certains de ces niveaux croisent en effet pour des valeurs précises du champ magnétique et peuvent être couplés entre eux par un champ électrique; on observe alors sur un jet d'atomes préparé dans l'état métastable $nS_{1/2}$ une modulation le long du jet de la lumière de fluorescence, chaque atome n'émettant que lorsqu'il se trouve dans l'état instable $nP_{1/2}$ ⁽⁴⁰⁾.

(*) On adoptera dans cette étude la convention $\hbar = 1$, ce qui nous permet, comme nous faisons dans l'équation (I,A,8), d'assimiler les pulsations aux énergies.

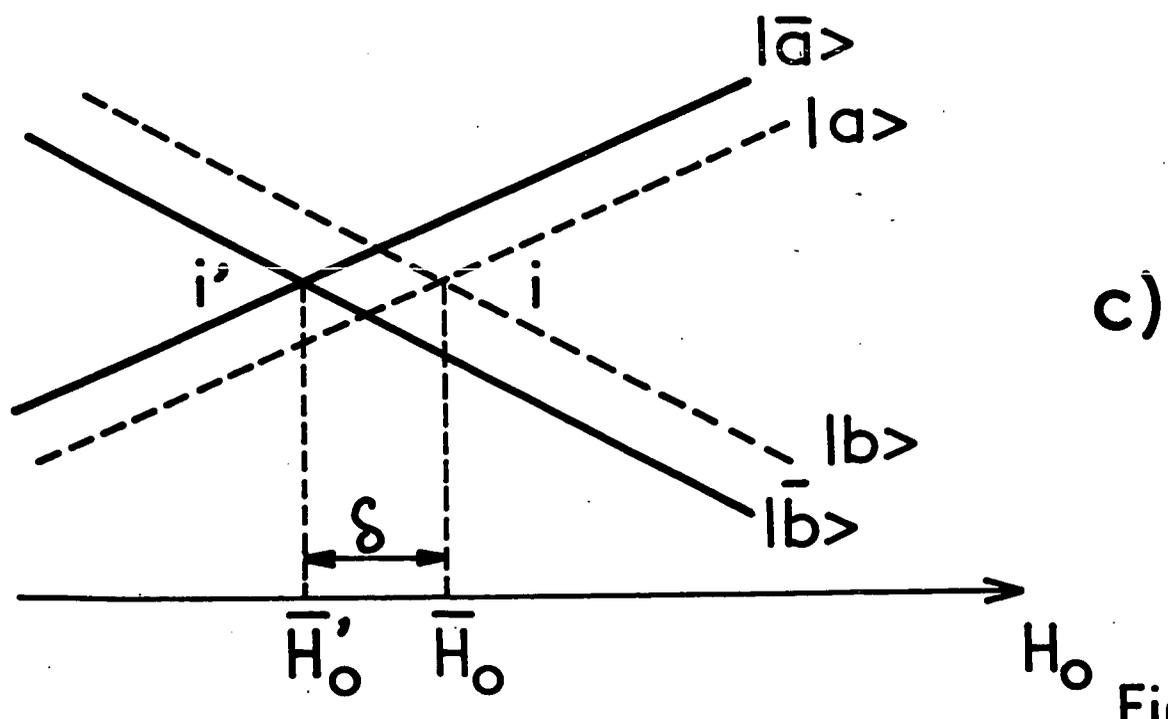
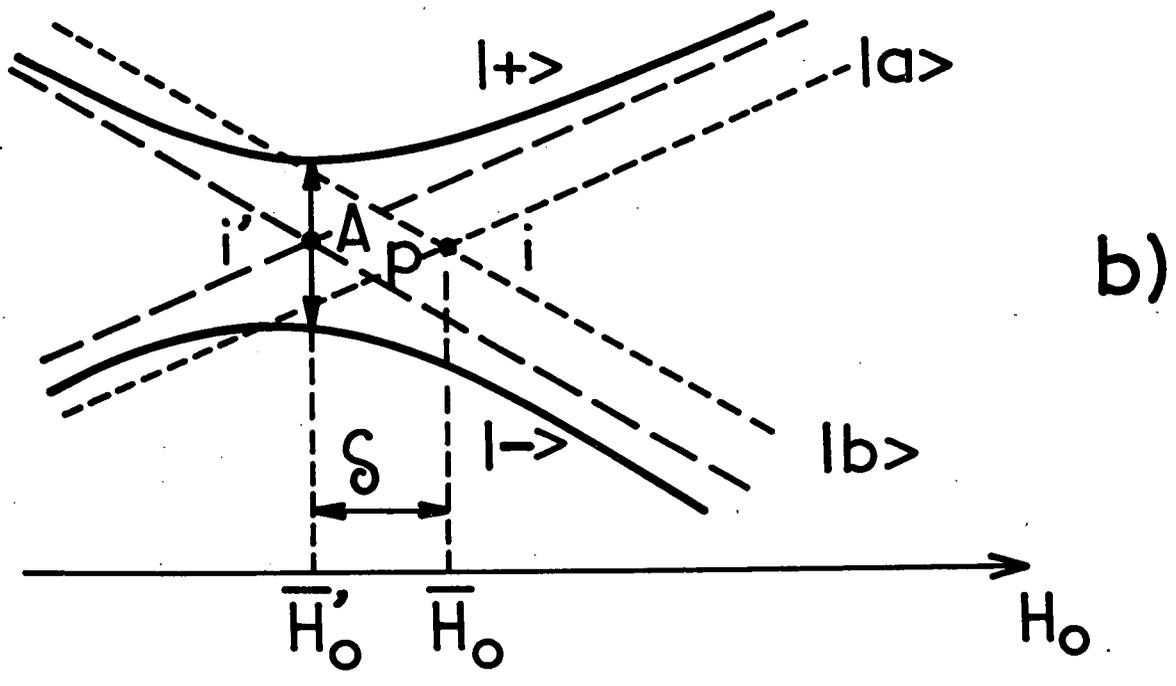
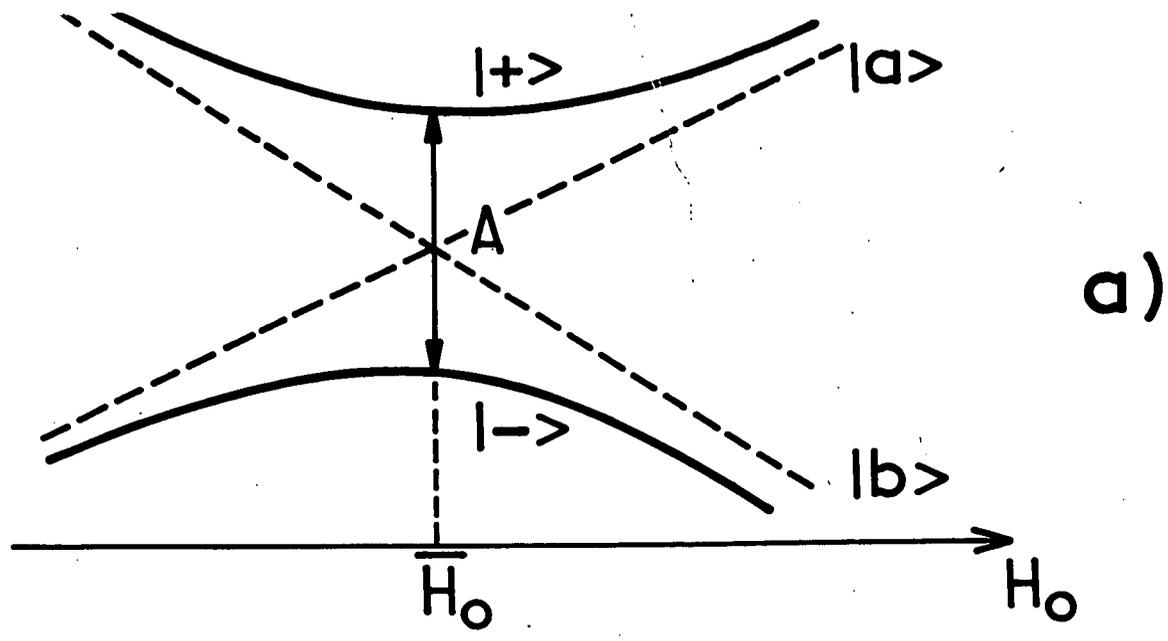


Fig - 1

b) Résonance associée à l'anticroisement

Supposons que l'on prépare des atomes de façon continue au cours du temps dans l'état non perturbé $|a\rangle$ et que les niveaux possèdent une durée de vie finie $1/\Gamma$. Si l'on mesure la population du niveau $|b\rangle$, le signal détecté sera proportionnel à la probabilité de transition (I,A,9) moyennée sur la durée de vie des atomes :

$$\bar{P}_{a \rightarrow b} = \int_0^{\infty} \Gamma e^{-\Gamma t} P_{a \rightarrow b}(t) dt = \frac{A^2}{\Gamma^2 + A^2 + (E_a - E_b)^2} \quad (\text{I,A,10})$$

Le signal subit ainsi une variation résonnante, de forme Lorentzienne, lorsqu'on balaie le champ autour de $\overline{H_0}$. La largeur en champ magnétique de la résonance est proportionnelle à $\sqrt{\Gamma^2 + A^2}$ et dépend donc de l'intensité du couplage responsable de l'anticroisement. Des résonances de ce type ont été observées expérimentalement sur des niveaux atomiques excités possédant une structure hyperfine : $|a\rangle$ et $|b\rangle$ sont alors les niveaux $|m_I, m_J\rangle$ et $|m_I \pm 1, m_J \mp 1\rangle$ de la base "découplée" des états électroniques et nucléaires (m_I et m_J sont les projections le long de H_0 des moments cinétiques respectifs du noyau et des électrons). La transition $|a\rangle \rightarrow |b\rangle$ correspond à un transfert d'orientation entre le spin électronique et le spin nucléaire sous l'effet du couplage hyperfin. Ce transfert d'orientation est résonnant aux anticroisements de niveaux du diagramme Zeeman de structure hyperfine. Il permet d'expliquer la possibilité d'orienter par pompage optique le spin nucléaire de certains éléments (⁴¹).

c) Balayage adiabatique de l'anticroisement

On peut associer d'une autre façon l'anticroisement à une probabilité de transition entre les deux niveaux $|a\rangle$ et $|b\rangle$: préparons dans un champ $H_0 \gg \overline{H_0}$, le système dans l'état non perturbé $|a\rangle$. Cet état se trouve alors pratiquement confondu avec l'état "perturbé" $|+\rangle$ (cf. figure n° 1-a). Balayons ensuite le champ H_0 jusqu'à la valeur $\overline{H_0}$ et au-delà jusqu'à une valeur $H_0 \ll \overline{H_0}$. Si le temps caractéristique T du balayage est grand devant $1/A$, l'approximation adiabatique (⁴²) est valable : le système suit continûment le même niveau d'énergie $|+\rangle$ si bien que l'on se trouve à la fin du balayage toujours sur la même branche de l'anticroisement, mais dans un état très voisin de $|b\rangle$. Si le système possède une durée de vie $1/\Gamma$ et si la condition $A \gg \Gamma$ est remplie, il est possible d'effectuer ce balayage en un temps T vérifiant la double condition :

$$\frac{1}{A} \ll T \ll \frac{1}{\Gamma} \quad (\text{I,A,11})$$

(I,A,11) exprime que l'approximation adiabatique est applicable et que le système n'a pas le temps de relaxer pendant l'expérience, d'où le nom de passage adiabatique rapide donné à cette technique qui est d'un usage classique en physique atomique (⁴²).

d) Branchement adiabatique du couplage

Nous allons enfin décrire un dernier type d'expérience qui va nous permettre d'associer à l'anticroisement les notions importantes de transitions réelles et virtuelles : supposons qu'au lieu de balayer adiabatiquement le champ H_0 , on laisse ce champ fixe mais qu'on "branche" et qu'on "débranche" le couplage λ (ceci peut être réalisé physiquement en faisant pénétrer les atomes lentement dans une région où le couplage augmente, puis diminue, le champ magnétique gardant dans tout l'espace la même valeur). Si les niveaux ont une durée de vie $1/\Gamma$, il faudra effectuer cette opération en un temps $T \ll \frac{1}{\Gamma}$. L'évolution exacte du système va dépendre de façon cruciale de la façon dont le couplage entre l'atome et la radiofréquence est introduit, puis supprimé. Nous supposerons ici qu'il l'est de façon exponentielle :

$$\begin{aligned} \lambda(t) &= \lambda e^{t/T} & \text{si } t < 0 \\ \lambda(t) &= \lambda e^{-t/T} & \text{si } t > 0 \end{aligned} \quad (\text{I,A,12})$$

ce qui est la manière la plus "progressive" de brancher, puis de débrancher la perturbation entre l'atome et le champ. On peut alors montrer (⁴³) que deux cas limites vont se présenter :

• α) Si l'on se trouve suffisamment loin du champ $\overline{H_0}$ (par exemple $H_0 \gg \overline{H_0}$) pour que la condition :

$$|E_a - E_b| \gg \frac{1}{T} \gg \Gamma \quad (\text{I,A,13})$$

soit satisfaite, on peut appliquer l'approximation adiabatique quelle que soit l'amplitude maximale du couplage : le système va passer continûment de l'état $|a\rangle$ à l'état perturbé $|+\rangle$, puis lorsqu'on débranchera λ , il reviendra adiabatiquement à l'état $|a\rangle$: la transformation globale subie par le système est reversible et il ne s'est pas produit de transition réelle à la fin de l'opération. Cependant, au cours du processus de branchement et de débranchement de la perturbation, la

probabilité $|\langle b|+ \rangle|^2$ de trouver le système dans l'état $|b \rangle$ est non nulle : nous dirons que la contamination réversible de l'état $|+ \rangle$ par l'état $|b \rangle$ est due à des transitions virtuelles, qui ne conservent pas l'énergie ($E_a - E_b \gg \Gamma$), entre les états $|a \rangle$ et $|b \rangle$.

•β) Si, au contraire, le champ H_0 est suffisamment voisin de $\overline{H_0}$ pour que la condition (I,A,13) ne soit pas satisfaite, le temps de branchement n'est plus assez long pour que l'approximation adiabatique soit applicable et la fonction d'onde du système va se décomposer sur l'ensemble des deux niveaux perturbés $|+ \rangle$ et $|- \rangle$ de l'anticroisement. A l'issue du débranchement, le système va alors se retrouver dans une superposition linéaire de $|a \rangle$ et de $|b \rangle$ et la probabilité d'avoir effectué une transition vers l'état $|b \rangle$ sera non nulle : le point d'anticroisement se trouve ainsi associé à une probabilité de transition irréversible entre les deux états non perturbés : nous dirons que la contamination irréversible des états $|\pm \rangle$ par les états $|a \rangle$ et $|b \rangle$ est due à l'existence de transitions réelles entre ces états. Il apparaît clairement, d'après ces définitions, que le passage entre transitions réelles et virtuelles s'effectue de façon continue lorsque la distance des niveaux non perturbés couplés entre eux devient de l'ordre de leur largeur naturelle.

2) Etude des anticroisements de niveaux dans le cas général

Supposons à présent que les deux niveaux $|a \rangle$ et $|b \rangle$ sont couplés par V à d'autres niveaux $|i \rangle$. Le couplage entre les niveaux qui se croisent peut, dans ce cas, être indirect et s'effectuer via un certain nombre d'états intermédiaires d'énergie différente. Le calcul des niveaux d'énergie de \mathcal{H} nécessite alors un traitement de perturbation de niveaux dégénérés dont nous rappelons les grandes lignes en Appendice II. Nous nous contenterons ici d'en donner les résultats en insistant sur leur contenu physique : au voisinage du point de croisement des niveaux $|a \rangle$ et $|b \rangle$, l'effet de V peut être séparé en deux parties dont l'interprétation est très claire.

a) Déplacement de l'anticroisement

Sous l'effet du couplage avec tous les niveaux $|i \rangle$ différents de $|a \rangle$ et de $|b \rangle$, le niveau $|a \rangle$ ($|b \rangle$) se trouve déplacé d'une quantité $\overline{R_{aa}}$ ($\overline{R_{bb}}$), généralement du second ordre en λV , dont l'expression est analogue à celle de l'énergie perturbée dans la théorie classique des perturbations non dégénérées :

$$\overline{R_{aa}} = \sum_{i \neq a,b} \frac{\langle a|\lambda V|i \rangle \langle i|\lambda V|a \rangle}{\overline{E} - E_i} \quad , \quad \overline{R_{bb}} = \sum_{i \neq a,b} \frac{\langle b|\lambda V|i \rangle \langle i|\lambda V|b \rangle}{\overline{E} - E_i} \quad (\text{I,A,14})$$

Ce déplacement correspondant à la partie non résonnante du couplage est lié aux transitions virtuelles induites par l'interaction V entre le niveau $|a\rangle$ ($|b\rangle$) et tous les niveaux $|i\rangle$ d'énergie différente. Sous l'effet de ce couplage, les niveaux $|a\rangle$ et $|b\rangle$ (traits pointillés sur la figure 1-b) qui se croisaient en I dans le champ \overline{H}_0 sont déplacés (traits discontinus) et viennent se croiser en I' dans le champ \overline{H}_0' , décalé par rapport à \overline{H}_0 d'une quantité δ du second ordre en V .

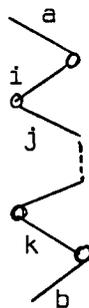
b) Force de l'anticroisement

D'autre part, le couplage entre les niveaux $|a\rangle$ et $|b\rangle$ qui se croisent est, à l'ordre le plus bas en V , décrit par l'élément non diagonal de la "matrice de déplacement" (cf. Appendice II) :

$$\overline{R}_{ab} = \sum_{\substack{ij\dots k \\ \neq a,b}} \frac{\langle a|\lambda V|i\rangle \langle i|\lambda V|j\rangle \dots \langle k|\lambda V|b\rangle}{(\overline{E} - E_i)(\overline{E} - E_j) \dots (\overline{E} - E_k)} \quad (I,A,15)$$

qui relie $|a\rangle$ à $|b\rangle$ à l'ordre minimum en λ en passant par tous les niveaux intermédiaires autres que $|a\rangle$ et $|b\rangle$.

Si à un ordre p donné en λ , \overline{R}_{ab} est différent de zéro, il existe un couplage résonnant induit entre les niveaux $|a\rangle$ et $|b\rangle$ par l'intermédiaire de $p-1$ niveaux d'énergie différente. Ce couplage résonnant traduit la possibilité de transitions réelles induites par V entre les niveaux $|a\rangle$ et $|b\rangle$. Il est possible de symboliser ces transitions en associant à chacun des termes de la somme (I,A,15) un diagramme qui, lu de bas en haut, "visualise" en quelque sorte la chaîne des états intermédiaires permettant de passer de $|b\rangle$ à $|a\rangle$ au cours de la transition :



Un tel diagramme est relié de façon univoque à chacun des termes du développement (I,A,15), chaque vertex (rond) étant associé à l'élément de matrice correspondant de λV et chaque état intermédiaire $|i\rangle$ entre deux vertex étant relié au "propagateur" $\frac{1}{\overline{E} - E_i}$ correspondant. Le couplage entre les niveaux $|a\rangle$ et $|b\rangle$ décrit par

ces diagrammes va donner lieu à un anticroisement d'ordre p au voisinage du champ $\overline{H_0}$: les niveaux déplacés par les transitions virtuelles (traits interrompus sur la figure 1-b) vont en effet se repousser suivant les deux branches d'une hyperbole (traits pleins) pour constituer un anticroisement centré en I', les niveaux d'énergie s'écrivant :

$$E_{\pm} = \frac{E_a + E_b + \overline{R_{aa}} + \overline{R_{bb}}}{2} \pm \frac{1}{2} \sqrt{(E_a + \overline{R_{aa}} - E_b - \overline{R_{bb}})^2 + 4|\overline{R_{ab}}|^2} \quad (\text{I,A,16})$$

La distance minimale A_p des deux niveaux qui s'anticroisent est égale à $2|\overline{R_{ab}}|$ et est donc proportionnelle à λ^p . Quant aux états propres de \mathcal{H} au voisinage de I', ils sont à l'ordre zéro en λ qui, seul, nous intéressera ici, constitués par une combinaison linéaire des deux états $|a\rangle$ et $|b\rangle$ non perturbés que l'on met sous une forme identique à (I,A,6) à condition de remplacer θ (défini par (I,A,7)) par l'angle θ_p défini par :

$$\text{tg } \theta_p = \frac{2\overline{R_{ab}}}{E_a + \overline{R_{aa}} - E_b - \overline{R_{bb}}} \quad (-\pi < \theta_p \leq 0) \quad (\text{I,A,17})$$

La plupart des résultats physiques établis pour un anticroisement simple au § I-A-1 se généralisent aux anticroisements étudiés ici à condition de remplacer dans les formules θ par θ_p et A par A_p (*)

3) Etude générale des croisements de niveaux

a) Définitions : Croisements de 1ère et de 2e espèce

Envisageons à présent un croisement de deux niveaux $|a\rangle$ et $|b\rangle$ de \mathcal{H}_0 qui ne peuvent être couplés entre eux à aucun ordre par V. Il faut, pour cela, non seulement que le couplage direct $\langle a|V|b\rangle$ s'annule, mais aussi que le couplage indirect, induit entre $|a\rangle$ et $|b\rangle$ aux ordres supérieurs de la perturbation via tous les états intermédiaires $|i\rangle$, $|j\rangle$, $|k\rangle$ possibles, soit égal à zéro. Dans ce cas, les niveaux $|a\rangle$ et $|b\rangle$ éventuellement déplacés par les

(*) La seule propriété délicate à étendre concerne le branchement adiabatique de la perturbation (cf. § I-A-1-d); en effet, au cours de ce branchement, le point d'anticroisement va généralement subir un déplacement et la condition d' "adiabaticité" ne pourra plus se mettre sous une forme simple du type (I,A,13). Nous n'étudierons pas ici ce problème.

transitions virtuelles dont l'effet est décrit par (I,A,14) viennent se croiser en I' pour constituer un croisement de niveaux de l'hamiltonien \mathcal{H} (voir figure n° 1-c). La condition $\overline{R}_{ab} = 0$ peut être vérifiée à tous les ordres dans deux cas de natures très différentes :

•α) Il peut tout d'abord arriver, en raison des règles de sélection satisfaites par V, que le produit des éléments de matrice au numérateur de (I,A,15) soit toujours identiquement nul : il suffit par exemple pour se trouver dans une telle situation que V soit une perturbation paire et $|a\rangle$ et $|b\rangle$ des niveaux de parités opposées : chacun des termes de la somme (I,A,15) est alors séparément nul et le couplage entre les niveaux $|a\rangle$ et $|b\rangle$ est, pour des raisons de symétrie, nul à tous les ordres : nous dirons, dans ce cas, que le croisement de niveaux est de première espèce. Les états propres $|\overline{a}\rangle$ et $|\overline{b}\rangle$ de l'hamiltonien \mathcal{H} au voisinage du croisement sont donnés par des développements classiques en série de perturbation :

$$\left\{ \begin{array}{l} |\overline{a}\rangle = C_a |a\rangle + \sum_i C_i |i\rangle \\ |\overline{b}\rangle = C_b |b\rangle + \sum_j C_j |j\rangle \end{array} \right. \quad (i \neq j \text{ quels que soient } i \text{ et } j) \quad (I,A,18)$$

dans lesquels C_a et C_b sont des facteurs de normalisation voisins de l'unité et les C_i et C_j des coefficients de contamination proportionnels aux différentes puissances de λ qui traduisent l'effet sur les états $|\overline{a}\rangle$ ($|\overline{b}\rangle$) des transitions virtuelles induites par le couplage entre $|a\rangle$ (ou $|b\rangle$) et les états $|i\rangle$ et $|j\rangle$ d'énergie différente. Les sommations sur $|i\rangle$ dans le développement de $|\overline{a}\rangle$ et sur $|j\rangle$ dans le développement de $|\overline{b}\rangle$ portent sur des espaces complémentaires disjoints et ne peuvent contenir aucun état commun, en raison des règles de sélection satisfaites par V.

•β) Il peut arriver également que le produit des éléments de matrice au numérateur de chacun des termes de (I,A,15) ne soit pas nul, mais que la somme des différents termes qui porte sur tous les états intermédiaires possibles s'annule au point de croisement, et cela à tous les ordres de la perturbation. En d'autres termes, le couplage entre les états $|a\rangle$ et $|b\rangle$ s'annule alors par un effet d'interférence destructive entre tous les chemins possibles allant de $|a\rangle$ à $|b\rangle$. Nous dirons dans ce cas que le croisement de niveaux est de 2e espèce. Les états propres de l'Hamiltonien \mathcal{H} au voisinage du croisement sont encore donnés par des expressions de la forme (I,A,18), mais les règles de sélection satisfaites par V n'interdisent plus aux développements de $|\overline{a}\rangle$ et de $|\overline{b}\rangle$ de contenir des niveaux $|i\rangle$

communs. Nous aurons l'occasion de rencontrer, dans la suite de ce travail, des croisements de niveaux correspondant aux deux espèces que nous venons de définir. Dans tous les cas, le couplage entre les niveaux non perturbés $|a\rangle$ et $|b\rangle$ n'existant plus, toutes les probabilités de transition que nous avons pu associer à un anticroisement de niveaux sont à présent nulles. Cependant, il apparaît dans le diagramme d'énergie une caractéristique nouvelle importante : l'annulation d'une des fréquences de Bohr du système atomique; cette annulation correspond à l'existence d'une composante statique au croisement de niveaux pour toute observable atomique ayant un élément de matrice non nul entre les niveaux qui se croisent (nous appellerons une telle observable grandeur transversale). Ce phénomène entraîne les conséquences physiques suivantes.

b) Oscillations quantiques associées au croisement de niveaux

Supposons que l'on prépare à l'instant $t = 0$ le système atomique dans une superposition cohérente $C_a |\bar{a}\rangle + C_b |\bar{b}\rangle$ de deux niveaux perturbés qui se croisent. Cette superposition va évoluer au cours du temps. Si l'on détecte une grandeur transversale G_T possédant un élément de matrice non nul entre les états $|\bar{a}\rangle$ et $|\bar{b}\rangle$, on observera sur le signal une composante

$$\langle G_T \rangle_{\bar{a} \bar{b}} = \operatorname{Re} C_a^* C_b \langle \bar{a} | G_T | \bar{b} \rangle e^{i\overline{\omega_{ab}t}} \quad (I,A,19)$$

modulée à la fréquence de Bohr $\frac{\overline{\omega_{ab}}}{2\pi} = \frac{E_{\bar{a}} - E_{\bar{b}}}{2\pi}$. La fréquence de cette modulation s'annule notamment au croisement de niveaux. On peut donner un exemple simple d'une telle situation : si, au voisinage du croisement en champ nul des sous-niveaux Zeeman d'un niveau atomique paramagnétique, on introduit à l'instant $t = 0$ une composante transversale du moment magnétique, on observera la précession de Larmor de cette composante à la fréquence de Bohr $\omega_0 = -g\mu_B H_0$ du système (g est le facteur de Landé du niveau et μ_B le magnéton de Bohr).

Remarquons bien que les oscillations quantiques associées aux anticroisements et croisements de niveaux ont des caractéristiques nettement différentes :

- Alors que les premières s'observent si l'on excite et détecte les populations des niveaux atomiques non perturbés qui s'anticroisent, les secondes ne peuvent s'observer que si l'on excite et détecte des cohérences entre les niveaux atomiques perturbés qui se croisent.

- La fréquence de battement associée à un anticroisement passe par un minimum non nul au point d'anticroisement, alors que la fréquence d'oscil-

lation associée à un croisement s'annule rigoureusement au point de croisement.

- Alors que l'amplitude du battement associé à l'anticroisement subit une variation résonnante au voisinage de l'anticroisement, il n'en est pas de même pour l'oscillation associée au croisement (en effet les états propres $|\bar{a}\rangle$ et $|\bar{b}\rangle$ ne subissent aucune variation résonnante autour du point de croisement).

c) Résonance de cohérence

Si l'on excite de façon continue les atomes dans une superposition cohérente des états $|\bar{a}\rangle$ et $|\bar{b}\rangle$ et si ces atomes possèdent une durée de vie finie $1/\Gamma$, on ne peut observer, à un instant t donné, que la valeur moyenne $\langle \overline{G_T} \rangle_{\bar{a}\bar{b}}$ de la grandeur transversale détectée sur l'ensemble des atomes excités avant l'instant t :

$$\langle \overline{G_T} \rangle_{\bar{a}\bar{b}} = \int_0^\infty \Gamma e^{-\Gamma t} \langle G_T \rangle_{\bar{a}\bar{b}} dt = \operatorname{Re} C_a^* C_b \frac{\Gamma \langle \bar{a} | G_T | \bar{b} \rangle}{\Gamma - i \overline{\omega_{ab}}} \quad (\text{I,A,20})$$

$\langle \overline{G_T} \rangle$ présente alors une variation résonnante lorsqu'on balaie le champ H_0 autour du point de croisement. L'interprétation de cet effet résonnant est très claire : aussitôt après avoir été introduite sur un atome donné, la grandeur transversale G_T se met à précesser à la fréquence de Bohr $\overline{\omega_{ab}}/2\pi$ et s'amortit avec une constante de temps $1/\Gamma$. Au voisinage du point de croisement ($\overline{\omega_{ab}} \lesssim \Gamma$) l'angle dont tourne $\langle G_T \rangle$ pendant la durée de vie de chaque atome est faible (très inférieur à 2π) et les contributions au signal global à l'instant t des différents atomes préparés avant cet instant (pratiquement pendant un temps de l'ordre de $1/\Gamma$ avant t) s'ajoutent avec un déphasage très faible. Au contraire, loin du point de croisement ($\overline{\omega_{ab}} \gg \Gamma$), l'angle de précession de $\langle G_T \rangle$ pendant la durée de vie atomique est très grand (supérieur à 2π) et les contributions au signal de tous les atomes pompés avant l'instant t se détruisent par interférence car leur phase est pratiquement répartie de façon uniforme de 0 à 2π . La "résonance de cohérence" correspond donc à une accumulation de la grandeur transversale au voisinage du point de croisement des niveaux d'énergie. Cette accumulation est résonnante sur une largeur caractéristique proportionnelle à Γ qui correspond en fait au domaine de champ magnétique pour lequel les deux niveaux qui se croisent sont confondus à leur largeur naturelle près.

Il existe de ces résonances de nombreux exemples en physique atomique : c'est ainsi que si l'on introduit de façon continue de la cohérence Zeeman dans une vapeur atomique paramagnétique, on observera une variation réson-

nante autour du champ nul de la valeur moyenne dans la vapeur des composantes transversales du moment magnétique : c'est l'effet Hanle ⁽⁴⁴⁾⁽⁴⁵⁾ bien connu de dépolarisation magnétique.

Les résonances de cohérence ne s'observent que pour une excitation et une détection cohérentes du système atomique. Leur largeur, proportionnelle à Γ , est en général beaucoup plus faible que celle des résonances d'anticroisement, proportionnelle à $\sqrt{\Gamma^2 + A_p^2}$. L'effet résonnant est lié ici uniquement à la variation de l'énergie du système au voisinage du croisement de niveaux, alors que la résonance d'anticroisement provient à la fois d'une variation des énergies et d'une modification rapide des fonctions d'onde autour du point d'anticroisement.

4) Rappel sur les méthodes spectroscopiques d'exploration des diagrammes d'énergie atomiques

Nous avons montré, aux paragraphes précédents, comment les propriétés physiques d'un système atomique pouvaient s'analyser simplement à partir de son diagramme de niveaux d'énergie. Nous nous proposons à présent de rappeler brièvement les diverses méthodes de spectroscopie qui permettent de déterminer expérimentalement ce diagramme.

Ces méthodes reposent toutes sur l'utilisation d'un champ électromagnétique "sonde", d'intensité supposée très faible qui, en perturbant le moins possible le système mesuré, donne, par son absorption ou sa diffusion, des renseignements quantitatifs sur la position des niveaux d'énergie et leurs fonctions d'onde. Deux méthodes complémentaires peuvent être employées : si le champ "sonde" est monochromatique, nous pouvons étudier directement son spectre d'absorption; si la répartition spectrale du champ "sonde" est, au contraire, étendue (excitation par une raie large), nous nous intéresserons à sa diffusion par le système atomique.

a) Etude directe par le spectre d'absorption

Nous supposerons que l'on envoie sur le système une onde monochromatique de pulsation Ω . Le hamiltonien de couplage de cette onde avec le système atomique peut s'écrire de façon générale :

$$\mathcal{H}_1(t) = \mathcal{E} \vec{e} \cdot \vec{D} e^{-i\Omega t} + \text{c.c.} \quad (\text{I,A,21})$$

Dans (I,A,21), \vec{D} est, suivant les exemples envisagés, l'opérateur dipolaire

électrique ou dipolaire magnétique de l'atome. \mathcal{E} est l'amplitude du champ -électrique ou magnétique de l'onde- et \vec{e} sa polarisation. Si le champ "sonde" est suffisamment peu intense, on sait qu'il perturbera très peu les niveaux atomiques et sera absorbé lorsque sa pulsation sera (à la largeur naturelle Γ des niveaux près) égale à une pulsation de Bohr $\overline{\omega}_{\mu\nu}$ associée à un couple de deux niveaux $|\bar{\mu}\rangle$ et $|\bar{\nu}\rangle$ de l'hamiltonien \mathcal{H}_0 :

$$\Omega = E_{\bar{\mu}} - E_{\bar{\nu}} = \overline{\omega}_{\mu\nu} \quad (\text{I,A,22})$$

l'intensité $I_{\mu\nu}$ de la résonance sera proportionnelle au carré de l'élément de matrice de $\vec{e} \cdot \vec{D}$ entre les états atomiques correspondants :

$$I_{\mu\nu} = c^{te} \mathcal{E}^2 |\langle \bar{\mu} | \vec{e} \cdot \vec{D} | \bar{\nu} \rangle|^2 \quad (\text{I,A,23})$$

elle dépendra donc de l'intensité et de la polarisation de l'onde excitatrice. En balayant la fréquence Ω pour diverses polarisations \vec{e} , on pourra ainsi mesurer directement les énergies du système atomique et obtenir des renseignements précis sur ces fonctions d'onde. Enfin, les largeurs des raies d'absorption donneront des indications précises sur la durée de vie des niveaux atomiques. L'étude directe du spectre d'absorption telle que nous venons de la décrire n'est, en général, possible que dans le domaine des radiofréquences (spectroscopie hertzienne). En effet, pour ces expériences, il faut disposer d'ondes monochromatiques à fréquence variable difficiles à réaliser dans le domaine optique avec des sources conventionnelles dont la fréquence est peu accordable et dont la largeur d'origine Doppler (*) est en général très grande devant la largeur naturelle Γ des niveaux atomiques étudiés.

On peut cependant, dans le domaine optique, obtenir des renseignements intéressants sur les croisements et anticroisements de niveaux, en étudiant les propriétés de la lumière diffusée par l'atome :

(*) Même si l'on dispose d'une excitation monochromatique (laser), il faut tenir compte de la dispersion $\Delta\nu_D$ des fréquences d'absorption liée à l'existence de l'effet Doppler pour les atomes soumis à l'action du champ "sonde". Cette dispersion de fréquences, particulièrement importante dans le domaine optique, devient en général négligeable devant Γ dans le domaine des ondes hertziennes.

b) Etude indirecte par diffusion de la lumière

Nous supposons à présent que l'état atomique étudié est un état excité qui peut être atteint par excitation optique à partir d'un état fondamental $|f\rangle$. Nous supposons que la raie excitatrice, de polarisation \vec{e} est constituée par une superposition incohérente d'ondes monochromatiques, de pulsation Ω_k , le profil $u(\Omega_k)$ de la raie ayant une largeur Δ grande devant la structure énergétique de l'état excité (voir figure n° 2). Dans ces conditions, le passage d'un train d'onde sur un atome s'effectue en un temps $1/\Delta$ très court devant tous les temps d'évolution de l'état excité : chaque atome ainsi préparé en "pulse" évolue sous l'effet de son hamiltonien \mathcal{H} , puis retombe par émission spontanée dans l'état fondamental. L'intensité globale de la lumière de fluorescence diffusée avec une polarisation \vec{e}' peut s'exprimer directement comme la valeur moyenne sur l'ensemble des atomes d'une certaine observable atomique de l'état excité (⁴⁶). Dans une telle expérience, la lumière joue donc un double rôle de préparation instantanée et de détection du système. En variant les polarisations \vec{e} et \vec{e}' d'excitation et de détection, on peut donc observer sur la lumière diffusée les résonances caractéristiques des anticroisements et de croisements de niveaux que nous avons décrites au paragraphe précédent sans nous référer de façon précise à un mode particulier d'excitation ou d'observation du système :

a) Diffusion en raie large au voisinage d'un anticroisement de niveaux (figure 2-a)

Supposons qu'au voisinage de l'anticroisement de deux niveaux excités $|a\rangle$ et $|b\rangle$, on envoie sur le système atomique un faisceau lumineux tel que la polarisation \vec{e} ne permette d'atteindre que le niveau non perturbé $|a\rangle$ (flèche ascendante sur la figure 2-a). Il suffit pour cela d'avoir une polarisation -que nous appellerons "non cohérente"- vérifiant la double condition :

$$\langle f | \vec{e} \cdot \vec{D} | a \rangle \neq 0 ; \quad \langle f | \vec{e} \cdot \vec{D} | b \rangle = 0 \quad (\text{I,A,24})$$

Si on détecte la lumière de fluorescence réémise par le système atomique avec une polarisation \vec{e}' , également "non cohérente" (flèche descendante sur la figure 2-a), vérifiant les relations :

$$\langle f | \vec{e}' \cdot \vec{D} | a \rangle = 0 ; \quad \langle f | \vec{e}' \cdot \vec{D} | b \rangle \neq 0 \quad (\text{I,A,25})$$

on mesure en fait la probabilité moyenne de transition entre les états $|a\rangle$ et $|b\rangle$ pendant la durée de vie $\frac{1}{\Gamma}$ de l'état excité. L'intensité de la lumière diffusée pré-

sente donc au voisinage de l'anticroisement une variation résonnante proportionnelle à la quantité $\overline{P}_{a \rightarrow b}$ de la formule (I,A,10). La mesure de la position et de la largeur de cette résonance permet d'obtenir les paramètres de l'anticroisement. De tels anticroisements dans les diagrammes de structures fines ou hyperfines d'états atomiques excités ont été étudiés en détail (²⁶).

β) Diffusion en raie large au voisinage d'un croisement de niveaux (figure 2-b)

Supposons qu'au voisinage d'un croisement de deux niveaux $|\bar{a}\rangle$ et $|\bar{b}\rangle$ de \mathcal{H} , on envoie sur le système un faisceau lumineux dont la polarisation \vec{e} permet d'atteindre simultanément les deux niveaux perturbés qui se croisent (double flèche ascendante sur la figure 2-b). Cette condition est évidemment réalisée si l'on a une polarisation excitatrice vérifiant des conditions de "cohérence" dans la base des "états perturbés" :

$$\langle f | \vec{e} \cdot \vec{D} | \bar{a} \rangle \neq 0 ; \quad \langle f | \vec{e} \cdot \vec{D} | \bar{b} \rangle \neq 0 \quad \text{I,A,26}$$

Si on détecte la lumière de fluorescence réémise par le système avec une polarisation \vec{e}' également "cohérente" (double flèche descendante sur la figure 2-b), on mesure en fait la valeur moyenne dans le système atomique d'une certaine observable transversale G_T : la lumière diffusée va donc présenter une variation résonnante, de largeur Γ , autour du point de croisement; cette variation -proportionnelle à la quantité $\langle \overline{G_T} \rangle_{\bar{a} \bar{b}}$ de la formule (I,A,20)- correspond à la résonance de cohérence apparaissant sur l'observable G_T . De telles résonances ont été étudiées en détail en champ nul (effet Hanle d'états excités (⁴⁴)) et non nul (effet Franken)(²⁷).

Remarque :

La largeur des résonances d'anticroisements et de croisements de niveaux que nous venons de décrire n'est, en aucune façon, influencée par la largeur Δ de la source ou la largeur Doppler $\Delta\nu_D$ des atomes, qui sont en général très grandes devant Γ . C'est là l'avantage essentiel de l'utilisation de la lumière diffusée sur l'étude du spectre d'absorption dont les raies subissent, comme nous l'avons indiqué plus haut, un élargissement de l'ordre de Δ et $\Delta\nu_D$.

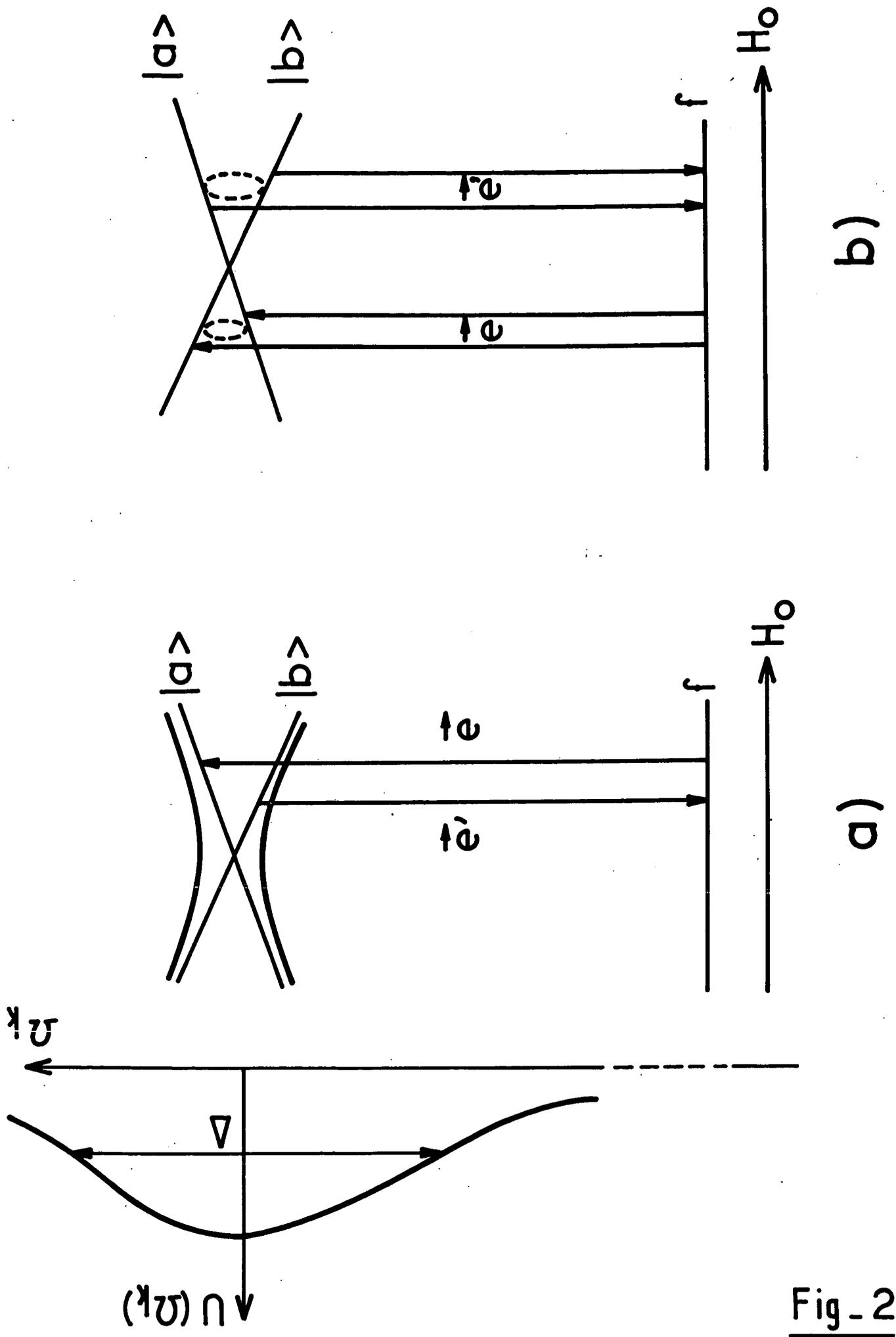


Fig - 2

I-B. DESCRIPTION DU SYSTÈME GLOBAL "ATOME + CHAMP DE RADIOFREQUENCE"

Nous nous proposons d'étudier le système constitué par un niveau atomique de spin \vec{J} et un mode du champ électromagnétique quantifié en interaction. L'hamiltonien \mathcal{H} du système sera donc constitué par une somme de trois termes représentant respectivement l'énergie du niveau atomique (\mathcal{H}_{at}), celle du champ de radiofréquence (\mathcal{H}_{RF}) et le couplage entre l'atome et le champ (V) :

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_{\text{at}} + \mathcal{H}_{\text{RF}} + V \quad (\text{I,B,1})$$

Nous allons successivement préciser la forme de ces trois termes.

1) Le système atomique

Nous envisagerons dans la suite un niveau atomique (αJ) de moment cinétique J en spécifiant par α l'ensemble de tous les autres nombres quantiques du niveau. L'énergie E_{α} de ce niveau en champ magnétique nul sera prise pour origine des énergies ($E_{\alpha} = 0$) tant que nous n'aurons pas d'autre niveau atomique à considérer. Dans un champ magnétique statique \vec{H}_0 parallèle à Oz , le niveau (αJ) possède un hamiltonien Zeeman qui s'écrit :

$$\mathcal{H}_{\text{at}} = \omega_0 J_z \quad (\text{I,B,2})$$

en appelant $\omega_0 = -\gamma_{\alpha} H_0$ la pulsation de Larmor du moment cinétique \vec{J} ($\gamma_{\alpha} = g_{\alpha} \mu_B$ est le rapport gyromagnétique du niveau αJ , g_{α} son facteur de Landé, μ_B le magnéton de Bohr). Dans le champ H_0 , le niveau (αJ) se trouve donc décomposé en $(2J+1)$ sous-niveaux $|\alpha J m\rangle$ ($-J \leq m \leq J$) séparés les uns des autres par l'énergie ω_0 (nous noterons tout simplement $|m\rangle$ le niveau $|\alpha J m\rangle$ tant qu'il n'y aura pas d'ambiguïté).

2) Le champ de radiofréquence

a) L'énergie du champ

Nous supposons que le niveau atomique interagit avec un mode unique du champ électromagnétique, de pulsation ω et de polarisation $\vec{\epsilon}$. Les opérateurs de création et d'annihilation d'un photon dans ce mode, a^{\dagger} et a , vérifient la relation de commutation classique des Bosons :

$$[a, a^\dagger] = 1 \quad (I,B,3)$$

L'hamiltonien du champ s'écrit (en négligeant l'énergie $\omega/2$ du vide) :

$$\mathcal{H}_{RF} = \omega a^\dagger a \quad (I,B,4)$$

et ses états propres sont les états $|n\rangle$, d'énergie $n\omega$, représentant n photons dans le champ. L'action des opérateurs a et a^\dagger sur un état $|n\rangle$ est définie par les relations :

$$\begin{cases} a^\dagger |n\rangle = \sqrt{n+1} |n+1\rangle \\ a |n\rangle = \sqrt{n} |n-1\rangle \end{cases} \quad (I,B,5)$$

b) L'opérateur champ magnétique

Dans la théorie quantique du rayonnement (⁴²), les champs électrique et magnétique sont des opérateurs définis dans chaque mode, agissant sur les états du champ décrits en termes de photons. Nous rappelons le formalisme de la théorie en Appendice I et nous nous contenterons ici d'en donner les résultats pour la description de l'opérateur champ magnétique : si le champ de radiofréquence est uniforme dans toute la région où sont confinés les atomes, le mode du champ électromagnétique est assimilable à celui d'une onde plane à l'approximation dipolaire et l'opérateur champ magnétique s'écrit :

$$\vec{H}_1 = \mu [a \vec{\epsilon} + a^\dagger \vec{\epsilon}^*] \quad (I,B,6)$$

expression dans laquelle μ est une constante qui mesure en quelque sorte le "champ magnétique d'un photon". L'ordre de grandeur de cette constante est évalué en Appendice I pour une valeur des paramètres (fréquence - dimensions de la région où règne le champ) correspondant à une situation expérimentale typique. Elle est extrêmement petite (de l'ordre de 10^{-14} G), ce qui explique, comme nous le montrons ci-dessous, que les champs de radiofréquence communément réalisés contiennent un très grand nombre de photons.

c) Etats cohérents du champ de radiofréquence

Les champs de radiofréquence réalisés physiquement dans une expérience possèdent une phase bien définie. Ils ne peuvent donc être représentés par un état $|n\rangle$ correspondant à un nombre donné de photons -pour lequel la valeur

moyenne du champ est toujours nulle- mais par une superposition cohérente $|\alpha\rangle$ d'états à nombre de photons différents. Ces états, appelés états "cohérents" ont été étudiés en détail par GLAUBER (³⁵). Ils sont définis comme états propres de l'opérateur d'annihilation :

$$a |\alpha\rangle = \alpha |\alpha\rangle \quad (I,B,7)$$

Leur développement sur la base des états $|n\rangle$ est donné par la relation :

$$|\alpha\rangle = e^{-\frac{1}{2}|\alpha|^2} \sum_n \frac{\alpha^n}{(n!)^{\frac{1}{2}}} |n\rangle = \sum_n C_n(\alpha) |n\rangle \quad (I,B,8)$$

et leur évolution temporelle par le développement :

$$|\alpha(t)\rangle = e^{-\frac{1}{2}|\alpha|^2} \sum_n \frac{(\alpha e^{-i\omega t})^n}{(n!)^{\frac{1}{2}}} |n\rangle = \sum_n C_n(\alpha) e^{-in\omega t} |n\rangle \quad (I,B,9)$$

Par un choix convenable de l'origine des temps, nous pouvons nous limiter aux valeurs réelles de α . Le développement (I,B,9) nous donne immédiatement la probabilité $\mathcal{P}(n)$ de trouver n photons dans le champ sous forme d'une Loi de POISSON centrée en $N = |\alpha|^2$ (nombre moyen de photons dans le mode) et de dispersion relative $1/\sqrt{N}$:

$$\mathcal{P}(n) = |C_n(\alpha)|^2 = (\alpha^2)^n \frac{e^{-\alpha^2}}{n!} \quad (I,B,10)$$

$\mathcal{P}(n)$ est représenté en fonction de n sur la figure 3.

D'après la propriété fondamentale (³⁵) de l'état cohérent $|\alpha(t)\rangle$, la valeur moyenne dans cet état de l'opérateur champ magnétique est égale à la valeur classique du champ de radiofréquence que l'on peut écrire pour la polarisation $\vec{\epsilon}$:

$$\vec{H}_{1cl}(t) = \frac{H_1}{2} (\vec{\epsilon} e^{-i\omega t} + \vec{\epsilon}^* e^{i\omega t}) \quad (I,B,11)$$

Identifions (I,B,11) avec la valeur moyenne du champ quantique :

$$\langle \vec{H}_1(t) \rangle = \langle \alpha(t) | \mu(a\vec{\epsilon} + a^\dagger \vec{\epsilon}^*) | \alpha(t) \rangle = \mu\alpha(\vec{\epsilon} e^{-i\omega t} + \vec{\epsilon}^* e^{i\omega t}) \quad (I,B,12)$$

On en déduit immédiatement la relation reliant l'amplitude H_1 du champ classique

au nombre moyen de photons N contenus dans le champ quantique :

$$\alpha^2 = N = \frac{H_1^2}{4\mu^2} \quad (\text{I,B,13})$$

Avec la valeur numérique indiquée pour μ au paragraphe précédent, on voit qu'il faut un nombre moyen de photons de l'ordre de 10^{28} pour réaliser un champ de radiofréquence de 1 Gauss. Pour un tel champ, on a une dispersion relative très faible (10^{-14}) du nombre moyen de photons dans le mode : ainsi dans le domaine des radiofréquences, il est possible de définir avec précision la phase du champ et le nombre de photons qu'il contient.

d) Hypothèse d'inertie du champ de radiofréquence

Mettons en contact le système atomique et le champ de radiofréquence que nous venons de décrire. Le couplage V entre les deux systèmes va, en principe, entraîner des modifications dans l'évolution de l'atome et du champ. Le nombre extrêmement élevé de photons présents nous suggère cependant que si le milieu atomique est suffisamment dilué (ce qui sera toujours le cas dans nos expériences effectuées à faible pression), les modifications subies par le champ seront très faibles. En d'autres termes, nous supposerons que le nombre moyen de photons "disponibles" par atome est tellement grand que l'effet du couplage V pourra être très important pour le milieu atomique, mais restera toujours négligeable pour le champ qui continuera à évoluer pratiquement comme s'il était libre.

Une telle hypothèse revient à considérer la radiofréquence comme un système physique ayant une "inertie" infinie, ce qui est bien l'analogue quantique d'un champ classique imposé extérieurement aux atomes. Nous ne chercherons donc pas, dans ce travail, à décrire les différentes modifications que pourrait subir le champ sous l'effet du couplage avec un milieu atomique de densité suffisante (absorption, amplification, dispersion, etc.). Ces effets ont d'ailleurs été étudiés en détail par LAMB et SCULLY (³⁴) dans le cas où le champ de radiofréquence est remplacé par un champ optique traité quantiquement.

Remarquons enfin que l'hypothèse d' "inertie" nous permet d'éviter d'avoir à considérer explicitement dans notre théorie les sources du champ de radiofréquence : il nous suffit de supposer qu'il a été créé à un instant donné dans un état cohérent. Le couplage avec le système atomique ne modifie pas son état ultérieur et en l'absence de toute cause de relaxation pour le champ, il est inutile d'introduire dans les équations théoriques un terme source pour la radiofréquence. Il va sans dire que, dans les situations physiques réelles,

$$P(n) = N^n \frac{e^{-N}}{n!}$$

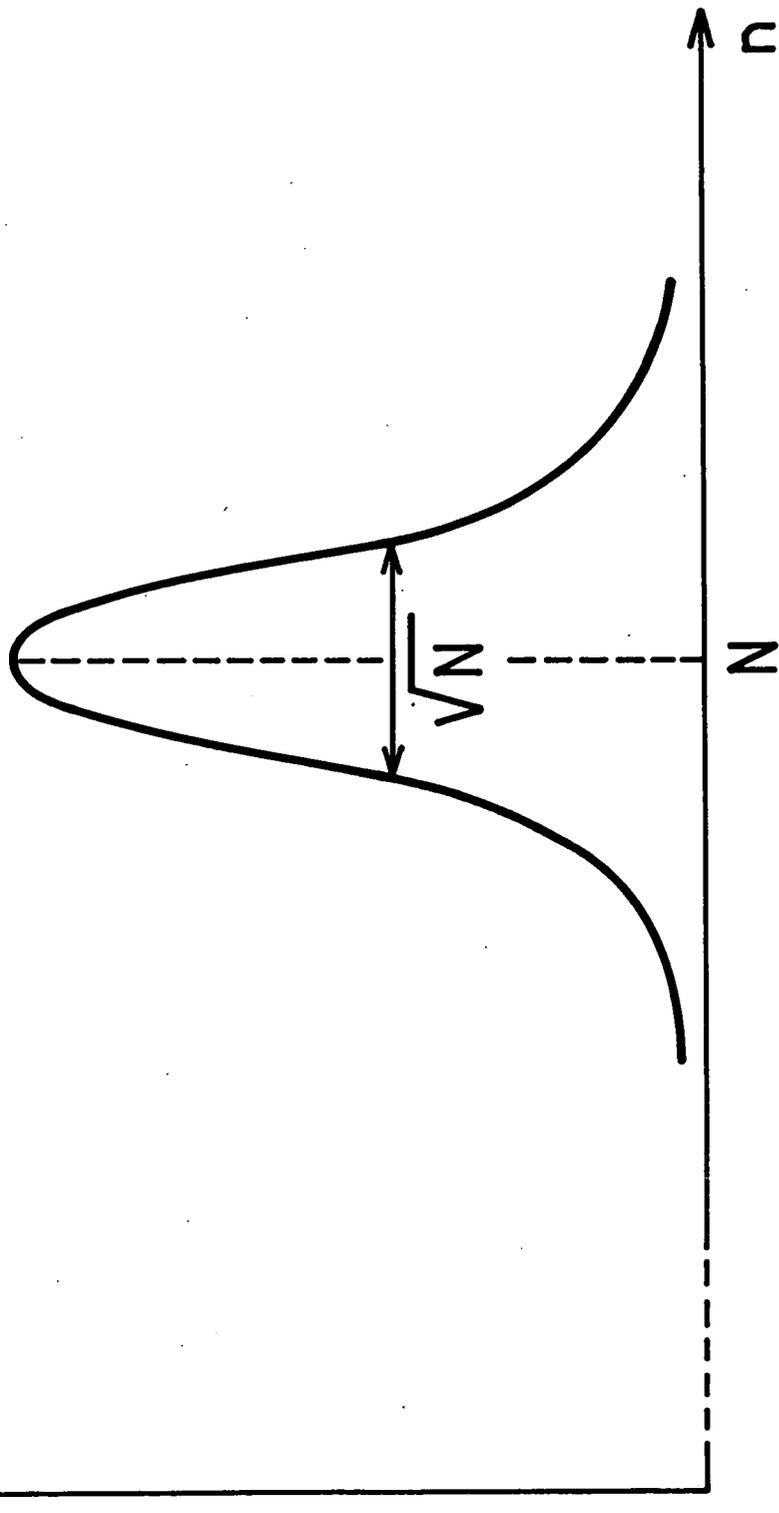


Fig - 3

la surtension du dispositif expérimental est loin d'être infinie et que le champ est excité en permanence par le courant qui circule dans les bobines.

Pour nous résumer, l'état du champ de radiofréquence que nous envisageons dans la suite de ce travail est caractérisé par les propriétés importantes suivantes :

- Il contient un très grand nombre de photons
- La dispersion relative du nombre des photons est très faible
- La modification du champ sous l'effet du couplage avec les atomes est négligeable.

3) Le couplage entre l'atome et le champ de radiofréquence

a) Forme générale du couplage

Le terme de couplage quantique entre l'atome et le champ se déduit immédiatement du terme d'interaction dipolaire magnétique classique

$$V_{cl} = -\gamma_{\alpha} \vec{J} \cdot \vec{H}_{icl}(t)$$

en remplaçant le champ classique $\vec{H}_{icl}(t)$ par l'opérateur champ magnétique quantique donné par (I,B,6). On a donc :

$$V = \lambda \vec{J} \cdot (\vec{a}\vec{\epsilon} + \vec{a}^{\dagger} \vec{\epsilon}^*) \quad (I,B,14)$$

λ étant une constante de couplage (*), égale à $-\gamma_{\alpha}\mu$, décrivant en quelque sorte l'énergie d'interaction "par photon" que l'on peut encore écrire, d'après (I,B,13) :

$$\lambda = \frac{\omega_1(n)}{2\sqrt{n}} \quad (I,B,15)$$

en appelant $\omega_1(n) = -\gamma_{\alpha}H_1$ la fréquence de précession de Larmor associée au champ classique contenant en moyenne n photons.

L'expression (I,B,14) du couplage n'est valable que si le mode envisagé du champ électromagnétique peut être assimilé à celui d'une onde plane,

(*) Nous supposons dans la suite, pour fixer les idées et sans restreindre la généralité de notre étude, la constante λ positive.

c'est-à-dire si le champ est uniforme dans toute la région "explorée" par les atomes. En pratique, le champ magnétique effectivement réalisé par des bobines de Helmholtz n'est pas celui d'une onde plane et varie dans l'espace en grandeur et en polarisation. Si les atomes peuvent "explorer" une région grande devant les dimensions des bobines, comme c'est le cas par exemple dans une expérience de jet atomique, il faut tenir compte d'une variation spatiale du couplage et écrire :

$$V(\vec{r}) = \lambda(\vec{r}) \vec{J} \left[a \vec{\epsilon}(\vec{r}) + a^\dagger \vec{\epsilon}^*(\vec{r}) \right] \quad (I,B,16)$$

$\lambda(\vec{r})$ étant une fonction réelle reflétant la dépendance spatiale de l'amplitude du champ magnétique et $\vec{\epsilon}(\vec{r})$ un champ de vecteurs décrivant la dépendance spatiale de sa polarisation. La structure de V est très simple : elle correspond soit à l'absorption (terme a), soit à l'émission (*) (terme a^\dagger) d'un photon de radiofréquence, les transitions correspondantes du système atomique assurant la conservation globale du moment cinétique du système, comme il est facile de s'en rendre compte sur les quelques exemples suivants :

b) Etude du couplage pour diverses polarisations de la radiofréquence

Nous pouvons à l'aide de (I,B,14) déterminer V pour n'importe quelle polarisation $\vec{\epsilon}$ de la radiofréquence. Appelons $\vec{e}_x, \vec{e}_y, \vec{e}_z$ les vecteurs unitaires dans les directions Ox, Oy et Oz et $|m,n\rangle$ l'état du système global "atome + champ" représentant l'atome dans l'état $|\alpha J_m\rangle$ en présence de n photons.

α) champ de radiofréquence tournant perpendiculaire à H_0 (polarisation σ_+)

La polarisation s'écrit alors $\vec{\epsilon} = \vec{e}_x + i\vec{e}_y$ et l'on a :

$$V_{\sigma_+} = \lambda \left[a J_+ + a^\dagger J_- \right] \quad (I,B,17)$$

$$(J_\pm = J_x \pm iJ_y)$$

(*) En présence de n photons, la probabilité d'émission d'un photon supplémentaire est proportionnelle au carré, égal à $n+1$, de l'élément de matrice de a^\dagger entre les états $|n\rangle$ et $|n+1\rangle$ (cf. équation (I,B,5)); l'émission est donc la somme de deux processus, l'un stimulé (proportionnel à n), l'autre spontané n fois moins probable. Etant donné le nombre très grand de photons présents, ce dernier processus est totalement négligeable et l'émission d'un photon par l'atome peut être considérée comme purement stimulée. On retrouve bien le caractère "classique" du champ de radiofréquence décrit dans ce travail.

V_{σ^+} couple directement l'état $|m, n\rangle$ aux états $|m-1, n+1\rangle$ et $|m+1, n-1\rangle$: en effet, un photon de polarisation circulaire droite transporte une unité ($\hbar = 1$) de moment angulaire le long de sa direction de propagation et son absorption (ou son émission) entraîne le gain (ou la perte) d'une unité de moment angulaire pour le spin. Nous avons symbolisé ce couplage sur la figure 4-a dans le cas d'un spin $J = 1/2$. Les états propres $|m, n\rangle$ de m donné ($\pm 1/2$) sont rangés verticalement par nombre de photons croissants. Les couplages entre niveaux sont représentés par des flèches. On voit que la perturbation V couple dans ce cas les niveaux deux par deux. De façon générale, pour un spin J quelconque, chaque élément de matrice de V_{σ^+} obéissant à la règle de sélection $\Delta m + \Delta n = 0$, deux niveaux ne seront couplés entre eux à un ordre quelconque en V que s'ils ont la même valeur $(m+n)$ du moment cinétique le long de Oz . On obtiendrait de même pour un champ circulaire gauche le couplage :

$$V_{\sigma^-} = \lambda [a J_- + a^\dagger J_+] \quad (\text{I,B,18})$$

et seuls les niveaux vérifiant la condition $\Delta m - \Delta n = 0$ sont couplés entre eux.

β) Champ de radiofréquence linéaire parallèle à H_0 (polarisation π)

La polarisation est $\vec{\epsilon} = \vec{e}_z$ et V s'écrit :

$$V_{\pi} = \lambda J_z (a + a^\dagger) \quad (\text{I,B,19})$$

V_{π} ne couple directement l'état $|m, n\rangle$ qu'aux états $|m, n+1\rangle$ et $|m, n-1\rangle$ de même nombre quantique m : en effet, un photon de polarisation rectiligne transporte un moment angulaire nul le long de sa direction de polarisation et son absorption ou son émission ne peut changer le moment angulaire le long de Oz . La figure 4-b schématise le couplage dans ce cas pour un spin $J = 1/2$: les niveaux se classent en deux familles totalement découplées l'une de l'autre, correspondant chacune à une valeur de m . Ce résultat est général, quelle que soit la taille du spin : les éléments de matrice de V obéissant à la règle de sélection $\Delta m = 0$, deux niveaux ne seront couplés entre eux à un ordre quelconque en V que s'ils ont le même m . Les deux exemples que nous venons d'étudier correspondent à des polarisations principales pour lesquelles chaque photon transporte une quantité de moment cinétique ($0, +1$ ou -1) bien définie le long de H_0 . Nous dirons encore qu'il s'agit de polarisations non cohérentes. Les règles de sélection de V pour ces polarisations sont très simples et nous verrons qu'elles correspondent à des cas

où la diagonalisation de l'hamiltonien de l'atome habillé peut se faire exactement.

γ) Champ de polarisation cohérente

Envisageons maintenant le cas d'une polarisation linéaire $\vec{\epsilon} = \vec{e}_x$, superposition cohérente de photons σ_+ et σ_- ; on a :

$$V_{\sigma} = \lambda J_x (a + a^{\dagger}) = \frac{\lambda}{2} [a J_+ + a^{\dagger} J_-] + \frac{\lambda}{2} [a J_- + a^{\dagger} J_+] \quad (I,B,20)$$

V_{σ} apparaît comme la somme de deux termes correspondant respectivement aux composantes circulaires droite et gauche du champ. L'état $|m,n\rangle$ est couplé aux états $|m+1, n-1\rangle$ et $|m-1, n+1\rangle$ (par l'intermédiaire de la composante σ_+), mais aussi aux états $|m+1, n+1\rangle$ et $|m-1, n-1\rangle$ (par l'intermédiaire de la composante σ_-). En général, chaque élément de matrice de V_{σ} obéissant à la règle de sélection $\Delta n = \pm 1, \Delta m = \pm 1$, deux niveaux ne seront couplés entre eux à un ordre quelconque en V que si les différences Δn et Δm des nombres quantiques n et m qui les caractérisent ont la même parité : dans le cas d'un spin $1/2$, $|+1/2, n\rangle$ est connecté aux niveaux $|+1/2, n \pm 2p\rangle$ (à l'ordre $2p$ par une "chaîne" de $2p-1$ états intermédiaires) et aux niveaux $|-1/2, n \pm (2p+1)\rangle$ (à l'ordre $2p+1$ par une "chaîne" de $2p$ états intermédiaires). Ces "chaînes" d'états sont constituées par les niveaux reliés entre eux sur la figure 4-c par des flèches. On constate que les niveaux se classent dans ce cas en deux familles totalement découplées (flèches en traits pleins et flèches en pointillé). Les règles de sélection pour cette polarisation cohérente apparaissent plus compliquées que celles qui sont décrites par les figures 4-a et 4-b et nous verrons que la diagonalisation de l'hamiltonien ne peut plus se faire exactement et nécessite un traitement par approximations.

Le cas de la polarisation la plus générale s'obtiendra de même en superposant de façon cohérente des composantes σ_+, σ_- et π . On peut par exemple la réaliser à l'aide d'un champ de radiofréquence linéaire faisant avec Oz un angle ψ différent de 0 et $\pi/2$ ou à l'aide d'un champ circulaire dont le plan n'est pas perpendiculaire à H_0 . Lorsque les trois types de photons sont présents, V n'obéit plus qu'à la règle de sélection générale des transitions dipolaires magnétiques :

$$\Delta n = \pm 1, \Delta m = 0, \pm 1$$

et la conservation du moment cinétique ne s'oppose plus au couplage à un ordre donné de deux niveaux quelconques $|m,n\rangle$ et $|m',n'\rangle$ (voir figure 4-d).

I-C. LES DIAGRAMMES D'ENERGIE DE L'ATOME HABILLE DANS LE CAS D'UN SPIN J = 1/2

1) Généralités

L'hamiltonien \mathcal{H} du système global "atome + champ" que nous appelons l'atome habillé s'écrit, compte tenu des équations (I,B,1), (I,B,2), (I,B,4) et (I,B,14) :

$$\mathcal{H} = \omega_0 J_z + \omega a^\dagger a + \lambda \vec{J} \cdot (\vec{a}\vec{\epsilon} + a^\dagger \vec{\epsilon}^*) \quad (\text{I,C,1})$$

Nous nous proposons de décrire son diagramme d'énergie lorsque le niveau atomique possède un spin $J = 1/2$. C'est en effet le cas le plus simple que l'on puisse rencontrer et nous montrerons dans la suite de ce travail (chapitre III) que les diagrammes d'énergie d'un atome habillé possédant un spin J quelconque peuvent s'en déduire très simplement.

Dans \mathcal{H} on peut séparer l'interaction V du reste de l'hamiltonien \mathcal{H}_0 , qui se rapporte à l'atome et au champ en absence de couplage :

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_0 + V \quad (\text{I,C,2})$$

avec
$$\mathcal{H}_0 = \omega_0 J_z + \omega a^\dagger a \quad (\text{I,C,3})$$

Les états propres de \mathcal{H}_0 sont les états $|m,n\rangle$ ($m = \pm 1/2$), d'énergie $m\omega_0 + n\omega$ que nous noterons simplement $|\pm,n\rangle$.

Le diagramme d'énergie de \mathcal{H}_0 en fonction du champ statique H_0 est représenté sur la figure 5 : il est constitué par une superposition de diagrammes Zeeman de spin 1/2, séparés les uns des autres par l'énergie ω d'un photon. Il apparaît une infinité de croisements de niveaux I_n^P alignés verticalement pour toutes les valeurs du champ magnétique telles que $\omega_0 = p\omega$ ($p \geq 0$). (I_n^P est le croisement du niveau $|+,n\rangle$ et du niveau $|-,n+p\rangle$.)

Les niveaux d'énergie de l'atome habillé (représentés sur les figures 6, 7 et 8) se déduisent de ceux de \mathcal{H}_0 lorsque l'on branche le couplage V entre l'atome et le champ. Avant d'aborder leur étude détaillée pour diverses polarisations de la radiofréquence, nous pouvons faire un certain nombre de remarques générales :

a) Nombre de photons dans les niveaux étudiés

Nous nous intéressons aux niveaux contenant en moyenne un très grand nombre de photons : en effet, le nombre de photons contenus dans le champ de radiofréquence est, comme nous l'avons vu plus haut, très élevé en valeur absolue : les niveaux de \mathcal{H}_0 sur lesquels se décompose l'état du système "atome + champ" contiennent donc des nombres n de photons très élevés et appartiennent à une région du diagramme correspondant à des valeurs $n\omega$ très importantes.

b) Invariance du diagramme par translation en énergie

Dans les régions étudiées, le diagramme est pratiquement invariant dans une translation en énergie $p\omega$, tant que p est un entier très petit devant n (mais pouvant être lui-même très grand en valeur absolue). Cette propriété résulte simplement de l'invariance des niveaux de \mathcal{H}_0 dans une telle translation et du fait que tous les éléments de matrice de V entre états propres de \mathcal{H}_0 changent très peu lorsque n varie peu en valeur relative :

$$\lambda \sqrt{n} \approx \lambda \sqrt{n+p} \quad \text{si } p/n \ll 1$$

Lorsqu'on considère des niveaux dont l'énergie est de plus en plus grande, le diagramme ne se déforme donc que progressivement, pour des variations sensibles en valeur relative, donc très importantes en valeur absolue du nombre de photons.

2) Les diagrammes d'énergie dans les cas solubles

Nous commencerons par étudier les niveaux d'énergie de l'atome habillé dans les deux cas de polarisations principales σ_+ et π pour lesquels une diagonalisation rigoureuse de l'hamiltonien \mathcal{H} est possible.

a) Champ tournant σ_+ perpendiculaire à H_0

\mathcal{H} s'écrit dans ce cas (cf. relation (I,B,17)) :

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_0 + V_{\sigma_+} = \omega_0 J_z + \omega a^\dagger a + \lambda [J_+ a + J_- a^\dagger] \quad (\text{I,C,4})$$

D'après les règles de sélection établies plus haut (§ I-B-3-b), V_{σ_+} ne peut coupler le niveau $|+,n\rangle$ qu'au niveau $|-,n+1\rangle$. Les états propres correspondants de \mathcal{H} s'obtiennent donc exactement en diagonalisant une infinité de matrices 2×2 . Avec les notations introduites au § I-A, les vecteurs propres de \mathcal{H} correspondant au couple de niveaux non perturbés qui se croisent au point I_n^1 s'écrivent simplement :

$$\left. \begin{aligned} |+\rangle_n^{(h)} &= -\sin \frac{\theta_n}{2} |+,n\rangle + \cos \frac{\theta_n}{2} |-,n+1\rangle \\ |-\rangle_n^{(h)} &= \cos \frac{\theta_n}{2} |+,n\rangle + \sin \frac{\theta_n}{2} |-,n+1\rangle \end{aligned} \right\} \quad (\text{I,C,5})$$

Dans ces équations, θ_n est définie par la relation analogue à (I,A,7) :

$$\text{tg } \theta_n = \frac{2\lambda \sqrt{n+1}}{\omega_0 - \omega} \quad (-\pi \leq \theta_n \leq 0)$$

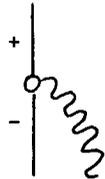
qui, compte tenu de (I,B,15), s'écrit encore :

$$\text{tg } \theta_n = \frac{\omega_1(n)}{\omega_0 - \omega} \quad (-\pi \leq \theta_n \leq 0) \quad (\text{I,C,6})$$

Les énergies propres des deux niveaux $|\pm\rangle_n^{(h)}$ sont données par la relation :

$$E_{\pm n}^{(h)} = (n + \frac{1}{2})\omega \pm \frac{1}{2} \sqrt{(\omega_0 - \omega)^2 + \omega_1^2(n)} \quad (\text{I,C,7})$$

Les niveaux d'énergie prennent ainsi la forme de branches d'hyperboles admettant les niveaux non perturbés de \mathcal{H}_0 pour asymptotes : on obtient pour chaque croisement I_n^1 de \mathcal{H}_0 un anticroisement de l'atome habillé, centré en $\omega_0 = \omega$, ayant une "force" égale à $\omega_1(n)$. Cet anticroisement est lié à l'existence d'un couplage résonnant dans le champ $\omega_0 = \omega$ entre les niveaux $|+,n\rangle$ et $|-,n+1\rangle$. A l'ordre le plus bas (1er ordre), ce couplage correspond au processus d'absorption d'un photon de radiofréquence par l'atome symbolisé par le diagramme suivant :



dans lequel le photon absorbé est représenté par une ligne ondulée.

Remarque :

Nous avons adopté les notations $|+\rangle_n^{(h)}$ et $|-\rangle_n^{(h)}$ pour représenter les deux états propres de l'atome habillé qui sont associés à l'anticroisement centré au point I_n^1 : les indices + et - repèrent respectivement la branche supérieure et inférieure de l'anticroisement et le paramètre n la position de son centre. Ces notations sont commodes au voisinage de l'anticroisement, point où les états propres de \mathcal{H} sont très différents de ceux de \mathcal{H}_0 . Par contre,

loin de l'anticroisement, c'est-à-dire près des asymptotes des branches d'hyperbole qui le constituent, chaque état propre de \mathcal{H} est très proche d'un état propre $|\phi_0\rangle$ de \mathcal{H}_0 et il est préférable alors de le noter $|\phi_0\rangle^{(h)}$ en mettant à l'intérieur du ket le symbole identifiant cet état propre de \mathcal{H}_0 . Par exemple, lorsque $\omega_0 \gg \omega$, on a d'après (I,C,6) :

$$\theta_n \approx -\pi$$

c'est-à-dire encore :

$$\sin \frac{\theta_n}{2} \approx -1 \quad \text{et} \quad \cos \frac{\theta_n}{2} \approx 0$$

Le niveau $|+\rangle_n^{(h)}$ donné par (I,C,5) est alors très voisin de l'état non perturbé $|+,n\rangle$ et on a intérêt à utiliser la notation $|+,n\rangle^{(h)}$ au lieu de $|+\rangle_n^{(h)}$; de même, on écrira $|-,n+1\rangle^{(h)}$ au lieu de $|-,n\rangle^{(h)}$; au contraire, si $\omega_0 \ll \omega$, nous écrirons $|-,n+1\rangle^{(h)}$ au lieu de $|+\rangle_n^{(h)}$ et $|+,n\rangle^{(h)}$ au lieu de $|-\rangle_n^{(h)}$. Signalons enfin qu'au chapitre III, nous définirons une transformation adiabatique permettant de construire les états propres de \mathcal{H} à partir de ceux de \mathcal{H}_0 dans le cas général où la taille du spin et la polarisation de la radiofréquence sont absolument quelconques. Ceci nous conduira à introduire pour les niveaux d'énergie une notation générale de signification physique très claire, qui remplacera toutes les précédentes.

Nous avons représenté, sur la figure 6, les niveaux du diagramme d'énergie dans deux régions correspondant à des nombres de photons très différents. La figure 6-a correspond au cas où ce nombre, tout en étant très grand en valeur absolue, est relativement faible de sorte que la condition :

$$2\lambda \sqrt{n} = \omega_1(n) < \omega$$

se trouve vérifiée : nous dirons que nous sommes alors dans un domaine de couplage faible entre l'atome et le champ : la "force" des anticroisements est, dans ce cas, petite devant la distance entre les centres de deux anticroisements I_n^1 et I_{n+1}^1 consécutifs. On constate que tous les croisements I_n^p de \mathcal{H}_0 avec $p \neq 1$ restent des croisements de l'hamiltonien total \mathcal{H} , mais que ces croisements se trouvent déplacés par rapport à leur position extrapolée pour $\lambda = 0$. L'interprétation de ces résultats est très claire d'après les considérations générales du § I-A-2 : au point I_n^p ($p \neq 1$) de croisement des niveaux $|+,n\rangle$ et $|-,n+p\rangle$, les deux niveaux qui se

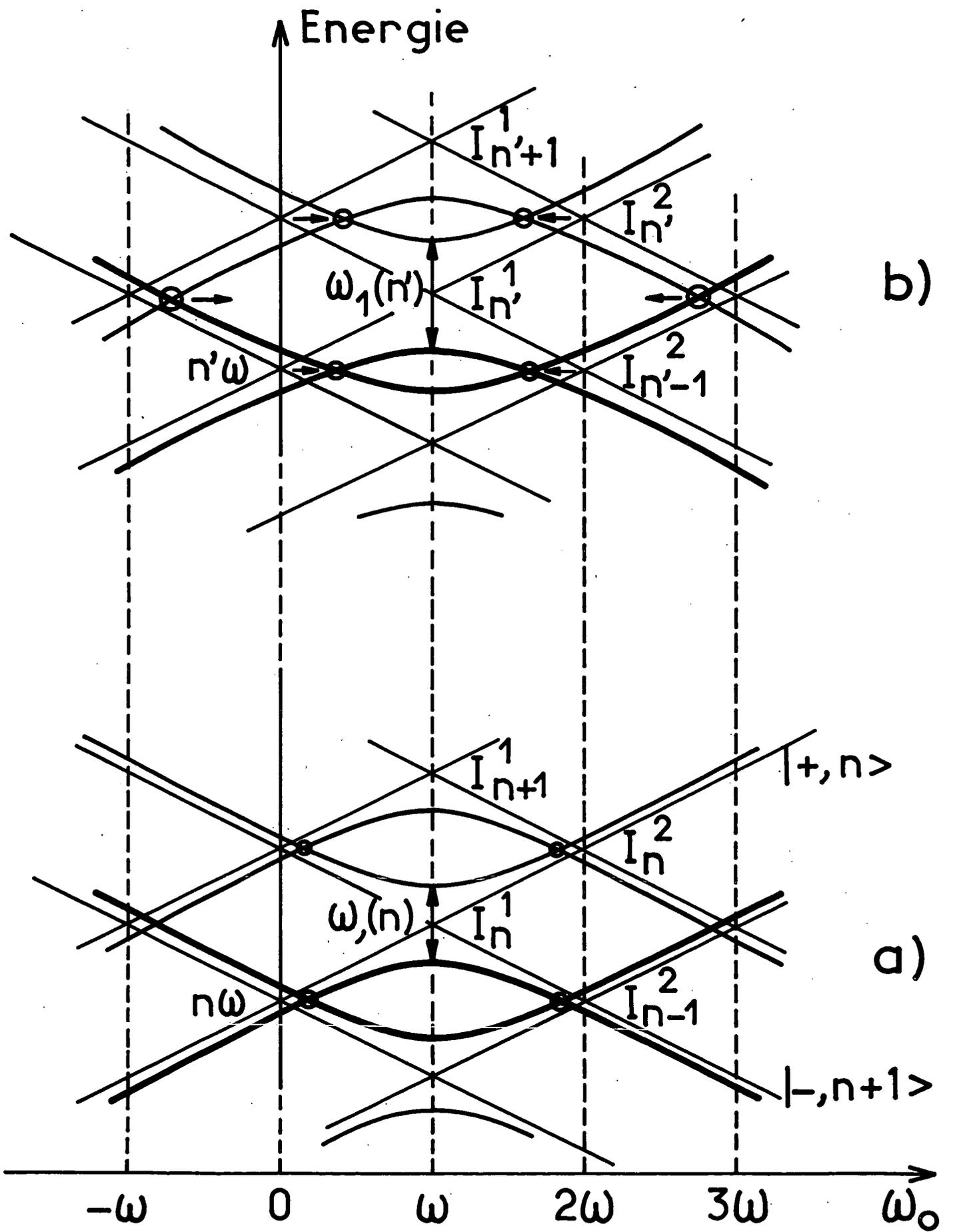


Fig. 6

croisent ne sont couplés entre eux par V_{σ_+} à aucun ordre et le croisement doit donc rester un croisement de niveaux de \mathcal{H}_0 . Cependant, le niveau $|+,n\rangle$ se trouve couplé au niveau $|-,n+1\rangle$ (ce couplage étant responsable de l'anticroisement I_n^1) et le niveau $|-,n+p\rangle$ au niveau $|+,n+p-1\rangle$ (ce couplage étant responsable de l'anticroisement I_{n+p-1}^1). Ces couplages, entre niveaux dont l'énergie est différente dans le champ $\omega_0 = p\omega$ ($p \neq 1$), ont pour effet de déplacer, suivant la théorie ordinaire des perturbations non dégénérées, les niveaux d'une quantité du 2e ordre en V , proportionnelle à ω_1^2/ω . Ce déplacement, qui mesure la distance entre la branche d'hyperbole qui passe en ce point et son asymptote est responsable de tous les déplacements des croisements de niveaux I_n^p ($p \neq 1$) observés sur le diagramme. Les états propres de l'atome habillé au voisinage de ces points de croisement sont très voisins des états non perturbés correspondants. Conformément à la remarque faite plus haut, nous les appellerons $|+,n\rangle^{(h)}$ et $|-,n+p\rangle^{(h)}$ pour rappeler qu'ils diffèrent très peu des états $|+,n\rangle$ et $|-,n+p\rangle$. On obtient leur expression en série de perturbation en développant (I,C,5) en puissance de $\omega_1(n)/\omega$:

$$\begin{cases} |+,n\rangle^{(h)} = |+,n\rangle + \frac{\omega_1(n)}{2(p-1)\omega} |-,n+1\rangle + \dots \\ |-,n+p\rangle^{(h)} = |-,n+p\rangle - \frac{\omega_1(n)}{2(p-1)\omega} |+,n+p-1\rangle + \dots \end{cases} \quad \text{(I,C,8)}$$

Le niveau $|+,n\rangle^{(h)}$ ($|-,n+p\rangle^{(h)}$) n'est contaminé que par le niveau $|-,n+1\rangle$ ($|+,n+p-1\rangle$). Cette contamination non résonnante s'interprète (§ I-A) en terme de transitions virtuelles entre états propres de \mathcal{H}_0 , c'est-à-dire en terme d'absorptions et d'émissions virtuelles de photons de radiofréquence par l'atome.

La figure 6-b représente une région du diagramme correspondant à un nombre n' de photons beaucoup plus élevé : la force $\omega_1(n')$ des anticroisements I_n^1 y est plus grande et, en conséquence, tous les croisements de niveaux du diagramme se trouvent déplacés davantage vers le champ $\omega_0 = \omega$. Les anticroisements I_n^1 ne subissent par contre aucun déplacement. Si l'on augmente davantage le nombre de photons, c'est-à-dire si l'on explore des régions du diagramme d'ordonnées de plus en plus grandes, on va atteindre une région où la "force" des anticroisements sera devenue telle que les deux croisements issus de $\omega_0 = 0$ et $\omega_0 = 2\omega$ viendront se confondre au point $\omega_0 = \omega$ (les deux branches des anticroisements adjacents I_n^1 et I_{n+1}^1 sont alors en contact en ce point). Ces deux croisements disparaissent ensuite pour une valeur plus importante du couplage et ce sont les autres croisements du

diagramme qui continuent à se rapprocher pour venir disparaître successivement deux à deux dans le champ $\omega_0 = \omega$.

b) Champ de radiofréquence linéaire π parallèle à H_0

Ce deuxième cas de polarisation non cohérente peut également faire l'objet d'une diagonalisation exacte quelle que soit l'intensité du couplage (⁴⁷). Nous rappelons cette diagonalisation en Appendice III pour une valeur quelconque du spin J et nous en donnons simplement ici les résultats - avec leur interprétation physique - dans le cas d'un spin J = 1/2.

Nous savons (§I-B-3-b) que seuls les niveaux de même m sont couplés entre eux : il en résulte que les états propres de \mathcal{H}_0 , qui se croisent aux points I_n^P , pour lesquels $\Delta m = 1$, ne sont couplés entre eux à aucun ordre : tous les croisements de niveaux $\omega_0 = p\omega$ (p quelconque) restent donc des croisements de niveaux de l'atome habillé (figure 7-a).

De façon plus précise, on montre que les énergies propres de \mathcal{H} sont les mêmes que celles de \mathcal{H}_0 , quelle que soit l'intensité du couplage, les croisements de niveaux de l'atome habillé ne subissant pour cette polarisation aucun déplacement par rapport à ceux de \mathcal{H}_0 . Les états propres $|\pm, n\rangle^{(h)}$ de l'atome habillé, d'énergie $n\omega \pm \frac{\omega_0}{2}$ (qui tendent vers les états $|\pm, n\rangle$ lorsque λ tend vers zéro), sont égaux au produit tensoriel de l'état atomique $|\pm\rangle$ et de l'état de radiofréquence $|\bar{n}_\pm\rangle$ obtenu par action d'un opérateur "déplacement" sur l'état $|n\rangle$:

$$|\pm, n\rangle^{(h)} = |\pm\rangle |\bar{n}_\pm\rangle \tag{I,C,9}$$

$$|\bar{n}_\pm\rangle = \exp \left[\mp \frac{\lambda}{2\omega} (a^\dagger - a) \right] |n\rangle$$

Les états $|\pm, n\rangle^{(h)}$ peuvent également être définis par leur développement sur les états $|\pm, n'\rangle$:

$$|\pm, n\rangle^{(h)} = \sum_{n'} J_{n-n'} \left(\pm \frac{\omega_1}{2\omega} \right) |\pm, n'\rangle \tag{I,C,10}$$

dans lequel $J_{n-n'}$, est la fonction de Bessel ordinaire d'ordre n-n'. Ce développement décrit la contamination de l'état $|\pm, n\rangle^{(h)}$ de l'atome habillé sous l'effet des absorptions (ou émissions) virtuelles de $|n-n'|$ photons de radiofréquence par le système atomique dans l'état $\pm 1/2$.

3) Cas général d'une polarisation quelconque : les niveaux d'énergie dans le domaine des couplages faibles

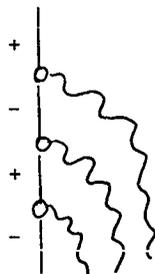
Lorsque la polarisation $\vec{\epsilon}$ de la radiofréquence est cohérente, nous avons vu que les règles de sélection sur les éléments de matrice de V sont beaucoup plus compliquées, un niveau donné de \mathcal{H}_0 pouvant être couplé à un ordre quelconque de l'interaction à une infinité d'autres niveaux de valeurs de n et m différentes. Il faut alors, pour diagonaliser \mathcal{H} , utiliser des méthodes d'approximation.

Dans le cas d'un couplage faible ($2\lambda\sqrt{n} = \omega_1(n) \ll \omega$), on peut traiter V comme une perturbation vis-à-vis de \mathcal{H}_0 . On doit alors étudier l'effet de cette perturbation au voisinage des différents croisements I_n^p de \mathcal{H}_0 en appliquant les résultats généraux établis au paragraphe I-A concernant les croisements et anticroisements de niveaux de l'hamiltonien perturbé.

Nous allons étudier successivement le cas d'un champ en polarisation linéaire σ , puis le cas d'un champ de polarisation cohérente quelconque.

a) Champ de radiofréquence en polarisation cohérente σ

Nous savons que, dans ce cas (cf. §I-B-3-b), les niveaux $|+,n\rangle$ et $|-,n+2p+1\rangle$ qui se croisent au point I_n^{2p+1} sont couplés entre eux par une "chaîne" de $2p$ états intermédiaires. Ce couplage, résonnant dans le champ $\omega_0 = (2p+1)\omega$, peut être symbolisé par un diagramme (représenté ici pour $2p+1 = 3$) décrivant l'absorption de $2p+1$ photons de radiofréquence par l'atome qui passe de l'état $-1/2$ à l'état $+1/2$:



Remarquons bien que ce processus nécessite l'absorption simultanée des composantes σ_+ et σ_- du champ de radiofréquence et n'existe donc pas pour un champ tournant purement σ_+ ou σ_- . Sous l'effet du couplage décrit par ce diagramme, les croisements impairs I_n^{2p+1} de \mathcal{H}_0 vont devenir des anticroisements d'ordre $2p+1$ de l'atome habillé.

Le niveau $|+,n\rangle$ n'est couplé par contre à aucun ordre au niveau $|-,n+2p\rangle$ car $\Delta m = +1$ et $\Delta n = 2p$ ne sont pas de même parité (cf. §I-B-3-b): les croisements pairs I_n^{2p} de \mathcal{H}_0 doivent donc rester des croisements de niveaux de l'atome habillé.

Croisements et anticroisements de niveaux vont, par ailleurs, subir des déplacements du 2e ordre en V , vers les champs faibles, proportionnels à ω_1^2/ω . Ces déplacements sont liés aux processus d'absorption ou d'émission induites virtuelles de photons de radiofréquence par l'atome. Ainsi, au point de croisement I_n^1 entre les niveaux $|+,n\rangle$ et $|-,n+1\rangle$, le niveau $|+,n\rangle$ ($|-,n+1\rangle$) est couplé non seulement à $|-,n+1\rangle$ ($|+,n\rangle$) de façon résonnante, mais aussi de façon non résonnante à $|-,n-1\rangle$ ($|+,n+2\rangle$) par absorption (émission induite) virtuelle d'un photon de radiofréquence. C'est ce couplage non résonnant qui déplace l'anticroisement de niveaux. La valeur du déplacement pour les divers croisements et anticroisements du diagramme est calculée par la théorie des perturbations en Appendice II. Remarquons simplement que seul le croisement I_n^0 en champ nul ne subit, par raison de symétrie, aucun déplacement.

Le diagramme d'énergie correspondant à cette polarisation est représenté sur la figure 7-b dans une petite région autour d'une valeur donnée n du nombre de photons. Le diagramme est évidemment -en raison de la symétrie du champ de radiofréquence- symétrique par rapport au champ nul. On remarquera que les "forces" des anticroisements décroissent lorsque leur ordre augmente, ce qui correspond simplement au fait que le couplage entre les niveaux non perturbés nécessite un ordre de perturbation de plus en plus élevé. Quant aux états propres de l'atome habillé, ils sont donnés au voisinage des anticroisements par des combinaisons linéaires des états non perturbés correspondants (cf. § I-A-2) et au voisinage des croisements de niveaux par des développements de perturbations analogues à (I,A,18) décrivant la contamination des niveaux sous l'effet des absorptions et émissions induites virtuelles de photons de radiofréquence.

b) Champ de radiofréquence de polarisation cohérente quelconque, superposition de polarisations σ^+ , σ^- , π

Si la polarisation du champ de radiofréquence correspond à une superposition cohérente des polarisations σ_+ , σ_- et π , nous avons vu que deux niveaux quelconques $|+,n\rangle$ et $|-,n+p\rangle$ de \mathcal{H}_0 peuvent être reliés l'un à l'autre par une chaîne d'états intermédiaires. Il en résulte qu'a priori, tous les croisements de niveaux de \mathcal{H}_0 doivent devenir des anticroisements de niveaux de l'atome habillé.

Nous avons montré cependant (§ I-A-3) que l'existence d'une chaîne d'états reliant deux niveaux donnés n'est pas suffisante pour qu'un couplage effectif apparaisse entre ces niveaux. Un tel couplage n'existe que si les contributions de plusieurs chaînes d'états intermédiaires ne s'annulent pas mutuellement. L'exis-

tence d'une telle interférence destructive (*) qui doit, de plus, être réalisée à tous les ordres de la perturbation peut sembler purement accidentelle. En fait, nous verrons dans la suite de ce travail (chapitre III) que, pour un spin supérieur à 1/2, elle se produit de façon systématique pour certains croisements de niveaux. Dans le cas d'un spin 1/2, qui seul nous intéresse pour l'instant, ce phénomène se produit également pour le croisement de niveaux en champ nul si la polarisation du champ de radiofréquence est linéaire et cela, quelle que soit la direction de ce champ. Nous reviendrons sur cette propriété au paragraphe suivant lorsque nous étudierons plus particulièrement les propriétés de l'atome habillé en champ faible. Constatons simplement pour l'instant que, dans ce cas, le croisement I_n^0 de \mathcal{H}_0 reste un croisement de niveaux de deuxième espèce de l'atome habillé. Nous avons représenté sur la figure 7-c le diagramme d'énergie de l'atome habillé pour une telle polarisation (champ linéaire faisant un angle ψ quelconque différent de 0 et $\pi/2$ avec H_0). Tous les croisements de niveaux I_n^p , $p \neq 0$, de \mathcal{H}_0 deviennent alors des anticroisements de niveaux déplacés de l'atome habillé.

Enfin, la figure 7-d représente le diagramme dans le cas de la polarisation cohérente non linéaire la plus générale possible (c'est le cas par exemple d'un champ circulaire dans le plan de H_0). Le diagramme ne présente plus alors que des anticroisements de niveaux. Nous verrons au paragraphe suivant la signification de l'anticroisement en champ nul qui apparaît dans ce cas.

4) Les niveaux d'énergie de l'atome habillé en couplage intermédiaire et en couplage fort

Si l'on considère des régions du diagramme d'énergie correspondant à des nombres de photons de plus en plus élevés, on sort du cadre de la théorie des perturbations et l'aspect du diagramme des niveaux peut se modifier considérablement par rapport à la description donnée au paragraphe précédent. On ne peut plus se contenter d'un calcul à l'ordre le plus bas des déplacements des croisements et anticroisements de niveaux et des "forces" d'anticroisement, et il faut tenir compte du couplage d'un niveau donné avec un nombre de plus en plus grand d'autres niveaux, ce qui nécessite pratiquement la diagonalisation de l'hamiltonien \mathcal{H} à l'aide

(*) Cette interférence ne peut exister pour les polarisations de la radiofréquence que nous avons étudiées précédemment, car il est facile de constater que le couplage s'effectuait alors à l'ordre le plus bas par une seule "chaîne" d'états intermédiaires.

d'un calcul numérique. Le principe de ce calcul est le suivant ⁽³³⁾⁽⁴⁸⁾ : la matrice représentant \mathcal{H} dans la base des états propres de \mathcal{H}_0 a une dimension infinie. Pour obtenir une valeur propre donnée de \mathcal{H} , on tronque cette matrice symétriquement par rapport à la ligne et à la colonne correspondant à l'état propre de \mathcal{H}_0 le plus proche de l'état propre de \mathcal{H} étudié, de façon à obtenir une matrice carrée finie de dimension donnée. On teste la précision du calcul en essayant plusieurs valeurs de la dimension de cette matrice. On peut ainsi calculer les niveaux d'énergie de l'atome habillé quelles que soient la polarisation de la radiofréquence et la force du couplage. Cependant, même sans effectuer explicitement les calculs, il est assez simple de comprendre qualitativement, en suivant la déformation des niveaux d'énergie lorsque n augmente, l'allure générale des diagrammes dans un domaine où la théorie des perturbations esquissée au paragraphe précédent ne s'applique plus. Pour comprendre facilement comment les niveaux se déforment, on a intérêt à les grouper deux par deux en multiplicités ou fuseaux de niveaux d'énergie, chacune de ces multiplicités étant constituée par deux états stationnaires de l'atome habillé qui, suivant les polarisations de la radiofréquence, se croisent ou s'anticroisent au voisinage du champ nul. Nous donnerons au chapitre III une interprétation physique très claire de ces fuseaux de niveaux que nous avons représentés en traits renforcés sur les figures 6 et 7. Montrons simplement ici comment on peut prévoir leur déformation dans un cas particulier, celui du champ linéaire en polarisation σ . Les niveaux d'énergie de l'atome habillé, tels qu'ils résultent du calcul numérique esquissé plus haut, sont dans ce cas représentés sur la figure 8 pour diverses valeurs du couplage ω_1 . Sur la figure 8-a, le couplage est faible ($\omega_1 < \omega$) et le diagramme a, dans cette région, le même aspect que sur la figure 7-b. Chaque faisceau comporte une série de "ventres" aux anticroisements voisins de $\omega_0 = (2p+1)\omega$ et une série de noeuds aux croisements $\omega_0 = 2p\omega$. Nous avons, dans chaque multiplicité, distingué le niveau qui part du champ nul avec une pente positive (traits pleins) de celui qui en part avec une pente négative (traits pointillés). La figure 8-b représente les mêmes fuseaux pour une valeur beaucoup plus grande du couplage : les croisements de niveaux étant davantage déplacés vers le champ nul, les noeuds des fuseaux d'énergie sont plus proches de $H_0 = 0$ que sur la figure 8-a; la "force" des anticroisements a également augmenté et les "ventres" des fuseaux sont plus aplatis que ceux de la figure 8-a. Si l'on augmente encore le couplage, on conçoit que les fuseaux continuent à se déformer de façon continue, leurs noeuds se rapprochant du champ $H_0 = 0$, tandis que la pente des niveaux en champ nul diminue jusqu'à une valeur du couplage (figure 8-c) pour laquelle les deux croisements symétriques par

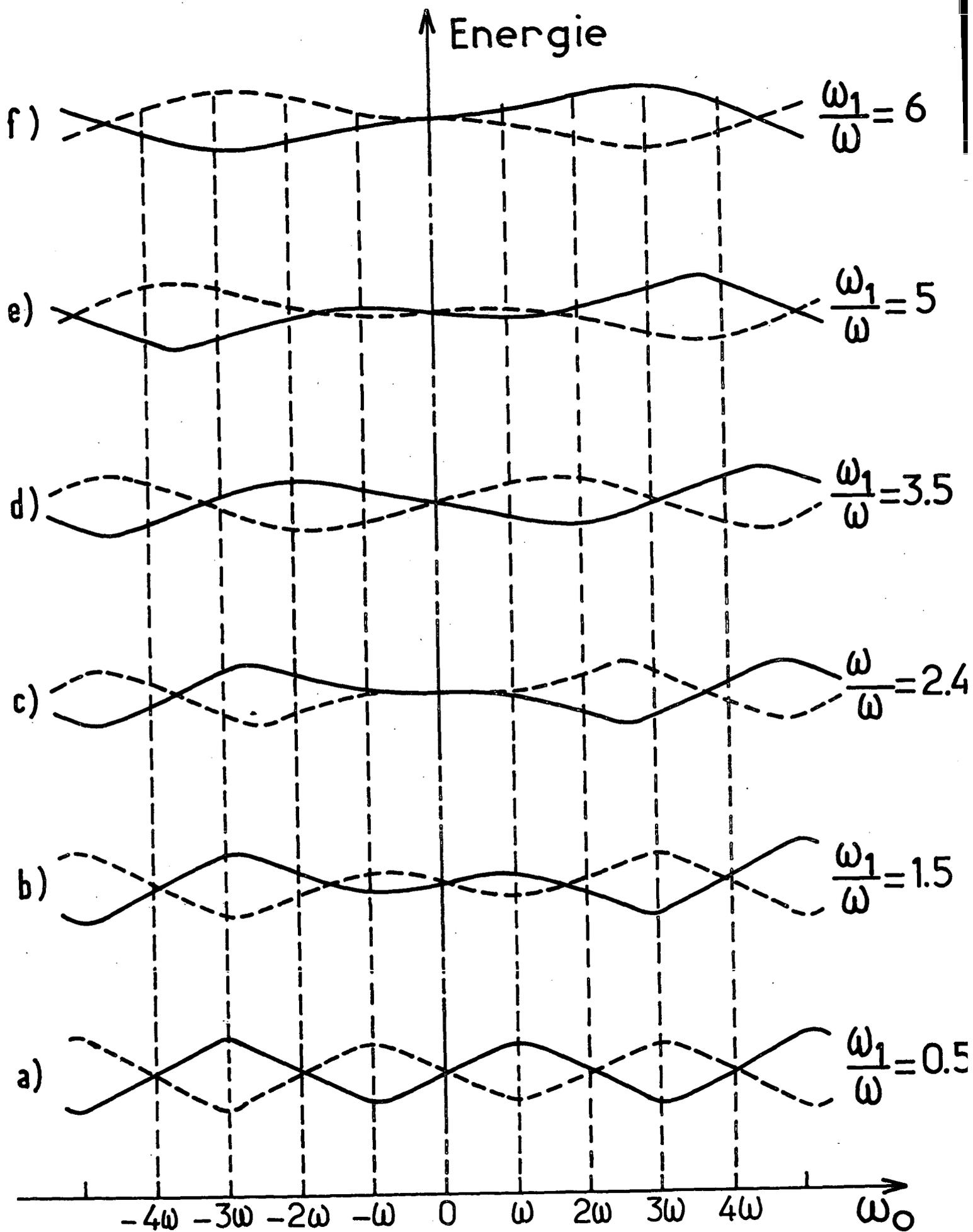


Fig - 8

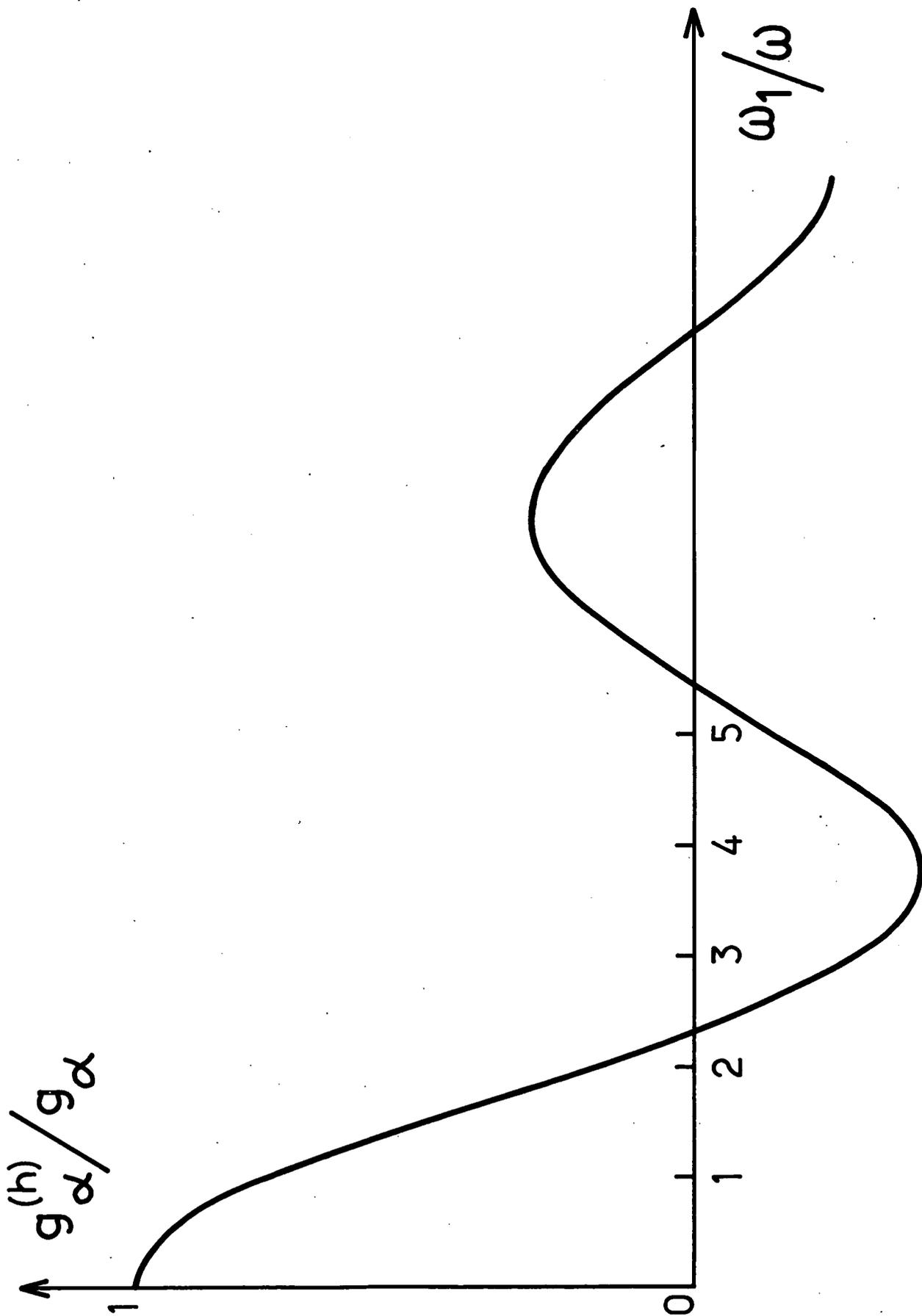


Fig - 9

rapport au champ nul (initialement en $\omega_0 = \pm 2\omega$) sont venus se rejoindre en $H_0 = 0$; les deux niveaux de chaque fuseau (en pointillé et en traits pleins) sont alors au contact en trois points confondus et partent du champ zéro avec une pente nulle. Pour une valeur encore plus grande de ω_1/ω (figure 8-d), le niveau en pointillé passe au-dessus du niveau en traits pleins, la pente des niveaux en champ nul s'inversant. Ce sont alors les croisements initialement en $\omega_0 = \pm 4\omega$ qui continuent à se rapprocher (figure 8-e) pour venir s'évanouir en champ nul pour une valeur encore plus importante du couplage; le niveau en traits pleins passe alors à nouveau au-dessus du niveau pointillé (figure 8-f), etc. On montre ainsi que la pente des niveaux en champ statique faible, qui mesure le facteur de Landé $g_\alpha^{(h)}$ de l'atome habillé dans le niveau (αJ) , diminue, s'annule et change alternativement de signe lorsque le couplage augmente. Nous calculerons exactement, au chapitre V, la variation de ce facteur de Landé en fonction du couplage en traitant l'hamiltonien Zeeman $\omega_0 J_z$ comme une perturbation vis-à-vis du reste de l'hamiltonien $\omega a^\dagger a + \lambda J_x (a + a^\dagger)$. Nous montrerons qu'il obéit à la relation :

$$g_\alpha^{(h)} = g_\alpha J_0 \left[\frac{\omega_1}{\omega} \right] \quad (\text{I,C,11})$$

où J_0 est la fonction de Bessel ordinaire d'ordre zéro. Ces variations sont représentées sur la courbe de la figure 9. L'oscillation du facteur de Landé qui apparaît sur cette courbe traduit bien les effets que nous venons de décrire qualitativement. Nous montrons au paragraphe suivant que ces effets sont à l'origine des propriétés magnétiques très particulières d'un atome habillé par un champ de radiofréquence polarisé linéairement.

I-D. LES PROPRIÉTÉS PHYSIQUES DE L'ATOME HABILÉ

A partir des diagrammes d'énergie que nous venons d'étudier, nous pouvons à présent comprendre l'ensemble des propriétés physiques d'un niveau atomique en interaction avec un champ de radiofréquence. Suivant la démarche du paragraphe I-A, nous allons décrire successivement les phénomènes associés aux anticroisements de niveaux qui, comme nous le verrons, concernent les différents types d'expériences de résonance magnétique, puis les effets associés aux croisements de niveaux que nous relierons directement aux expériences de résonance magnétique de cohérence. Nous aborderons enfin les propriétés physiques de l'atome habillé en

champ statique faible et nous mettrons ainsi en évidence la modification des propriétés magnétiques du niveau atomique sous l'effet du couplage avec le champ de radiofréquence.

Afin de ne pas trop compliquer cet exposé d'introduction, nous allons simplifier dans ce paragraphe la description du champ de radiofréquence : au lieu de le décrire par un état cohérent contenant en moyenne N photons, nous le considérerons simplement comme un champ incohérent dans l'état $|N\rangle$. Tous les effets que nous allons décrire avec un tel modèle seront les mêmes que ceux produits par un champ classique cohérent d'amplitude

$$H_1 = \frac{2\lambda \sqrt{N}}{\gamma_\alpha}$$

à condition de moyenner les effets sur la phase ϕ supposée aléatoire de ce champ. En d'autres termes, nous allons simplement rendre compte ici des effets indépendants de la phase du champ et nous laisserons pour les chapitres suivants la description des effets qui en dépendent (modulations des signaux détectés aux harmoniques de la fréquence ω).

1) Les anticroisements de niveaux et la résonance magnétique

a) La précession de Rabi et la résonance magnétique ordinaire (champ de radiofréquence tournant en polarisation σ_+)

Supposons qu'à l'instant $t = 0$ on introduise brusquement dans une région où règne un champ de radiofréquence tournant σ_+ , un spin $1/2$ dans l'état $|-\rangle$: les corrélations entre l'atome et le champ étant supposées nulles avant cet instant, le système "atome + champ" se trouve instantanément préparé dans l'état $|-, N\rangle$. Au voisinage de l'anticroisement des niveaux $|-, N\rangle$ et $|+, N-1\rangle$, il existe une probabilité importante $P_{-, N, +N-1}(t)$ de retrouver, à l'instant t , le système dans l'état $|+, N-1\rangle$. Cette probabilité est donnée par la formule (I,A,9) dans laquelle θ est défini par (I,C,6) et $(E_+ - E_-)$ à l'aide de (I,C,7) :

$$P_{-, N, +N-1}(t) = \frac{\omega_1^2(N)}{(\omega_0 - \omega)^2 + \omega_1^2(N)} \sin^2 \frac{1}{2} \sqrt{(\omega_0 - \omega)^2 + \omega_1^2(N)} t \quad (\text{I,D,1})$$

Le battement quantique associé à l'anticroisement de l'atome habillé représente dans ce cas le phénomène bien connu de la précession de Rabi (⁴⁹) du spin atomique.

dans le champ de radiofréquence : la fréquence de précession à résonance ($\omega_0 = \omega$) est égale à la fréquence de Larmor $\omega_1(N)$ associée au champ de radiofréquence tournant. Augmenter l'intensité du champ de radiofréquence revient à augmenter le nombre N de photons contenus dans le champ et à "explorer" des anticroisements du diagramme, d'ordonnée et de "force" de plus en plus grandes. Il apparaît d'autre part clairement sur ce modèle quantique que l'oscillation entre les états atomiques $-1/2$ et $+1/2$ s'accompagne de l'absorption et de l'émission induite d'un photon de radiofréquence, le nombre de photons contenus dans le champ oscillant à la même fréquence que les populations des niveaux $m = \pm 1/2$ (*).

Si l'on prépare de façon continue le système dans l'état $|-, N\rangle$ et si l'on suppose de plus qu'un processus de relaxation confère aux niveaux atomiques une durée de vie $1/\Gamma$, la probabilité moyenne de transition des atomes de l'état $-1/2$ à l'état $+1/2$ s'obtiendra en moyennant $P_{-,N,+N-1}(t)$ sur la durée de vie (cf. § I-A-1) :

$$\overline{P_{-,N,+N-1}} = \frac{\omega_1^2}{(\omega_0 - \omega)^2 + \omega_1^2 + \Gamma^2} \quad (\text{I,D,2})$$

On retrouve ainsi la forme classique de la raie de résonance magnétique en champ tournant avec toutes ses caractéristiques (intensité en ω_1^2 à faible niveau de radiofréquence, largeur en $\sqrt{\Gamma^2 + \omega_1^2}$, etc.).

b) Les transitions à plusieurs quanta

(champ de radiofréquence de polarisation quelconque)

Le phénomène de précession de Rabi peut s'observer au voisinage de n'importe quel anticroisement de l'atome habillé si la polarisation du champ n'est plus σ_+ , mais quelconque. Au voisinage de l'anticroisement $\omega_0 = p\omega$, l'oscillation entre les niveaux $|-, N\rangle$ et $|+, N-p\rangle$ correspond à l'absorption et à l'émission induites, alternées à la fréquence de Rabi, de p photons de radiofréquence. Cette fréquence, à résonance, est proportionnelle à $\frac{\omega_1^p}{\omega^{p-1}}$. Le maximum de l'amplitude d'oscillation se trouve déplacé en ω_1^2/ω avec le centre de l'anticroisement lorsque l'amplitude du couplage (donc le nombre de photons N) augmente.

(*) Les modifications relatives subies par le champ au cours de cette oscillation (variation en $1/N$ du nombre de photons) sont bien négligeables conformément à l'hypothèse d'inertie faite plus haut.

On peut également, si le système est préparé de façon continue dans l'état $|-,N\rangle$, associer à cette précession de Rabi une probabilité moyenne de transition $\bar{P}_{-,N,+N-p}$ à p quanta donnée par la formule :

$$\bar{P}_{-,N,+N-p} = I_p \frac{\frac{\omega_1^{2p}}{\omega^{2p-2}}}{\left[\omega_0 - p\omega + \delta_p \frac{\omega_1^2}{\omega}\right]^2 + e_p \frac{\omega_1^{2p}}{\omega^{2p-2}} + \Gamma^2} \quad (I,D,3)$$

Les quantités I_p , δ_p , e_p sont des coefficients sans dimensions d'intensité, de déplacement et d'élargissements radiatifs qui dépendent des paramètres de l'anticroisement et qui sont entièrement calculables à partir des éléments de la "matrice de déplacement" R (voir en Appendice II le calcul du coefficient δ_p dans le cas d'un champ linéaire en polarisation σ). La résonance (I,D,3) n'existe évidemment que si les niveaux $|-,N\rangle$ et $|+,N-p\rangle$ s'anticroisent, c'est-à-dire si la polarisation du champ de radiofréquence autorise la conservation du moment cinétique du système global "atome + champ" au cours de la transition : un simple examen du diagramme d'énergie des figures 7 montre qu'en polarisation σ , il apparaît un spectre impair $\omega_0 = (2p+1)\omega$ de résonances, alors que si la polarisation est une superposition cohérente de composantes σ_+ , σ_- et π , il apparaît en général un spectre complet de résonances $\omega_0 = p\omega$. L'intensité de la résonance à p quanta, en $\omega_1^{2p}/\omega^{2p-2}$ varie comme la puissance 2p de l'amplitude du champ de radiofréquence. Sa largeur en champ

magnétique, égale à $\frac{2}{\gamma_\alpha} \sqrt{\Gamma^2 + e_p \frac{\omega_1^{2p}}{\omega^{2p-2}}}$, est à fort niveau de radiofréquence proportionnelle à la force en ω_1^p/ω^{p-1} de l'anticroisement correspondant.

La résonance subit enfin, avec le centre de l'anticroisement auquel elle est associée, un déplacement en $\omega_1^2/\gamma_\alpha\omega$, qui n'est autre que le déplacement de BLOCH-SIEGERT (²⁸) bien connu. On retrouve ainsi les principales propriétés des transitions à plusieurs quanta (¹²) observées dans une vapeur atomique; ces propriétés apparaissent ici comme directement liées aux caractéristiques principales des anticroisements de niveaux d'énergie de l'atome habillé.

Le cas de la résonance associée à l'anticroisement en champ nul pour une polarisation cohérente et non linéaire de la radiofréquence (⁵⁰) (figure 7-d) est quelque peu à part. Il correspond en effet à une transition atomique sans changement du nombre de photons et sera étudié plus en détail au § I-D-3.

c) "Balayage adiabatique rapide" de la résonance magnétique

Préparant le système "atome + champ" initialement dans l'état $|-,N\rangle$, on peut également balayer le champ magnétique autour du point d'anticroisement $\omega_0 = p\omega$ suivant la méthode que nous avons décrite au § I-A-1-c. Si le temps T du balayage est suffisamment long devant la période de la précession de Rabi associée à l'anticroisement, et suffisamment court devant le temps de relaxation des atomes, le système se retrouve à la fin de l'opération dans l'état $|+,N-p\rangle$, le spin ayant basculé en absorbant p photons : c'est le principe du balayage adiabatique rapide de la résonance magnétique ⁽²³⁾ qui s'interprète ainsi très aisément aussi bien pour la résonance magnétique ordinaire que pour les transitions à plusieurs quanta, à l'aide des diagrammes d'énergie de l'atome habillé.

d) Résonance magnétique sur un jet

Un grand nombre d'expériences de résonance magnétique sont effectuées sur des jets atomiques. Les formes de raie observées dans de telles conditions ⁽⁵¹⁾ peuvent être très différentes de celles qui sont données par les formules (I,D,2) et (I,D,3), ces dernières correspondant au cas où les atomes sont soumis pendant toute leur durée de vie à un champ de radiofréquence homogène d'amplitude constante : par exemple, les largeurs de raies observées sur un jet peuvent, dans certaines conditions, être beaucoup plus faibles que celles qu'on observe sur une vapeur atomique soumise au même champ de radiofréquence. Cet effet a été étudié par WINTER et BARRAT dans le cadre d'un traitement classique de la radiofréquence ⁽⁴³⁾. Nous sommes en mesure d'en donner une interprétation dans le formalisme de l'atome habillé, à l'aide des résultats généraux du § I-A-1-d. Nous pouvons en effet schématiser une expérience de jet de la façon suivante : les atomes se trouvent préparés dans l'état $-1/2$ dans une région (i) de l'espace; ils pénètrent ensuite dans une région (ii) où règne le champ de radiofréquence contenant N photons, puis ils ressortent de cette région et se trouvent analysés dans une région (iii). L'atome se déplaçant dans une portion de l'espace où le champ de radiofréquence varie, le couplage V ne peut être décrit par l'équation (I,B,14) qui correspond au cas de l'interaction avec une onde plane indéfinie, mais par la formule (I,B,16) qui, si l'on suppose pour simplifier que seule l'amplitude et non la polarisation du champ varie le long du jet s'écrit :

$$V = \lambda(\vec{r}) \left[a \vec{J} \vec{\epsilon} + a^\dagger \vec{J} \vec{\epsilon}^* \right] \quad (I,D,4)$$

Pour chaque atome, la constante de couplage $\lambda(\vec{r})$ apparaît ainsi comme une fonction implicite du temps qui commence par augmenter, passe par un maximum, puis décroît. Si la variation de $\lambda(\vec{r})$, supposée très lente et régulière, peut être décrite par une fonction exponentielle du temps (cf. formule (I,A,12)), tout se passe comme si le spin atomique se trouvait branché, puis débranché progressivement avec la radiofréquence. Pour la résonance magnétique ordinaire (anticroisement simple), on peut alors appliquer les résultats établis au § I-A-1-d : appelons T le temps de traversée de la région (ii) d'interaction avec le champ (on supposera T court devant le temps de relaxation des atomes); le "branchement" et le "débranchement" du couplage pourront être considérés comme adiabatiques au voisinage du champ $\omega_0 = \omega$ tant que la condition de séparation des niveaux "non perturbés" de \mathcal{H}_0 :

$$|\omega_0 - \omega| \gg \frac{1}{T} \quad (I,D,5)$$

sera réalisée. Il n'y aura alors pratiquement pas de transition irréversible du système à la sortie de la région d'interaction et la probabilité $P_{-N,+N-1}$ de basculement du spin sera très faible. Au contraire, si la condition (I,D,5) n'est pas remplie, on a une probabilité notable de transition irréversible de $|-,N\rangle$ à $|+,N-1\rangle$ et $P_{-N,+N-1}$ devient important. La probabilité de transition est donc, dans une telle expérience, résonnante sur une largeur de l'ordre de $1/T$ autour du champ $\omega_0 = \omega$. On fait ainsi apparaître le rôle essentiel joué par le temps de vol dans la région d'interaction : dans les conditions que nous venons de décrire, c'est ce temps de vol qui détermine la largeur de raie et non, comme dans une vapeur atomique, l'amplitude du champ de radiofréquence. Si cette dernière est importante ($\omega_1 > \frac{1}{T}$), on comprend que la raie observée sur le jet soit beaucoup plus fine que celle qu'on observe dans la vapeur.

Si l'on s'intéresse en général aux transitions à plusieurs quanta, le problème se trouve compliqué du fait du déplacement du point d'anticroisement lorsque le champ vu par l'atome varie (cf. note page 21). La position et la forme de la raie dépendent alors de la façon dont changent avec le temps la position et la "force" de l'anticroisement. Le calcul du signal est, dans ce cas, beaucoup plus compliqué que pour un anticroisement simple et nous ne l'aborderons pas ici. Nous remarquerons simplement que le formalisme de l'atome habillé, qui ramène finalement toutes les transitions à plusieurs quanta à un problème à deux niveaux, permet d'analyser ce problème délicat en termes relativement simples.

2) Les croisements de niveaux et les résonances de cohérence de l'atome habillé

a) Introduction

Supposons qu'on prépare, à l'instant $t = 0$, un spin $1/2$ dans une superposition cohérente $|\psi_0\rangle$ des états $|+ 1/2\rangle$ et $|- 1/2\rangle$:

$$|\psi_0\rangle = C_+ |+\rangle + C_- |-\rangle \quad (\text{I,D,6})$$

On introduit ainsi sur l'atome une orientation transversale :

$$\langle J_+(0) \rangle = \langle \psi_0 | J_+ | \psi_0 \rangle = C_+^* C_- \quad (\text{I,D,7})$$

Si le spin est libre (pas de champ de radiofréquence), l'orientation ainsi préparée va évoluer à la fréquence de Larmor ω_0 et à l'instant t , on aura :

$$\langle J_+(t) \rangle = C_+^* C_- e^{i\omega_0 t} \quad (\text{I,D,8})$$

Dans une telle expérience, le moment transversal ne peut être statique qu'en champ nul, au croisement des sous-niveaux Zeeman $+1/2$ et $-1/2$. Dans le cas où le système se trouve préparé de façon continue dans l'état $|\psi_0\rangle$ et où il subit une relaxation qui lui confère une durée de vie $1/\Gamma$, nous avons vu (§ I-A-3-c) qu'il existe alors un effet d'accumulation résonnante de moment transversal autour du champ nul (effet Hanle) ⁽⁴⁴⁾⁽⁴⁵⁾.

Nous nous proposons de décrire ici ce que devient la précession du spin lorsque l'atome interagit avec un champ de radiofréquence. Nous allons notamment montrer qu'il peut apparaître dans le mouvement de $\langle J_+ \rangle$ une composante statique, non seulement au voisinage du champ nul, comme sur l'atome libre, mais aussi au voisinage d'autres croisements de l'atome habillé en champ non nul. L'existence de ces composantes statiques rend possible une accumulation résonnante du moment transversal en champ non nul et est à l'origine de résonances de cohérence de l'atome habillé (ressemblant beaucoup à l'effet Hanle de l'atome libre) qui ne sont autres que les "résonances magnétiques de cohérence" signalées dans l'Introduction de ce mémoire. Puisque c'est précisément la recherche d'une interprétation quantique en terme de photons de ces résonances qui a contribué à motiver le présent travail, nous allons les décrire ici de façon assez détaillée en insistant sur leurs

caractéristiques essentielles et leur interprétation physique. Nous les étudierons d'abord dans le cas simple d'un champ de radiofréquence en polarisation σ_+ (§ IV-D-2-b), puis dans le cas général (§ IV-D-2-c).

b) Cas d'un champ de radiofréquence tournant en polarisation σ_+

Supposons qu'à l'instant $t = 0$, on prépare le système "atome + champ" dans l'état :

$$|\psi_{0,N}\rangle = C_+ |+,N\rangle + C_- |-,N\rangle \quad (I,D,9)$$

superposition cohérente de deux états propres de l'hamiltonien non perturbé \mathcal{H}_0 . Nous avons représenté ces deux niveaux sur la figure 10, l'état $|+,N\rangle$ en trait plein, l'état $|-,N\rangle$ en pointillé. Le niveau $|+,N\rangle$ se décompose sur les deux états propres de l'atome habillé $|+\rangle_N^{(h)}$ et $|-\rangle_N^{(h)}$ qui résultent de son anticroisement avec le niveau $|-,N+1\rangle$ (cf. relation (I,C,5)). Nous avons représenté ces deux niveaux, comme l'état $|+,N\rangle$, en traits pleins. De même, le niveau $|-,N\rangle$ se décompose sur les deux niveaux de l'atome habillé $|+\rangle_{N-1}^{(h)}$ et $|-\rangle_{N-1}^{(h)}$ (représentés en traits pointillés) qui proviennent de son anticroisement avec le niveau $|+,N-1\rangle$. Il en résulte que l'on a excité à l'instant $t = 0$ une superposition cohérente des quatre niveaux de l'atome habillé $|+\rangle_N^{(h)}$, $|-\rangle_N^{(h)}$, $|+\rangle_{N-1}^{(h)}$, $|-\rangle_{N-1}^{(h)}$ représentés sur la figure 10;

- L'évolution ultérieure du moment transversal ainsi introduit à l'instant $t = 0$ dans le système va s'effectuer aux fréquences de Bohr de l'atome habillé définies entre ces différents niveaux, pris deux à deux. De façon plus précise, l'amplitude du mouvement associé à chacune de ces fréquences sera proportionnelle à l'élément de matrice de J_+ entre les deux niveaux de l'atome habillé correspondant. Pour déterminer ces éléments de matrice, remarquons que parmi les quatre états "non perturbés" de \mathcal{H}_0 $|+,N\rangle$, $|-,N\rangle$, $|+,N-1\rangle$, $|-,N+1\rangle$, qui interviennent dans le développement des quatre niveaux mentionnés plus haut, seuls $|+,N\rangle$ et $|-,N\rangle$ peuvent être couplés par J_+ qui, étant un opérateur purement atomique, doit obéir à la règle de sélection $\Delta N = 0$. Il en résulte donc que J_+ possède un élément de matrice non nul entre l'un quelconque des niveaux $|\pm\rangle_N^{(h)}$ (qui contiennent tous deux le niveau $|+,N\rangle$) et l'un quelconque des niveaux $|\pm\rangle_{N-1}^{(h)}$ (qui contiennent tous deux le niveau $|-,N\rangle$). Le moment transversal introduit dans la vapeur est alors une somme de quatre termes : deux d'entre eux, correspondant aux éléments de matrice $\langle + | J_+ | + \rangle_{N-1}^{(h)}$ et $\langle - | J_+ | - \rangle_{N-1}^{(h)}$, évoluent à la fréquence ω (flèches n° 1 sur la figure 10); celui qui correspond à l'élément de matrice $\langle + | J_+ | - \rangle_{N-1}^{(h)}$

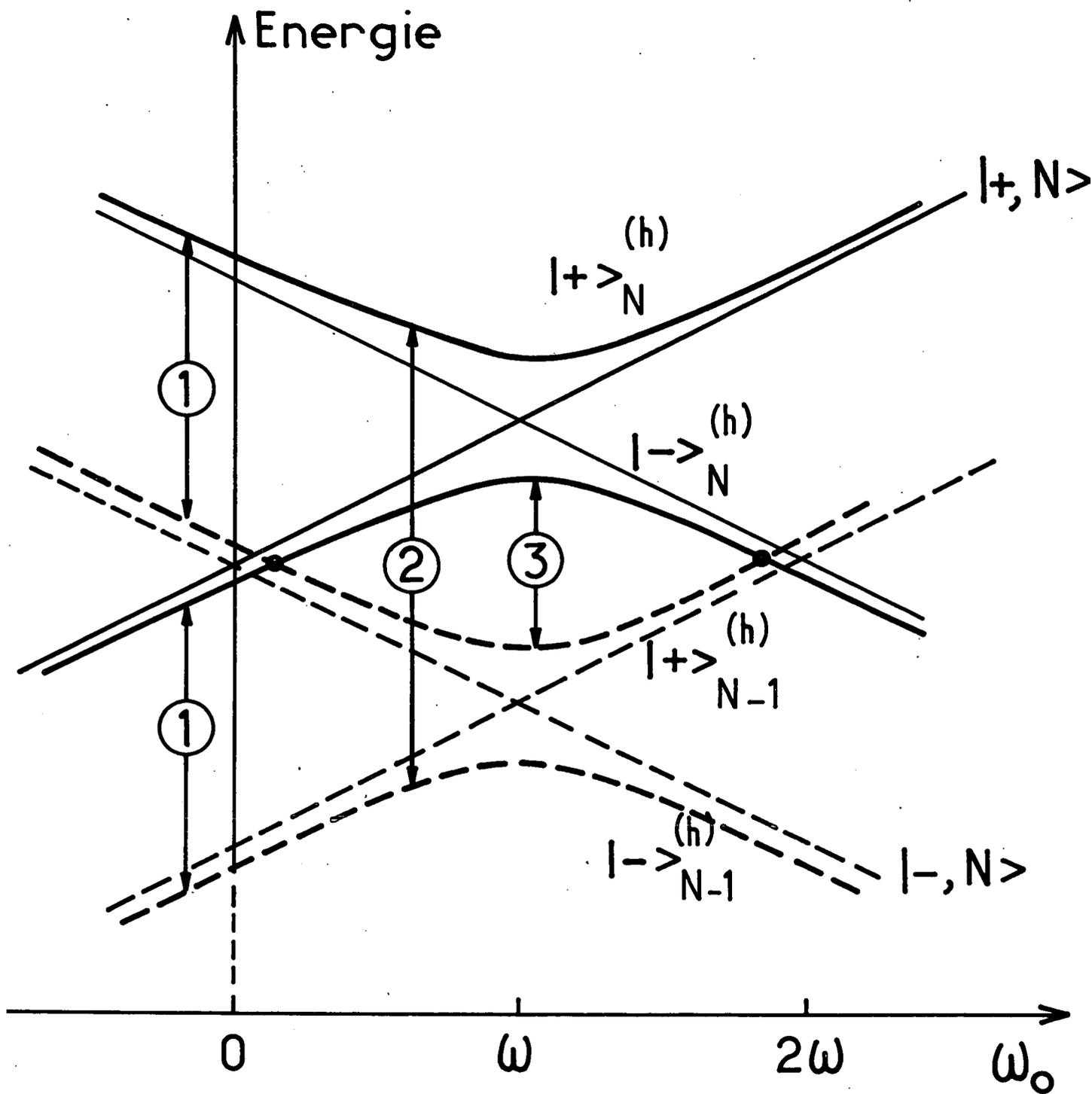


Fig. 10

évolue à la fréquence $\omega + \sqrt{(\omega_0 - \omega)^2 + \omega_1^2}$ (flèche n° 2); enfin, celui qui correspond à l'élément de matrice $\langle N | J_+ | N-1 \rangle^{(h)}$ évolue à la fréquence $\omega - \sqrt{(\omega_0 - \omega)^2 + \omega_1^2}$ (flèche n° 3). Ainsi, au lieu d'une composante de Fourier seulement comme sur l'atome libre, la précession du spin sur l'atome habillé présente trois composantes de Fourier à des fréquences différentes dont l'une ($\omega - \sqrt{(\omega_0 - \omega)^2 + \omega_1^2}$) s'annule aux deux croisements des niveaux $| - \rangle_N^{(h)}$ et $| + \rangle_{N-1}^{(h)}$ qui, en couplage faible ($\omega_1 \ll \omega$), se situent au voisinage des champs $\omega_0 = 0$ et $\omega_0 = 2\omega$.

- Nous mettons ainsi clairement en évidence l'existence d'une composante statique du moment transversal apparaissant en champ non nul. Pour calculer cette composante, nous allons, au voisinage du champ $\omega_0 = 2\omega$, développer les états propres de l'atome habillé sur les états non perturbés suivant les expressions tirées de (I,C,8) :

$$\begin{aligned} |+, N-1 \rangle^{(h)} &= |+, N-1 \rangle + \frac{\omega_1}{2\omega} |-, N \rangle + \dots \\ |-, N+1 \rangle^{(h)} &= |-, N+1 \rangle - \frac{\omega_1}{2\omega} |+, N \rangle + \dots \end{aligned} \quad (I,D,10)$$

On déduit alors immédiatement de (I,D,9) et de (I,D,10) la composante du moment transversal statique au point de croisement (*) :

$$\begin{aligned} \langle \psi_0, N | J_+ | \psi_0, N \rangle_{\text{stat.}} &= \langle \psi_0, N | - \rangle_{N+1}^{(h)} \langle - \rangle_{N+1}^{(h)} \langle - \rangle_{N+1} | J_+ | + \rangle_{N-1}^{(h)} \langle + \rangle_{N-1}^{(h)} \langle + \rangle_{N-1} | \psi_0, N \rangle \\ &= C_+^* C_- \frac{\omega_1^4}{16\omega^4} \end{aligned} \quad (I,D,11)$$

- Si l'on prépare de façon continue le système dans l'état $|\psi_0, N \rangle$ (les atomes étant de plus soumis à un processus de relaxation) et si l'on détecte la composante transversale J_x du moment cinétique, le signal S va présenter au voisinage du champ $\omega_0 = 2\omega$ une résonance (⁵²) correspondant à l'accumulation, pour cette valeur

(*) Notons que l'expression (I,D,11) n'est valable qu'à la limite des faibles couplages pour lesquels on peut effectuer le développement limité (I,D,10) des états propres de \mathcal{H} . Comme on connaît dans ce cas la forme exacte des niveaux de l'atome habillé, il serait possible d'effectuer un calcul rigoureux de $\langle \psi_0, N | J_+ | \psi_0, N \rangle$. Nous préférons cependant pour l'instant nous limiter à un calcul de perturbation qui met mieux en évidence les processus physiques élémentaires qui permettent l'observation des résonances de cohérence. Le calcul exact du signal est d'ailleurs effectué au chapitre IV.

du champ, du moment transversal dans la vapeur atomique : on aura (cf. formule (I,A,20)) :

$$S = \Gamma \operatorname{Re} \frac{C_+^* C_- \frac{\omega_1^4}{16\omega^4}}{\Gamma - i(\omega_0 - 2\omega + \delta_2 \frac{\omega_1^2}{\omega})}$$

$$= \left\{ I_A \frac{\Gamma^2}{\Gamma^2 + (\omega_0 - 2\omega + \delta_2 \frac{\omega_1^2}{\omega})^2} + \frac{I_D \Gamma(\omega_0 - 2\omega + \delta_2 \frac{\omega_1^2}{\omega})}{\Gamma^2 + (\omega_0 - 2\omega + \delta_2 \frac{\omega_1^2}{\omega})^2} \right\} \frac{\omega_1^4}{\omega^4} \quad (\text{I,D,14})$$

S se présente ainsi sous la forme d'une somme de courbes d'absorption et de dispersion de Lorentz, les coefficients numériques I_A et I_D dépendant de conditions exactes de l'excitation (par l'intermédiaire de $C_+^* C_-$). La résonance ainsi obtenue va, comme le croisement de niveaux auquel elle est associée, subir un déplacement en ω_1^2/ω quand l'intensité de la radiofréquence augmente.

Remarquons également qu'une résonance de cohérence analogue apparaît au croisement de niveaux voisins du champ nul (⁵³). Cette dernière résonance existe d'ailleurs sur l'atome libre (elle apparaît à l'ordre zéro en ω_1/ω) et correspond, à la limite $\omega_1 = 0$, à l'effet Hanle ordinaire (⁴⁴). Lorsque l'intensité du couplage augmente, les deux résonances initialement en $\omega_0 = 0$ et $\omega_0 = 2\omega$ se déplacent l'une vers l'autre, se confondent dans le champ $\omega_0 = \omega$ pour la valeur $\omega_1 = \omega$ du couplage et disparaissent si $\omega_1 > \omega$ (lorsque le déplacement des résonances est devenu relativement important, l'expression (I,D,14) issue d'un calcul de perturbation n'est évidemment plus valable. Voir note page 55).

- La résonance magnétique $\omega_0 = 2\omega$ que nous venons ainsi de mettre en évidence est d'une nature totalement différente de la résonance magnétique ordinaire ou des résonances de transition à plusieurs quanta étudiées au paragraphe précédent. Il est bien clair, par exemple, que cette résonance n'est pas associée à un processus réel d'absorption ou d'émission de photons de radiofréquence par l'atome, l'énergie et le moment cinétique ne pouvant être simultanément conservés dans un tel processus au voisinage du champ $\omega_0 = 2\omega$. Il est évident cependant que cette résonance est induite par le couplage entre l'atome et la radiofréquence et il est donc important de la comprendre en terme de processus élémentaire impliquant l'interaction de photons de radiofréquence avec le système atomique. Dans ce but, nous allons commencer par étudier ce que devient cette résonance à la limite où le couplage V s'annule : les deux états non perturbés de \mathcal{H}_0 ($|-, N+1 \rangle$ et $|+, N-1 \rangle$) qui se croisent dans

le champ $\omega_0 = 2\omega$ contiennent des nombres de photons différents et ne peuvent donc être simultanément excités lorsque le système se trouve préparé dans l'état $|\psi_0, N\rangle$; d'autre part, et même si une telle excitation était possible, le moment transversal J_+ , opérateur atomique, ne peut avoir d'élément de matrice non nul entre ces états. Ainsi, la composante statique du moment transversal ne peut, à la limite où le couplage s'annule, être ni excitée, ni détectée. Par contre, dès que ω_1 est différent de zéro, les niveaux $|- , N+1\rangle$ et $|+ , N-1\rangle$ sont "contaminés" sous l'effet du couplage par les états $|+ , N\rangle$ et $|- , N\rangle$ contenant un même nombre de photons (équ. (I,D,10)); l'excitation et la détection cohérente des deux niveaux de l'atome habillé qui se croisent est alors rendue possible par cette contamination qui est, comme nous l'avons vu au § I-C-2-a, liée à l'existence d'absorptions et d'émissions induites virtuelles de photons de radiofréquence par le système atomique. Ce sont donc ces processus, non résonnants dans le champ $\omega_0 = 2\omega$, qui sont responsables de l'apparition de la résonance de cohérence de l'atome habillé.

c) Autres polarisations de la radiofréquence

Dans le cas du champ tournant, le nombre de fréquences propres apparaissant dans le mouvement transversal du spin, ainsi que le nombre de croisements de niveaux où l'une de ces fréquences s'annule, est limité : ceci est dû à la structure du terme d'interaction V qui ne couple chaque état propre de \mathcal{H}_0 qu'à un seul autre.

Nous avons vu, au § I-C, qu'il existe d'autres polarisations du champ de radiofréquence pour lesquelles il apparaît des croisements de niveaux sur le diagramme d'énergie : c'est le cas notamment des champs linéaires en polarisation π ou σ . Avec de telles polarisations, un niveau $|m, n\rangle$ se trouve couplé par V à une infinité d'autres (aux niveaux $|m, n+p\rangle$ pour la polarisation π , $|m, n+2p\rangle$ et $|-m, n+2p+1\rangle$ pour la polarisation σ). Il en résulte que le pompage transversal de l'atome prépare l'atome habillé dans une superposition cohérente d'une infinité de niveaux d'énergie et qu'il apparaît donc une infinité de fréquences propres dans le mouvement du spin (*). A chacun des croisements de niveaux de l'atome habillé

(*) Le cas du champ de radiofréquence en polarisation π est particulièrement intéressant : les fréquences propres du moment transversal sont alors égales aux fréquences de Bohr $\omega_0 + p\omega$ du diagramme d'énergie de la figure 7-a : on retrouve ainsi dans notre formalisme quantique le fait que la fréquence de Larmor du spin atomique dans un champ magnétique modulé en amplitude à la fréquence ω doit présenter les bandes latérales caractéristiques de la modulation de fréquence. (47)

l'une de ces fréquences propres s'annule et il apparaît dans le champ correspondant une composante statique du moment transversal. L'existence de cette composante statique est, comme dans le cas du champ tournant, directement liée aux processus d'absorption et émissions virtuelles de photons de radiofréquence par l'atome. En pompage continu, le signal S détecté transversalement présentera des variations résonnantes au voisinage de tous les croisements où cette composante statique sera susceptible de s'accumuler. Pour un croisement $\omega_0 = p\omega$, on pourra mettre le signal, à la limite des faibles couplages, sous une forme analogue à (I,D,14) :

$$S = \left(\frac{\omega_1}{\omega}\right)^{2p} \left[I_A \frac{\Gamma^2}{\Gamma^2 + \left(\omega_0 - p\omega + \delta p \frac{\omega_1^2}{\omega}\right)^2} + \frac{I_D \Gamma \left(\omega_0 - p\omega + \delta p \frac{\omega_1^2}{\omega}\right)}{\Gamma^2 + \left(\omega_0 - p\omega + \delta p \frac{\omega_1^2}{\omega}\right)^2} \right] \quad (\text{I,D,15})$$

Les résonances observées forment un spectre complémentaire de celui des transitions à plusieurs quanta ; dans le cas d'un champ de radiofréquence linéaire en polarisation π parallèle à H_0 , on obtient un spectre "complet" de résonances $\omega_0 = p\omega$. Ces résonances ne subissent aucun déplacement lorsque l'intensité du champ de radiofréquence augmente. Elles ont été observées par de nombreux auteurs ⁽¹⁵⁾⁽¹⁷⁾⁽¹⁸⁾ et peuvent être qualifiées de "résonances paramétriques" ou de résonances de "modulation de fréquence".

Dans le cas d'un champ de radiofréquence linéaire en polarisation σ , on observe un spectre "pair" de résonances ⁽¹⁹⁾⁽²²⁾ $\omega_0 = 2p\omega$ qui se déplacent lorsque le couplage augmente vers les faibles champs magnétiques (voir en Appendice II le calcul du déplacement proportionnel à ω_1^2/ω à la limite où le couplage est faible) pour venir finalement disparaître deux à deux en champ nul pour les valeurs du couplage correspondant aux annulations successives du facteur de Landé de l'atome habillé (cf. relation (I,C,11)). Enfin, dans le cas d'une polarisation linéaire de la radiofréquence, superposition cohérente de photons σ_+ , σ_- et π (figure 7-c), seule subsiste la résonance associée au croisement de niveaux en champ nul.

d) Comparaison entre la résonance magnétique à un ou plusieurs quanta et les résonances de cohérence de l'atome habillé

Toutes les résonances de cohérence, dont l'interprétation est, comme nous l'avons montré, fondamentalement différente de celle des résonances magnétiques ordinaires à un ou plusieurs quanta, présentent des caractéristiques qui les distinguent nettement de ces dernières :

- On ne peut en effet les observer qu'en excitant de façon cohérente les états propres de l'atome habillé qui se croisent. Nous avons admis ici (et nous le démontrerons rigoureusement au chapitre IV), que dans le cas d'un spin 1/2, cette excitation cohérente n'est réalisable qu'en pompage atomique transversal; au contraire, la résonance magnétique et les transitions à plusieurs quanta sont observables en pompage atomique longitudinal.

- Si l'on compare à partir des formules (I,D,3) et (I,D,15) l'intensité de la résonance de cohérence de l'atome habillé apparaissant à un ordre $2p$ en ω_1/ω à celle d'une transition réelle à p quanta non saturée (c'est-à-dire non encore élargie par radiofréquence), on constate que la première est proportionnelle à $(\frac{\omega_1}{\omega})^{2p}$ et la seconde à $\frac{\omega_1^{2p}}{\Gamma^2 \omega^{2p-2}}$: les résonances de cohérence sont donc, à ordre de perturbation égal, d'un facteur Γ^2/ω^2 fois plus petites que les transitions à plusieurs quanta (*). Ce résultat est lié à la différence de nature des transitions de radiofréquence impliquées dans les deux types de résonances : dans le cas des résonances de cohérence, il s'agit de transitions virtuelles dont l'amplitude de probabilité est très faible et non résonnante lorsqu'on varie le champ magnétique (le caractère résonnant du signal étant dû uniquement à la variation des énergies propres de l'atome habillé au point de croisement); dans le cas de la résonance magnétique à un ou plusieurs quanta, ce sont au contraire des transitions réelles et résonnantes qui se produisent, ce qui explique que, pour un nombre donné de transitions impliquées (c'est-à-dire encore à un ordre donné de perturbation), ces dernières résonances l'emportent largement sur les premières.

- Enfin, la largeur des résonances de cohérence est déterminée par la largeur naturelle et la pente des niveaux qui se croisent. L'élargissement de radiofréquence de la résonance magnétique, qui est lié à l'existence des transitions réelles qui raccourcissent en quelque sorte la durée de vie des niveaux atomiques, n'existe pas pour ces résonances. Leur intensité ne subit donc pas l'effet de saturation important qui apparaît sur la résonance magnétique dès que celle-ci s'élargit. L'absence de cette saturation explique d'ailleurs que, malgré leur très faible intensité à bas niveau de radiofréquence, des résonances de cohérence puissent, grâce à leur finesse, être détectées à des niveaux de radiofréquence pour lesquels les résonances ordinaires sont complètement saturées.

(*) Nous supposerons en effet toujours dans ce travail remplie la condition $\Gamma \ll \omega$ qui implique que la radiofréquence peut osciller plusieurs fois pendant la durée de vie des niveaux.

3) Les propriétés magnétiques de l'atome habillé en champ statique faible

Nous allons maintenant nous intéresser plus particulièrement aux propriétés de l'atome habillé en champ faible telles qu'elles résultent de l'examen de son diagramme d'énergie au voisinage de $\omega_0 = 0$. Nous avons signalé au paragraphe I-C que ces diagrammes sont fondamentalement différents suivant que le champ est polarisé linéairement (figures 7-a, 7-b, 7-c) ou non (figures 6, 7-d). Dans le premier cas, il existe, quelle que soit la direction de la polarisation linéaire de la radiofréquence, un croisement de niveaux en champ nul; dans le second la dégénérescence des niveaux est levée en champ nul, soit parce que le croisement de niveaux est déplacé (figure 6), soit parce qu'il apparaît un anticroisement (figure 7-d). Commençons par analyser plus en détail l'origine des différences entre ces deux types de diagrammes.

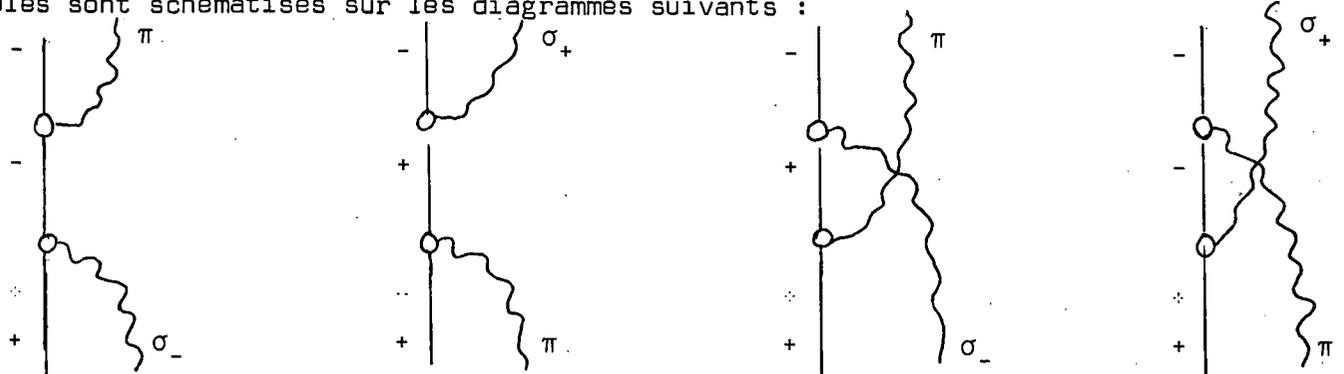
a) Différence entre les polarisations linéaires et circulaires de la radiofréquence

Pour comprendre l'aspect différent des diagrammes suivant que le champ est polarisé linéairement ou circulairement, nous pouvons adopter deux points de vue différents :

α) En champ H_0 rigoureusement nul, il est clair que la direction de quantification choisie pour le champ statique est arbitraire et que les niveaux d'énergie de l'atome habillé doivent être, pour une polarisation linéaire de la radiofréquence, les mêmes que ceux qu'on observe par exemple pour un champ de polarisation π (figure 7-a) tandis que pour une polarisation circulaire, ils doivent être les mêmes que ceux qui correspondent à une polarisation σ_+ (figure 6). On constate que dans le premier cas, la dégénérescence des niveaux qui se croisent en champ nul doit subsister quelle que soit l'intensité de la radiofréquence, alors que dans le second cas elle est levée. Ces résultats doivent rester valables quelle que soit la direction du champ linéaire ou celle du plan du champ tournant.

β) Cependant, dans le cas où le champ de radiofréquence possède une polarisation cohérente linéaire ou circulaire (superposition de polarisations σ_+ , σ_- et π), on s'attendrait, a priori, comme nous l'avons déjà signalé, à voir apparaître en champ nul un anticroisement, car les règles de sélection sur les éléments de matrice de V ne s'opposent pas à un couplage entre les niveaux $|+,N\rangle$ et $|-,N\rangle$ qui se croisent (§I-B-3). En fait, un tel couplage est au deuxième ordre la somme de quatre contributions distinctes pour lesquelles le système "atome + champ" passe par les

états intermédiaires différents $|\pm, N+1\rangle$ et $|\pm, N-1\rangle$. Les quatre processus possibles sont schématisés sur les diagrammes suivants :



et leurs contributions calculées en Appendice II. Il apparaît dans ce calcul que ces contributions s'ajoutent pour un champ de polarisation circulaire cohérente (champ statique dans le plan du champ circulaire) alors qu'elles s'annulent mutuellement pour un champ de polarisation linéaire cohérente. (champ linéaire faisant un angle ψ avec la direction de H_0 ; $\psi \neq 0, \frac{\pi}{2}$). Dans le premier cas, on observe donc bien un anticroisement en champ nul, résultant de l'existence de processus de transition résonnants de type Raman qui impliquent l'absorption et la réémission d'un photon de radiofréquence par l'atome; dans le second cas, ces processus Raman interfèrent de façon destructive et on a donc un croisement de niveaux de 2e espèce en champ nul. Les propriétés magnétiques de l'atome habillé en champ faible sont par suite très différentes dans ces deux situations.

b) Modification du moment magnétique de l'atome habillé par un champ de radiofréquence polarisé linéairement

On peut, si la radiofréquence est linéaire, définir un facteur de Landé de l'atome habillé, proportionnel à la pente des niveaux qui se croisent en champ nul. Dans le cas d'un champ en polarisation σ , nous avons vu que ce facteur de Landé diminue, s'annule et change de signe lorsque le couplage avec la radiofréquence augmente (équation (I,C,11)); dans le cas d'un champ en polarisation π au contraire, il garde, quelle que soit l'intensité du champ habillant, la même valeur que sur l'atome libre (cf. figure 7- a). C'est donc une quantité anisotrope qui dépend des orientations relatives du champ statique et du champ de radiofréquence appliqués à l'atome.

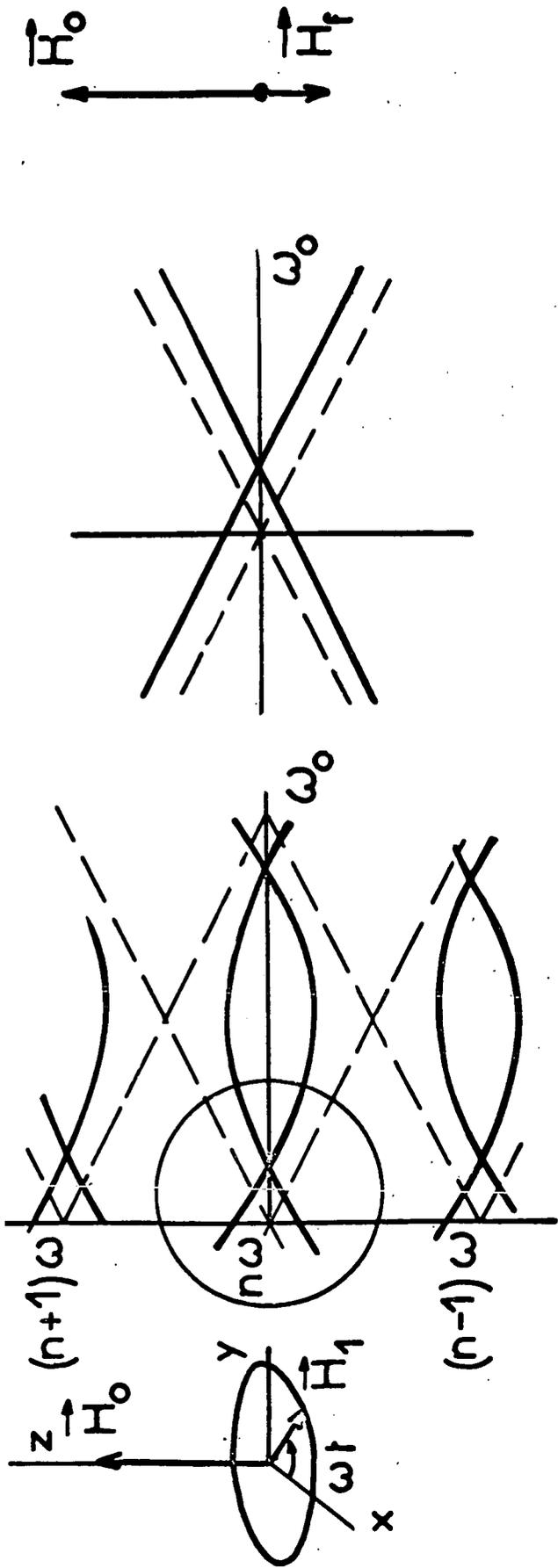
Remarquons que l'effet décrit ici est valable uniquement en champs statiques faibles ($\omega_0 \ll \omega$), dans la région où la variation des niveaux avec le champ magnétique peut être considérée comme linéaire. Pour de tels champs, la fréquence ω est très loin de la condition de résonance magnétique ($\omega_0 = \omega$). Il

s'agit donc d'un effet essentiellement non résonnant, lié à l'existence de processus d'absorption et d'émissions virtuelles de photons de radiofréquence par l'atome. Ces variations du facteur de Landé entraînent une modification corollaire de toutes les propriétés paramagnétiques du système atomique en interaction avec la radiofréquence. Citons, entre autres, les effets suivants : la fréquence de précession de Larmor de l'atome habillé dans un champ \vec{H}_0 perpendiculaire à la radiofréquence est réduite et se trouve annulée en même temps que le facteur de Landé (³⁰); la largeur des courbes d'effet Hanle de dépolarisation magnétique, inversement proportionnelle au facteur de Landé, est au contraire augmentée, et cela dans des proportions considérables pour les valeurs du couplage avec la radiofréquence qui annulent la pente des niveaux (²⁹). L'écartement des raies du spectre Zeeman entre deux niveaux atomiques habillés est également modifié, les raies se rapprochant les unes des autres et venant se confondre lorsqu'on annule le facteur de Landé (³¹) (voir § I-E-1). La relaxation magnétique liée aux transitions induites entre niveaux atomiques par des champs magnétiques inhomogènes peut être considérablement réduite lorsqu'on amoindrit la sensibilité magnétique des atomes en diminuant, par couplage avec le champ habillant, leur moment magnétique (⁵⁴). Enfin, la modification du facteur de Landé, qui dépend du rapport gyromagnétique atomique γ_α du niveau, est différente dans un champ de radiofréquence donné, pour différentes espèces atomiques. On peut utiliser cette propriété pour égaliser les facteurs de Landé de deux variétés atomiques distinctes, ce qui permet d'obtenir des effets intéressants de circulation de cohérence entre les deux systèmes (⁵⁵). Tous ces phénomènes sont étudiés en détail dans la suite de ce travail tant sur le plan théorique (chapitres V, VI, VII) qu'expérimental (chapitres IX, X et XI).

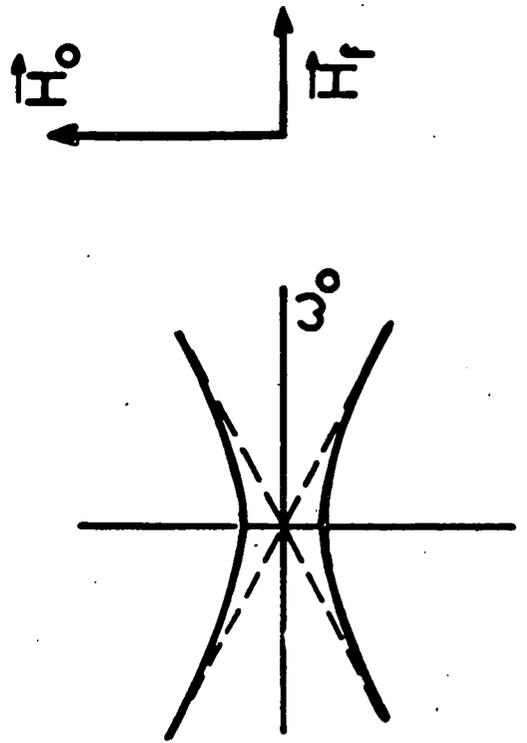
c) Champ statique équivalent à un champ de radiofréquence polarisé circulairement

Les figures 11-a et 11-b montrent les niveaux d'énergie de l'atome habillé en couplage faible et au voisinage du champ nul lorsque le champ de radiofréquence \vec{H}_1 tourne dans un plan perpendiculaire au champ statique \vec{H}_0 (polarisation σ_+ : figure 11-a) ou dans un plan parallèle à ce champ (polarisation cohérente σ_+ , σ_- , π : figure 11-b).

Nous constatons que dans le premier cas, le croisement en champ nul des sous-niveaux Zeeman se trouve déplacé d'une quantité du second ordre égale à $\omega_1^2/2\omega$, alors que dans le second cas, il apparaît un anticroisement du 2e ordre en champ nul, de "force" $\omega_1^2/2\omega$. Nous noterons l'analogie qui existe entre ces diagrammes et ceux d'un spin 1/2 dans le champ \vec{H}_0 , en présence

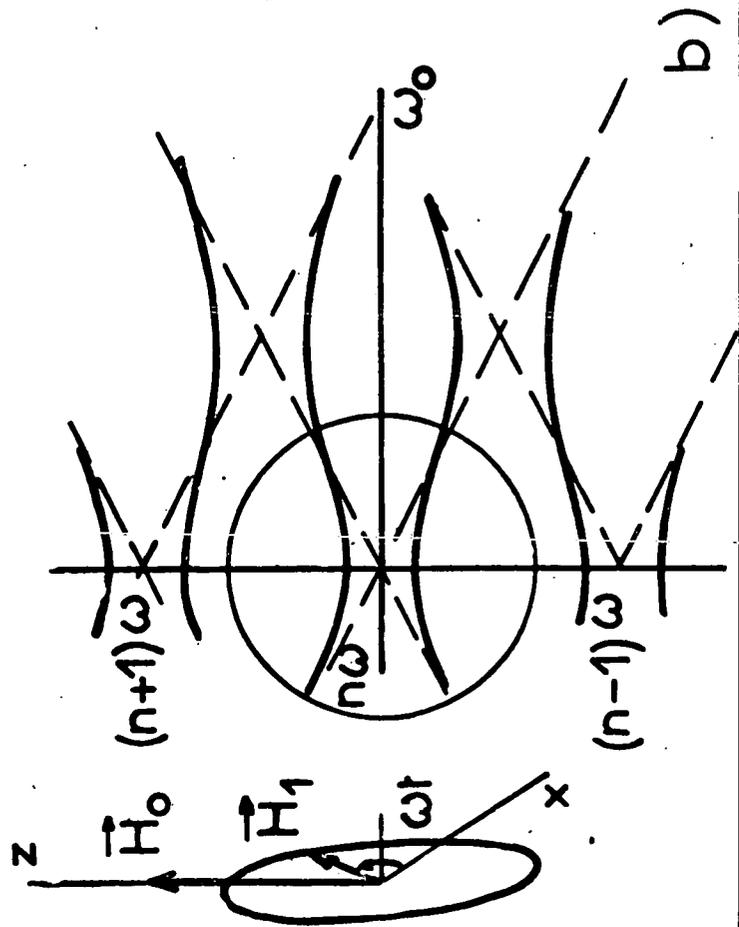


c)



d)

a)



b)

Fig - 11

d'un champ statique supplémentaire \vec{H}_f orienté parallèlement (figure 11-c) ou perpendiculairement à \vec{H}_0 (figure 11-d). Cette analogie nous suggère d'assimiler au voisinage du champ nul l'effet du champ tournant sur l'atome à celui d'un champ statique "équivalent" perpendiculaire au plan du champ tournant et mesuré sur la normale orientée à ce plan par la quantité algébrique :

$$H_f = \frac{\gamma_\alpha H_1^2}{2\omega} \quad (\text{I,D,16})$$

Cette équivalence n'est valable que si le système atomique se trouve plongé dans un champ statique H_0 suffisamment faible ($\omega_0 \ll \omega$) pour que le champ de radiofréquence soit très loin de la condition de résonance magnétique $\omega_0 = \omega$. Nous justifierons plus rigoureusement, au chapitre V, la formule (I,D,16) et analyserons en détail les implications et les limitations de la notion de champ statique équivalent à un champ de radiofréquence tournant. Bornons-nous à indiquer ici que cette notion permet d'interpréter simplement un certain nombre d'effets physiques qui se manifestent au voisinage du champ nul en présence d'un champ radiofréquence polarisé circulairement : si ce champ se trouve dans un plan perpendiculaire à \vec{H}_0 , nous avons vu qu'il apparaît une résonance magnétique de cohérence au voisinage de $\omega_0 = 0$ (§ I-D-2). On peut dire que le déplacement de cette résonance par rapport au champ nul est causé par le champ équivalent \vec{H}_f qui déplace l'effet Hanle de l'atome libre. Au contraire, si le champ de radiofréquence tourne dans un plan // à \vec{H}_0 , il apparaît en champ nul ⁽⁵⁰⁾ une résonance magnétique de type Raman correspondant aux processus d'absorption et d'émission de photons décrits par les diagrammes de la page 61; cette résonance se comprend également très bien si l'on considère que le champ équivalent \vec{H}_f transversal couple les niveaux atomiques +1/2 et -1/2 et induit entre eux une probabilité de transition maximale en champ statique nul. D'autres conséquences intéressantes ⁽⁵²⁾⁽⁵⁶⁾ de l'existence de ce champ équivalent, reposant notamment sur le fait que son sens dépend du signe du rapport gyromagnétique des niveaux (cf. équation (I,D,16)) seront envisagées plus loin (§ V-C).

Notons également l'analogie entre l'effet que nous venons de décrire et celui d'un faisceau optique non résonnant polarisé circulairement sur un niveau atomique de spin 1/2 ⁽⁴⁶⁾⁽⁵⁷⁾ : dans les deux cas, la perturbation électromagnétique possède la symétrie axiale d'un champ magnétique. Dans les deux cas, elle peut se décrire à l'intérieur du niveau atomique de spin $J = 1/2$ comme l'effet d'un champ magnétique (fictif) qui déplace les niveaux atomiques et lève leur dé-

générescence en champ nul.

d) Comparaison avec les effets de renormalisation de l'électrodynamique quantique

On peut rapprocher les phénomènes que nous avons décrits dans ce paragraphe de certains effets de "renormalisation" bien connus en électrodynamique quantique : la modification du facteur de Landé de l'atome habillé s'apparente au moment magnétique anormal de l'électron (³⁶) et la levée de dégénérescence introduite par le champ équivalent H_f associé à un champ circulaire rappelle le déplacement de Lamb des niveaux atomiques (⁵⁸). Alors que les effets d'électrodynamique sont liés à une interaction non résonnante du système atomique avec les fluctuations spontanées et isotropes du vide, nous observons ici des effets stimulés liés au couplage de l'atome avec un mode unique du champ électromagnétique contenant un très grand nombre de photons, ce couplage ne présentant aucun caractère résonnant avec la fréquence du champ.

Outre leur ordre de grandeur, une différence essentielle entre ces deux types de phénomènes réside dans le caractère anisotrope de la "renormalisation" par le champ de radiofréquence (anisotropie du moment magnétique, levée de dégénérescence entre sous-niveaux Zeeman) qui provient du fait que le mode unique avec lequel le système atomique interagit privilégie une direction dans l'espace (celle du champ linéaire ou de la perpendiculaire au plan du champ tournant).

I-E. LES METHODES SPECTROSCOPIQUES D'EXPLORATION DU DIAGRAMME D'ENERGIE DE L'ATOME HABILLE

Les différents effets physiques que nous avons mentionnés au paragraphe précédent mettent bien en évidence l'importance du diagramme d'énergie de l'atome habillé pour l'étude des propriétés d'un niveau atomique en interaction avec un champ de radiofréquence. Il est donc intéressant d'étudier expérimentalement ce diagramme. Dans ce but, on peut utiliser une deuxième onde électromagnétique servant en quelque sorte de "sonde" pour explorer les niveaux d'énergie de l'atome habillé par le champ de radiofréquence. Les différentes techniques de la spectroscopie atomique, décrites au § I-A-4, sont alors applicables : on peut étudier soit l'absorption d'une onde monochromatique -qui nous renseignera directement sur les niveaux d'énergie et les fonctions d'onde du système-, soit la diffusion d'une raie large -qui nous renseignera directement sur ses croisements et anticroisements.

de niveaux. Ces diverses expériences reviennent en fait à étudier l'interaction du système atomique avec deux ondes électromagnétiques, l'une intense (le champ habillant) dont les effets sont étudiés à tous les ordres, l'autre faible (le champ "sonde") dont les effets sont simplement décrits à l'ordre le plus bas où ils se manifestent. Une telle situation se rencontre dans un grand nombre d'expériences physiques où un système atomique est l'objet d'une double irradiation : expériences de double résonance (⁴), pompage optique d'un atome soumis à la résonance magnétique, effet AUTLER-TOWNES (¹³), etc. Le concept d'atome habillé permet d'interpréter ces expériences très simplement.

1) Le spectre d'absorption monochromatique de l'atome habillé

L'hamiltonien de couplage $\mathcal{H}_I(t)$ du système atomique avec le champ "sonde" est donné par la relation (I,A,21). Envisageons les transitions induites par ce champ entre deux niveaux atomiques différents αJ et $\alpha' J'$. Afin de simplifier pour l'instant notre étude, nous supposerons que le niveau supérieur (αJ) de la transition possède un spin $J = 1/2$ et que les couplages avec les champs magnétiques statique et de radiofréquence sont négligeables dans le niveau inférieur $\alpha' J'$ ^(*) : en absence de champ de radiofréquence habillant, le diagramme d'énergie de l'atome libre en fonction du champ H_0 est représenté, dans ces conditions, sur la figure 12-a : le spectre d'absorption du champ "sonde" se compose simplement de deux raies correspondant à la structure Zeeman de l'état excité (flèches sur la figure 12-a). Introduisons à présent le champ habillant. Nous faisons l'hypothèse que ce champ ne connecte pas entre eux de façon appréciable les deux niveaux αJ et $\alpha' J'$ (par exemple parce que sa pulsation ω est très petite devant la séparation $E_{\alpha} - E_{\alpha'}$ de ces niveaux). Ces deux niveaux se trouvent donc couplés indépendamment l'un de l'autre au champ habillant. Le couplage magnétique étant de plus supposé négligeable dans le niveau $\alpha' J'$, les états propres du système global "atome + radiofréquence" sont dans ce niveau simplement les états $|\alpha' J'; n'\rangle$, d'énergie $E_{\alpha'} + n'\omega$, représentant l'atome en présence de n' photons habillants. Dans le niveau (αJ), les états propres du système global correspondent, suivant la polarisation de la radiofréquence, à l'un des diagrammes des figures 6 ou 7. Nous avons, dans ces conditions, représenté sur la figure 12-b les niveaux de l'atome habillé

(*) En toute rigueur, J' ne peut être nul car la transition $0 \leftrightarrow 1/2$ est interdite. Il suffit cependant de considérer que le niveau ($\alpha' J'$) a un magnétisme très faible (par exemple d'origine purement nucléaire) devant celui du niveau αJ .

pour un champ de radiofréquence en polarisation σ . Le spectre d'absorption du champ sonde correspond aux différentes fréquences de BOHR indiquées par des flèches sur cette figure. Ce spectre est visiblement très différent de celui de l'atome libre et ses caractéristiques sont reliées à un grand nombre de propriétés de l'atome habillé.

- a) En champ H_0 faible, les raies observables sur l'atome libre (flèches sur la figure 12-a) se trouvent déplacées par le couplage avec le champ habillant. On prévoit ainsi une modification du spectre Zeeman atomique : la séparation des nouvelles raies observées (flèches n° 1 sur la figure 12-b) dépend à présent du facteur de Landé de l'atome habillé décrit au paragraphe I-D-3. En particulier, pour les valeurs de ω_1/ω annulant ce facteur, les deux raies sont confondues et l'effet Zeeman supprimé (³¹). Si le champ de radiofréquence n'est plus linéaire, mais tournant, d'autres effets de modification du spectre Zeeman sont observables (⁵⁶) que l'on peut attribuer au couplage des niveaux atomiques avec le champ statique \vec{H}_f équivalent au champ tournant.
- b) Il apparaît également dans le spectre des "bandes latérales" au voisinage des fréquences

$$\Omega = E_{\alpha} - E_{\alpha'} + (n-n')\omega$$

correspondant aux transitions entre les sous-niveaux de l'atome habillé qui, à la limite où le couplage avec la radiofréquence s'annule, sont associées à des nombres n et n' différents de photons (flèches n° 2 sur la figure 12-b). Ces transitions sont liées à des processus à plusieurs quanta impliquant l'absorption ou l'émission d'un photon du champ sonde et de $|n-n'|$ photons du champ habillant.

- c) Au voisinage des anticroisements apparaissant dans le niveau (αJ), les phénomènes se compliquent du fait de la séparation des niveaux en deux branches et du mélange des fonctions d'onde qui en résulte : les différentes fréquences absorbées se dédoublent et on observe une démultiplication des raies d'absorption sur le champ sonde (flèches n° 3 sur la figure 12-b) : c'est l'effet AUTLER-TOWNES (¹²) bien connu. Nous présenterons au chapitre VI une description détaillée de tous ces phénomènes dont nous donnons simplement ici un aperçu qualitatif. Remarquons enfin que des effets en tous points analogues peuvent s'observer lorsque le champ sonde agit non plus entre deux niveaux distincts, mais à l'intérieur d'un niveau atomique αJ ($\alpha' J'$ est alors confondu avec αJ). Le champ "sonde" est, dans ce cas, un deuxième champ de radiofréquence produisant des transitions dipolaires magné-

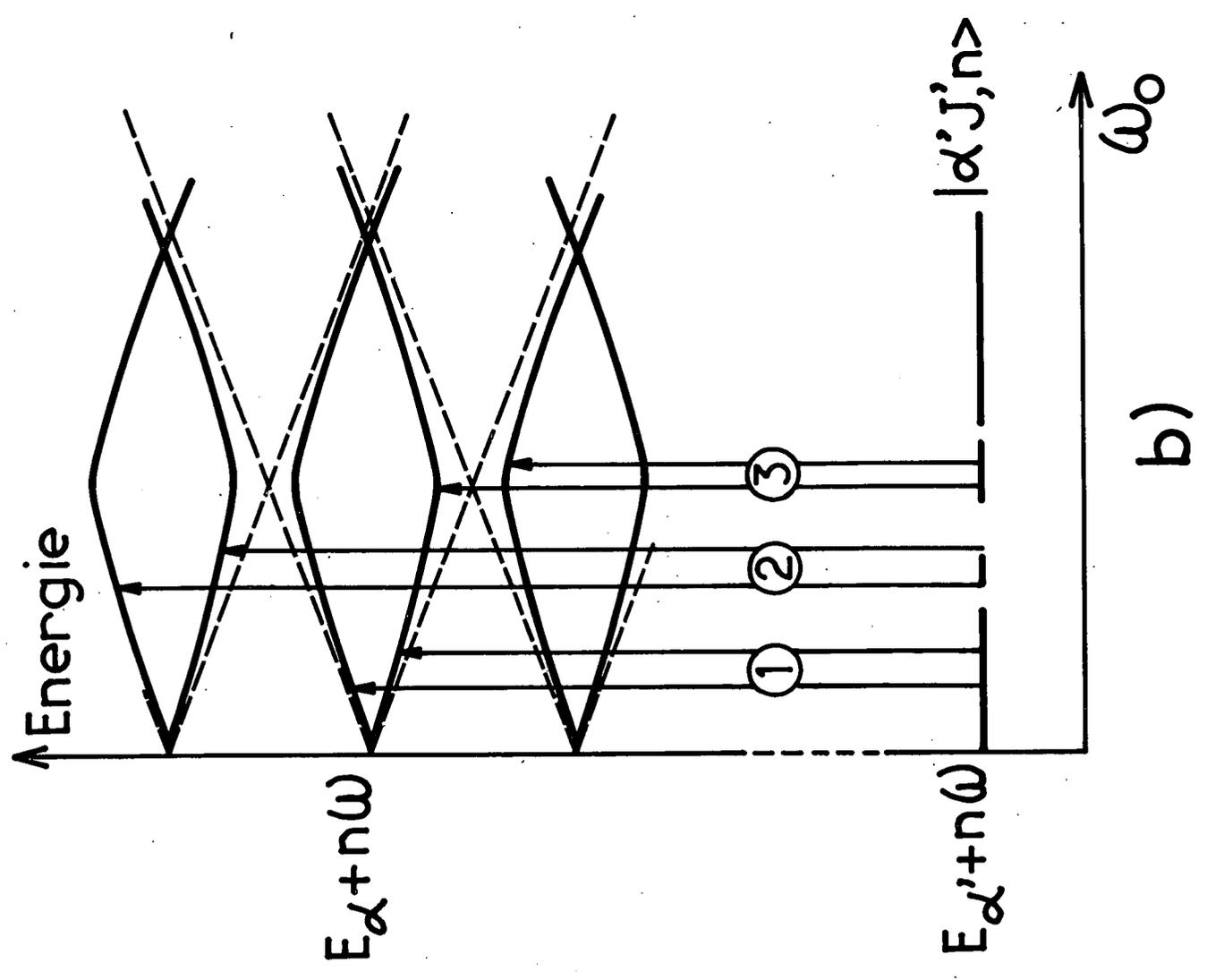
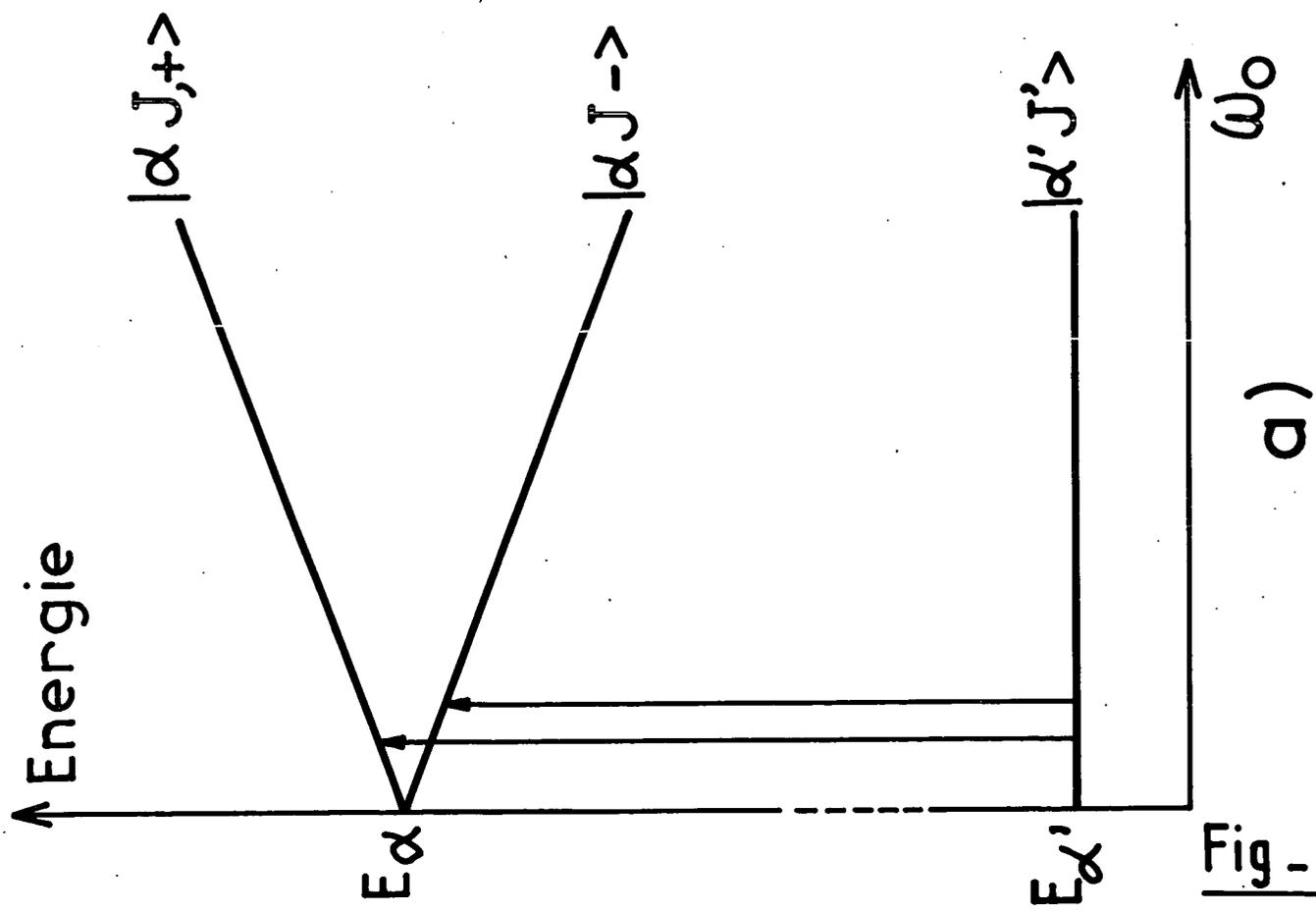


Fig. - 12

tiques à l'intérieur du niveau αJ couplé au champ habillant (³⁰) : on effectue alors simplement la résonance magnétique de l'atome habillé que nous étudierons plus en détail au § V-A-4-c.

2) Diffusion de lumière par l'atome habillé

Supposons à présent que l'atome habillé interagisse avec une onde optique de grande largeur spectrale Δ . L'excitation optique relie le niveau fondamental de l'atome $|f\rangle$ à un niveau $|\alpha J\rangle$ de résonance optique de largeur Γ , qui est couplé au champ de radiofréquence habillant. Conformément aux résultats du paragraphe I-A, la lumière diffusée par le système va présenter des variations résonnantes au voisinage des croisements et anticroisements de niveaux de l'atome habillé dans l'état excité. Nous supposerons ici, comme dans I-A, que la largeur Δ est suffisamment grande pour que l'atome soit excité en un temps $1/\Delta$ très court devant les temps d'évolution caractéristiques de l'atome habillé :

$$\Delta \gg \omega_1, \omega, \Gamma$$

a) Anticroisements de niveaux et double résonance

Initialement, le système se trouve dans l'état $|f, N\rangle$ représentant l'atome dans l'état fondamental en présence des N photons du champ de radiofréquence (nous supposerons pour simplifier, comme au paragraphe I-E-1, que l'état fondamental n'interagit pas avec la radiofréquence). Nous excitons le système en polarisation σ_- et nous regardons la probabilité de diffusion d'un photon optique σ_+ . Plaçons-nous au voisinage d'un anticroisement de niveaux $\omega_0 = p\omega$ de l'atome habillé : l'absorption optique porte le système instantanément dans l'état propre de l'hamiltonien "non perturbé" \mathcal{H}_0 $|-, N\rangle$ (l'hamiltonien dipolaire électrique $\mathcal{H}_I(t)$ commute avec la radiofréquence et ne peut changer N). L'intensité de la lumière diffusée en polarisation σ_+ est proportionnelle à la probabilité moyenne $P_{-,N, +N-p}$ pour que l'atome soit passé de l'état $-$ à l'état $+$ en absorbant p photons de radiofréquence avant de retomber dans l'état fondamental. Cette probabilité est donnée par la formule (I,D,3) : on observe une résonance dans la lumière diffusée au voisinage de l'anticroisement : c'est l'effet bien connu de double résonance (⁴).

b) Croisements de niveaux et effet Franken de l'atome habillé

Supposons à présent que les polarisations d'excitation et de détection optiques soient cohérentes. L'absorption de la lumière incidente porte alors instantanément l'atome dans une superposition cohérente des états $|+,N\rangle$ et $|-,N\rangle$. Il en résulte, comme nous l'avons vu au § I-D-3, l'apparition dans le niveau excité de composantes statiques du moment transversal pour certains croisements de niveaux du diagramme d'énergie de l'atome habillé. La lumière diffusée en polarisation cohérente est proportionnelle à la valeur moyenne sur l'ensemble des atomes excités d'une composante de ce moment transversal. Elle présente donc une variation résonnante de largeur Γ autour des points de croisements considérés : il s'agit en quelque sorte d'un effet "Franken" de l'atome habillé qui a été effectivement observé par différents auteurs ⁽¹⁵⁾⁽¹⁶⁾⁽¹⁷⁾, mais sur un état excité de spin $J = 1$ et sur des signaux de fluorescence modulés (voir chapitre IV).

Ainsi, effectuer la résonance magnétique sur un niveau atomique excité, cela revient à habiller l'atome, c'est-à-dire encore faire apparaître dans son état excité des croisements et anticroisements de niveaux qui n'existaient pas sur l'atome libre et qui se manifestent par l'apparition de nouvelles résonances sur la lumière diffusée en polarisation cohérente ou non cohérente.

CHAPITRE II

- LES EQUATIONS DE "BLOCH" DE L'ATOME HABILLE -

INTRODUCTION

Dans la plupart des expériences de résonance magnétique, le système atomique couplé au champ de radiofréquence est soumis à des processus de relaxation qui jouent un rôle essentiel dans son évolution : d'une part, ils sont responsables de la préparation continue ("pompage") du niveau atomique étudié dans un état présentant une certaine anisotropie de propriétés magnétiques (différence de populations ou cohérences entre les différents sous-niveaux Zeeman); d'autre part, ils sont la cause de l'amortissement des différentes grandeurs atomiques dans ce niveau. Toute étude quantitative d'une expérience réalisée sur l'atome habillé doit donc nécessairement contenir une description détaillée de l'évolution du système sous l'effet de ces processus de relaxation qui peuvent être de types très divers suivant la nature du "réseau" auquel le système atomique est couplé : relaxation thermique dans le cas du couplage avec un "réservoir" en équilibre thermodynamique, pompage optique dans le cas du couplage avec un faisceau polarisé de lumière résonnante, émission spontanée dans le cas de l'interaction d'un état atomique excité avec les fluctuations du champ électromagnétique du vide, etc.

Les propriétés d'un système physique soumis à l'un quelconque de ces mécanismes de relaxation doivent être décrites dans le formalisme statistique de la matrice densité. Le but de ce chapitre est de développer ce formalisme à propos de l'atome habillé et d'établir pour la matrice densité de cet atome une équation pilote rendant compte à la fois de son évolution propre sous l'effet de l'hamiltonien \mathcal{H}_0 , de son pompage et de son amortissement sous l'effet d'un processus quelconque de relaxation.

Des équations de ce genre, introduites pour la première fois par BLOCH (³) pour la description des processus de relaxation thermique, sont souvent utilisées pour étudier l'évolution d'un système atomique libre (ou interagissant avec un champ de radiofréquence traité classiquement). Nous rappellerons les principales propriétés de ces équations classiques au § II-A. Nous introduirons ensuite la notion de matrice densité de l'atome habillé (§ II-B) puis, généralisant les équations de BLOCH dans notre formalisme quantique, nous déduirons très

simplement l'équation pilote de l'atome habillé à partir de celle de l'atome libre en donnant une interprétation physique simple aux différents termes de cette équation (§ II-C). Celle-ci nous permettra de déterminer en fonction des énergies et des états propres de l'atome habillé, l'expression du signal atomique détecté dans une expérience quelconque et d'étudier de façon simple et générale ses principales propriétés (modulation des signaux, position et caractéristiques des résonances, etc.) (§ II-D).

II-A. RAPPELS SUR L'EQUATION PILOTE D'UN SYSTEME DE SPINS LIBRES SANS INTERACTIONS

1) Description générale du processus de relaxation

Envisageons le système constitué par une assemblée de spins sans interactions mutuelles, couplés à un champ magnétique statique extérieur \vec{H}_0 et à un "réseau" responsable de la relaxation. Ce réseau est, dans tous les cas, un système physique possédant un très grand nombre de degrés de liberté, décrit par une matrice densité ρ_R . Ses "dimensions" sont telles que son état n'est pratiquement pas affecté par le couplage avec les spins; on peut donc négliger les corrélations induites entre deux atomes par l'intermédiaire de leur interaction avec le réseau et admettre que les différents spins sont soumis indépendamment les uns des autres à la relaxation. Ils peuvent alors être décrits par une matrice densité ρ_{at} , moyenne des matrices densités atomiques individuelles, de trace unité :

$$\text{Tr } \rho_{at} = 1 \quad (\text{II,A,1})$$

Les matrices densité ρ_R et ρ_{at} s'obtiennent en prenant les traces partielles par rapport aux états de l'atome ou du réseau de la matrice densité ρ^T de l'ensemble "spins + réseau".

Deux constantes caractéristiques jouent un rôle essentiel dans la description de l'évolution du système (²³) : le "temps de collision" τ_c avec le réseau et le temps de relaxation "spin-réseau" T_1 . τ_c correspond physiquement au temps de corrélation de la perturbation aléatoire "vue" par les atomes soumis au processus de relaxation et décrit en quelque sorte la durée pendant laquelle cette perturbation agit de façon cohérente sur le système des spins. T_1 , qui sera

toujours supposé très long devant τ_c :

$$\tau_1 \gg \tau_c \quad (\text{II,A,2})$$

représente le temps caractéristique nécessaire aux atomes pour se mettre en équilibre avec le réseau.

Si l'on veut déterminer quantitativement cet équilibre et le régime dynamique qui permet de l'atteindre à partir d'un état initial quelconque, il faut écrire l'équation d'évolution de la matrice densité ρ_{at} . Cette équation peut s'obtenir (59) en étudiant l'évolution du système total "atome + réseau" décrit par ρ^T , puis en effectuant l'opération de trace partielle indiquée plus haut pour en déduire l'évolution de ρ_{at} . On montre, sous certaines conditions rappelées plus loin, que cette évolution est décrite par l'équation générale :

$$\frac{d\rho_{at}}{dt} = \mathcal{R}(\rho_{at}) - i \left[\mathcal{H}_{at}, \rho_{at} \right] \quad (\text{II,A,3})$$

Dans le deuxième membre de (II,A,3), le premier terme décrit la contribution de la relaxation à l'évolution du système, le deuxième son évolution propre sous l'effet de l'hamiltonien \mathcal{H}_{at} (précession de Larmor dans \vec{H}_0). Ces deux termes s'ajoutent indépendamment.

\mathcal{R} est un opérateur linéaire de l'espace de Liouville des observables atomiques; $\mathcal{R}(\rho_{at})$ est donc une matrice atomique représentant le taux de variation de ρ_{at} sous l'effet des seuls processus de relaxation. L'invariance de la trace de ρ_{at} , qui correspond à la conservation de la population totale du système de spins s'exprime par la condition :

$$\text{Tr } \mathcal{R}(\rho_{at}) = 0 \quad (\text{II,A,4})$$

Sous l'effet de la relaxation seule, le système se mettrait en équilibre avec le réseau dans l'état défini par la matrice densité ρ_{at}^{eq} qui obéit à la relation :

$$\mathcal{R}(\rho_{at}^{eq}) = 0 \quad (\text{II,A,5})$$

Les éléments de matrice de \mathcal{R} sont des quantités supposées réelles (*) qui décrivent le couplage dissipatif entre les diverses populations et cohérences atomiques sous l'effet de la relaxation. La mise en équilibre des spins s'effectue généralement avec plusieurs constantes de temps dont les inverses sont donnés par les valeurs propres de l'opérateur \mathcal{R} . Le temps de relaxation T_1 introduit plus haut représente en quelque sorte une "moyenne" de ces constantes de temps donnant simplement une idée de la durée des processus transitoires conduisant à l'équilibre.

L'opérateur \mathcal{R} est indépendant du champ magnétique appliqué aux spins tant que la condition de "rétrécissement extrême" (23) :

$$\omega_0 \tau_c \ll 1 \quad (\text{II,A,7})$$

est remplie. (II,A,7) implique que les spins ne précessent pratiquement pas dans le champ H_0 durant le temps τ_c de collision. Il est normal, dans ces conditions, que la présence du champ ne puisse affecter le mécanisme de relaxation. Par contre, si la condition (II,A,7) n'est plus satisfaite, les constantes de temps de relaxation dépendent de ω_0 , leur variation en fonction de H_0 s'effectuant sur des domaines de champ caractéristiques $\frac{1}{\gamma_\alpha \tau_c}$ dont l'ordre de grandeur varie considérablement d'un processus de relaxation à un autre.

Précisons pour finir que (II,A,3) est établie dans l'hypothèse de "collisions faibles" avec le réseau, ce qui signifie que l'état de chaque atome est très peu modifié pendant le temps de collision, ou encore qu'il faut un grand nombre de collisions avec le réseau pour faire relaxer chacun des spins atomiques. Certains processus de relaxation thermique, de même que le pompage optique, l'émission spontanée sont des mécanismes obéissant à cette condition. Il existe cependant des situations dans lesquelles l'état de chaque atome peut se trouver profondément modifié au cours du temps de corrélation τ_c . Nous dirons qu'il s'agit de "collisions fortes" avec le réseau. Entrent dans cette catégorie un certain nombre de processus de relaxation dans une vapeur atomique (collisions d'échange de spin (60) par exemple, que nous aurons l'occasion d'étudier dans ce travail). Dans ce cas, la condition (II,A,2)

(*) En toute rigueur, les éléments de matrice de \mathcal{R} peuvent comporter également une partie imaginaire décrivant un déplacement des fréquences propres atomiques sous l'effet de la relaxation. Ce déplacement, bien connu dans le cas où le réseau est un faisceau de pompage optique (46), est en général très faible et sera négligé dans la suite de ce travail.

qui est en général toujours vérifiée, exprime que le nombre d'atomes en collision à un instant donné est faible. On peut encore montrer (⁶¹) dans cette hypothèse, si la condition (II,A,7) est satisfaite, que la matrice densité atomique obéit à une équation générale de la forme (II,A,3).

2) L'équation pilote de l'atome "libre"

Nous allons maintenant remanier l'équation (II,A,3) et la mettre sous une forme qui distingue les deux rôles de "pompage" et d'amortissement joués par les processus de relaxation. Dans ce but, séparons ρ_{at} en une matrice de trace égale à un, proportionnelle à la matrice unité que nous noterons I_{at} , et en un terme complémentaire ρ_{at}^1 , de trace nulle, décrivant "l'état d'anisotropie" du système de spins :

$$\rho_{at} = I_{at} + \rho_{at}^1 \quad (II,A,8)$$

avec
$$\text{Tr } \rho_{at}^1 = 0 \quad (II,A,9)$$

Compte tenu de la linéarité de l'opérateur \mathcal{R} , on peut alors séparer $\mathcal{R}(\rho_{at})$ en deux parties sous la forme :

$$\mathcal{R}(\rho_{at}) = \mathcal{R}(I_{at}) + \mathcal{R}(\rho_{at}^1) = \mathcal{R}(I_{at}) + \mathcal{R}(\rho_{at} - I_{at}) \quad (II,A,10)$$

Dans cette expression, $\mathcal{R}(I_{at})$ est une matrice indépendante de ρ_{at} , de trace nulle, que nous appellerons la matrice de pompage λ_p^{at} :

$$\lambda_p^{at} = \mathcal{R}(I_{at}) \quad (II,A,11)$$

$$\text{Tr } \lambda_p^{at} = 0 \quad (II,A,12)$$

Cette matrice, d'après (II,A,5), n'est différente de zéro que si les processus de relaxation tendent à mettre en équilibre le système dans un état ρ_{at}^{eq} différent de I_{at} .

Le second terme de (II,A,10), $\mathcal{R}(\rho_{at} - I_{at})$, apparaît a priori comme une expression non homogène par rapport aux éléments de matrice de ρ_{at} . Il peut être cependant écrit sous une forme homogène si l'on pose :

$$I_{at} = I_{at} \text{Tr } \rho_{at}$$

ce qui revient à remplacer dans $\mathcal{R}(\rho_{at} - I_{at})$ les éléments de matrice constants de I_{at} par la somme, égale à l'unité d'après (II,A,1), des éléments de matrice diagonaux de ρ_{at} . On écrira finalement :

$$\mathcal{R}(\rho_{at} - I_{at} \text{Tr } \rho_{at}) = \mathcal{R}_0(\rho_{at}) \quad (\text{II,A,13})$$

\mathcal{R}_0 étant un opérateur linéaire et homogène de l'espace de Liouville vérifiant la condition :

$$\mathcal{R}_0(I_{at}) = 0 \quad (\text{II,A,14})$$

Compte tenu de (II,A,10), (II,A,11) et (II,A,13), l'équation d'évolution (II,A,3) se met finalement sous la forme d'une équation pilote :

$$\frac{d\rho_{at}}{dt} = \lambda_p^{at} + \mathcal{R}_0(\rho_{at}) - i \left[\mathcal{H}_{at}, \rho_{at} \right] \quad (\text{II,A,15})$$

dans laquelle sont séparés les différents termes décrivant le pompage, l'amortissement et l'évolution propre du système : en effet, d'après (II,A,14), $\mathcal{R}_0(\rho_{at})$ décrit les processus de relaxation qui, s'ils étaient seuls présents, feraient tendre ρ_{at} vers la matrice unité et la matrice λ_p^{at} décrit au contraire le "reste" de la relaxation permettant d'avoir :

$$\rho_{at}^{eq} \neq I_{at}$$

et qui est donc responsable du phénomène de "pompage".

Remarquons également que l'on peut, en raison de la linéarité de (II,A,15) écrire une équation analogue pour la matrice ρ_{at}^1 , définie par (II,A,8), qui représente "l'état d'anisotropie" du système :

$$\frac{d\rho_{at}^1}{dt} = \lambda_p^{at} + \mathcal{R}_0(\rho_{at}^1) - i \left[\mathcal{H}_{at}, \rho_{at}^1 \right] \quad (\text{II,A,16})$$

avec l'identité évidente d'après (II,A,13) et (II,A,14) :

$$\mathcal{R}_0(\rho_{at}^1) = \mathcal{R}(\rho_{at}^1).$$

Les équations pilotes sous la forme (II,A,15) ou (II,A,16) s'appliquent à un grand nombre de problèmes physiques pouvant impliquer des processus de relaxation très variés. Suivant les cas envisagés, le "pompage" et l'amortissement peuvent provenir du même mécanisme de relaxation ou être dus à deux processus distincts : par exemple, dans le cas de la relaxation thermique, ce sont les collisions avec le réservoir en équilibre thermodynamique à une température donnée qui sont responsables à la fois de l'existence d'une différence de population à l'équilibre thermique dans le système de spins et de l'amortissement des différentes grandeurs atomiques. Dans le cas d'une expérience de pompage optique au contraire, le pompage proprement dit provient de l'interaction du système atomique avec le "réseau" constitué par un faisceau polarisé de lumière résonnante alors que l'amortissement des différentes grandeurs atomiques est dû à la fois à l'effet "relaxant" des photons optiques qui "arrachent" les atomes de l'état fondamental et aux divers processus de collisions thermiques des atomes entre eux ou avec les parois de la cellule de résonance. Dans le cas d'une expérience sur un état atomique excité enfin, le "pompage" est dû à l'excitation optique (ou au bombardement électronique, etc.) alors que l'amortissement du niveau excité est principalement dû à l'émission spontanée ou aux différents types de collisions en phase gazeuse.

Nous allons préciser à présent la forme que peuvent prendre, suivant les conditions expérimentales, les termes de pompage et d'amortissement de l'équation pilote et envisager certains cas particuliers intéressants.

3) Les différents types de pompage

Suivant la forme de la matrice de pompage λ_p^{at} , nous pouvons envisager plusieurs types d'expériences très différentes.

a) Pompage longitudinal

Si la matrice λ_p^{at} est diagonale

$$\lambda_{p\ mm'}^{at} = \lambda_{p\ mm}^{at} \delta_{mm'} \quad (II,A,17)$$

le pompage ne peut introduire que des différences de populations dans le système atomique : c'est le cas de tous les processus de relaxation thermiques, du pompage optique ou du bombardement électronique longitudinaux.

b) Pompage transversal

Si la matrice λ_p^{at} possède des éléments de matrice non diagonaux :

$$\lambda_p^{at} \neq 0 \quad (\text{II,A,18})$$

le pompage introduit des cohérences Zeeman dans l'ensemble des spins : c'est le cas des expériences en pompage optique ou en bombardement électronique transversaux.

c) Pompage modulé

Il existe également des situations où la matrice de pompage peut être modulée en fonction du temps à une fréquence Ω , λ_p^{at} s'écrivant :

$$\lambda_p^{at} = \lambda_\Omega e^{i\Omega t} + \lambda_\Omega^+ e^{-i\Omega t} \quad (\text{II,A,19})$$

Dans cette expression, la somme des deux termes de fréquence positive et négative assure l'hermiticité de la matrice λ_{at}^p . Pour obtenir un tel pompage, qui peut être, suivant les cas, longitudinal ou transversal, il suffit par exemple de faire interagir les atomes avec un faisceau de pompage optique dont l'intensité (⁶²) ou la polarisation (⁶³) sont elles-mêmes modulées à la fréquence Ω .

4) Modèle simple d'un amortissement "isotrope" avec une seule constante de temps

On peut simplifier considérablement (II,A,16) en envisageant un processus d'amortissement isotrope décrit par une seule constante de temps $1/\Gamma$; on a alors :

$$\mathcal{R}_0(\rho_{at}^1) = -\Gamma \rho_{at}^1 \quad (\text{II,A,20})$$

et l'équation pilote (II,A,16) se met sous la forme :

$$\frac{d\rho_{at}^1}{dt} = \lambda_p^{at} - \Gamma \rho_{at}^1 - i [\mathcal{H}_{at}, \rho_{at}^1] \quad (\text{II,A,21})$$

Une telle équation décrit par exemple l'évolution d'un état atomique excité préparé par irradiation optique ou bombardement électronique (λ_{at}^p) et se désintégrant sous l'effet du processus isotrope d'émission spontanée qui confère au niveau une

largeur naturelle Γ . Dans le cas général, (II,A,20) correspond cependant à une très grande simplification par rapport à la situation réelle; nous serons amenés à étudier dans la suite l'évolution d'atomes dans leur état fondamental pour lesquels l'amortissement est souvent beaucoup plus compliqué : il peut en effet être anisotrope et affecter de façon différente les populations et les cohérences Zeeman à l'intérieur d'un niveau atomique donné; d'autre part, et même si les processus de relaxation sont isotropes au sens où ils n'introduisent aucune direction privilégiée dans l'espace, ils peuvent ne pas affecter de la même façon les différentes observables (orientation, alignement, etc.) atomiques ou encore coupler entre elles les populations ou les cohérences de niveaux atomiques différents (transfert longitudinal ou transversal d'orientation par collisions d'échange par exemple). Dans tous ces cas, l'équation (II,A,20) qui décrit par une seule constante de temps l'amortissement du système ne représente pas fidèlement la situation physique réelle. Cependant, nous utiliserons souvent dans la suite de ce travail ce modèle qui présente l'avantage considérable de simplifier grandement les calculs sans modifier en général de façon qualitative les résultats physiques par rapport à ceux que fournirait la théorie plus compliquée qui décrirait avec exactitude l'amortissement du système.

Nous n'envisagerons cette théorie complète que pour l'étude des effets où la forme exacte de la relaxation joue précisément un rôle essentiel (étude du transfert de cohérence entre atomes habillés au chapitre V par exemple).

5) L'équation pilote en présence d'un champ de radiofréquence classique

Avant d'achever ce paragraphe, nous devons mentionner que les équations pilotes (II,A,16) ou (II,A,21) se généralisent très simplement⁽⁵⁹⁾ au cas où le système de spins interagit non seulement avec un champ statique \vec{H}_0 , mais aussi avec un champ de radiofréquence classique $H_1(t)$. Il suffit en effet de remplacer dans le calculateur de (II,A,16) ou (II,A,21) l'hamiltonien \mathcal{H}_{at} par l'hamiltonien dépendant du temps $\mathcal{H}_{at}(t)$ qui décrit l'interaction du système avec le champ classique $\vec{H}_0 + \vec{H}_1(t)$. Cette généralisation n'est cependant valable

que si le champ de radiofréquence vérifie la condition (*) :

$$\omega_1 \tau_c \ll 1 \quad (\text{II,A,22})$$

qui exprime que le couplage avec la radiofréquence n'a pas le temps de s'effectuer pendant le temps de corrélation du processus de relaxation. Si ω_1 est suffisamment grand pour que (II,A,22) ne soit plus satisfaite, il faut tenir compte de la modification des constantes de temps de relaxation sous l'effet du couplage avec la radiofréquence (⁶⁴). Nous retrouverons naturellement l'importance de la condition (II,A,22) dans le traitement quantique du champ de radiofréquence. Nous consacrerons le chapitre VII à l'étude des processus de relaxation en présence de champs intenses n'obéissant pas à cette condition et nous allons nous limiter, dans la suite de ce chapitre, à l'étude de l'équation pilote d'un atome habillé par un champ de radiofréquence pour lequel (II,A,22) est satisfaite. Il nous faut cependant auparavant préciser la description statistique de l'atome habillé.

II-B. LA DESCRIPTION STATISTIQUE DE L'ATOME HABILÉ

1) La matrice densité de l'atome habillé

Supposons que l'assemblée de spins décrite au paragraphe précédent se trouve couplée, non plus à un réseau, mais à un champ de radiofréquence traité quantiquement. Ce champ, ayant, comme nous l'avons vu, une grande "inertie" présente une certaine analogie avec un réseau : on peut en particulier négliger la réaction des atomes sur le champ et considérer que les différents spins sont couplés indépendamment les uns des autres avec la radiofréquence, comme ils le sont avec un réseau de très grandes dimensions. L'état du système "atome + champ de radiofréquence" sera donc décrit par une matrice densité de l'atome habillé ρ^h ,

(*) Dans le cas d'une relaxation thermique, le champ de radiofréquence doit également obéir à la condition $\omega_1/k T_R \ll 1$ qui exprime que l'état d'équilibre de Boltzmann du système n'est pas affecté par le champ de radiofréquence (T_R température du réseau). Sinon, le terme de pompage de l'équation pilote serait également modifié : par exemple si la condition $\omega_1 \tau_c \ll 1$ se trouve simultanément remplie, la relaxation s'effectuera à chaque instant vers la matrice d'équilibre "instantanée" dans le champ $H_0 + H_1(t)$ (²³), ce qui revient dans ce cas à moduler le terme de pompage à la fréquence du champ.

agissant dans l'espace produit tensoriel des états atomiques et de radiofréquence. Cette matrice se définit exactement comme la matrice ρ^T du système "atome + réseau" introduite au paragraphe précédent. Elle joue donc vis-à-vis du couplage atome - champ de radiofréquence le rôle imparti à ρ^T dans l'étude des processus de relaxation. Ainsi, pour décrire l'évolution du système de spins sous l'effet de l'interaction avec la radiofréquence, on déterminera le mouvement de ρ^h , puis on effectuera l'opération de trace par rapport aux variables du champ pour obtenir ρ_{at} . Inversement, la matrice réduite de la radiofréquence, ρ_{RF} , s'obtiendra en prenant la trace de ρ^h par rapport aux variables atomiques :

$$\rho_{at} = \text{Tr}_{RF} \rho^h \quad (\text{II,B,1})$$

$$\rho_{RF} = \text{Tr}_{at} \rho^h \quad (\text{II,B,2})$$

2) Les corrélations entre l'atome et le champ de radiofréquence

Etant donné son "inertie", le champ de radiofréquence évolue librement, de façon quasi indépendante du système atomique auquel il est couplé. $\rho_{RF}(t)$, donnée par (II,B,2), se réduit donc pratiquement à la matrice densité représentant le champ dans un état cohérent de GLAUBER⁽³⁵⁾ à l'instant t :

$$\rho_{RF}(t) = |\alpha(t)\rangle\langle\alpha(t)| = \sum_{n,n'} c_n c_{n'}^* |n\rangle\langle n'| e^{-i(n-n')\omega t} \quad (\text{II,B,3})$$

D'autre part, les corrélations entre les spins et la radiofréquence sont, comme nous le montrons plus loin, très faibles, ce qui permet d'écrire à un instant t :

$$\rho^h(t) = \rho_{at}(t) \otimes \rho_{RF}(t) \quad (\text{II,B,4})$$

(II,B,4) peut d'ailleurs être rapprochée de la relation essentielle pour l'établissement des équations de BLOCH⁽²³⁾⁽⁵⁹⁾ :

$$\rho^T = \rho_{at} \otimes \rho_R \quad (\text{II,B,5})$$

qui, dans le cas du couplage d'un atome avec un réseau, exprime qu'à chaque instant les corrélations entre les deux sous-systèmes sont négligeables. Il faut bien remarquer cependant que (II,B,4) (comme (II,B,5) d'ailleurs) ne peut être rigoureusement

vérifiée et qu'une certaine corrélation entre les spins et le champ (ou le réseau) apparaît nécessairement sous l'effet du couplage entre ces systèmes.

Afin de justifier l'équation (II,B,4), et d'avoir une idée des corrélations qu'elle néglige, nous allons étudier le cas simple d'un système de spins 1/2 en interaction avec un champ de radiofréquence σ_+ et nous allons commencer par envisager le cas d'un champ incohérent dans un état $|N\rangle$. Nous savons alors que le système initialement ($t = 0$) dans l'état $|-,N\rangle$ devient à l'instant t une superposition cohérente des états $|-,N\rangle$ et $|+,N-1\rangle$:

$$|\psi(t)\rangle = a_N(t)|-,N\rangle + b_N(t)|+,N-1\rangle \quad (\text{II,B,6})$$

que l'on peut d'ailleurs écrire :

$$|\psi(t)\rangle = e^{-iN\omega t} \left[\tilde{a}_N(t)|-,N\rangle + \tilde{b}_N(t)|+,N-1\rangle \right] \quad (\text{II,B,7})$$

les coefficients $\tilde{a}_N(t) = a_N(t) e^{iN\omega t}$ et $\tilde{b}_N(t) = b_N(t) e^{iN\omega t}$ étant définis dans une "représentation d'interaction" qui permet d'éliminer l'évolution du vecteur d'état à la fréquence $N\omega$.

Il est clair que l'état $|\psi(t)\rangle$ défini par (II,B,7) ne peut manifestement pas se mettre sous forme d'un produit tensoriel et qu'il apparaît donc, sous l'effet du couplage entre le champ incohérent et les spins, des corrélations importantes entre ces deux systèmes. Nous allons cependant montrer que ces corrélations se "brouillent" si l'on envisage un champ constitué par une superposition cohérente d'états $|N\rangle$. L'état initial du système ($t = 0$) s'écrit alors en effet :

$$|\psi(0)\rangle = \sum_n C_n |-,n\rangle$$

et son état à l'instant t , compte tenu de (II,B,7) :

$$|\psi(t)\rangle = \sum_n C_n e^{-in\omega t} \left[\tilde{a}_n(t) |-,n\rangle + \tilde{b}_n(t) |+,n-1\rangle \right] \quad (\text{II,B,8})$$

On peut réécrire (II,B,8) sous la forme :

$$|\psi(t)\rangle = \sum_n C_n e^{-in\omega t} \tilde{a}_n(t) |-,n\rangle + \sum_n C_{n+1} e^{-i(n+1)\omega t} \tilde{b}_{n+1}(t) |+,n\rangle \quad (\text{II,B,9})$$

Soit encore, en négligeant la différence relative (au plus de l'ordre de $1/\sqrt{N}$) entre les coefficients C_n et C_{n+1} :

$$|\psi(t)\rangle \approx \sum_n C_n e^{-in\omega t} \left[\tilde{a}_n(t) |-,n\rangle + e^{-i\omega t} \tilde{b}_{n+1}(t) |+,n\rangle \right] \quad (\text{II,B,10})$$

Si l'on remarque que l'on peut négliger, sur la largeur de la distribution photonique, la variation avec n de $\tilde{a}_n(t)$ et $\tilde{b}_n(t)$ (cette variation est également de l'ordre de $1/\sqrt{N}$ en valeur relative), on pourra écrire :

$$\tilde{a}_n \approx \tilde{a}_N(t) = \tilde{a}(\omega_1, t) \quad ; \quad \tilde{b}_{n+1}(t) \approx \tilde{b}(\omega_1, t) \quad (\omega_1 = 2\lambda \sqrt{N})$$

et assimiler finalement $|\psi(t)\rangle$ au produit tensoriel $|\psi'(t)\rangle$ défini par :

$$|\psi'(t)\rangle = \left\{ \sum_n C_n e^{-in\omega t} |n\rangle \right\} \otimes \left\{ \tilde{a}(\omega_1, t) |-\rangle + \tilde{b}(\omega_1, t) e^{-i\omega t} |+\rangle \right\} \quad (\text{II,B,11})$$

On montre ainsi, d'une part que les corrélations entre l'atome et le champ cohérent sont négligeables (ce qui est exprimé en terme de matrices densités par (II,B,4)), d'autre part que l'état du champ n'est pas affecté par le couplage avec le système atomique (équation (II,B,3)).

L'absence de corrélation impliquée par (II,B,11) provient des approximations mentionnées plus haut. En fait, la différence relative entre les coefficients du vrai vecteur d'état $|\psi(t)\rangle$ et ceux du vecteur d'état "approché" $|\psi'(t)\rangle$, différence qui mesure en quelque sorte le degré de corrélations négligées entre le spin et la radiofréquence, est de l'ordre de $1/\sqrt{N}$. Ces corrélations sont donc bien très faibles, et tendent vers zéro lorsque la "dimension" du champ, représentée par la largeur \sqrt{N} de la distribution de niveaux sur lesquels il se décompose, augmente indéfiniment.

Remarquons également que l'équation (II,B,11) montre que le système de spins reste au cours de son évolution (en l'absence de tout processus de relaxation) un "état pur" (pouvant être décrit par un vecteur d'état). Cette propriété est une conséquence directe du fait que le champ cohérent est lui-même décrit à tout instant par un vecteur d'état et qu'il n'apparaît pas de corrélations entre les deux systèmes. Ce résultat est d'ailleurs évident si l'on se rappelle le caractère "classique" du champ de radiofréquence cohérent considéré ici : ses effets doivent être identiques à ceux d'un champ oscillant de fréquence

et de phase bien définies; or nous savons que l'évolution de l'atome dans un tel champ est décrite par une équation de Schrödinger dépendant du temps qui ne peut changer le caractère statistique -cas pur ou mélange d'états- de l'état atomique initial.

Cette propriété n'est plus vraie dans le cas d'un champ incohérent décrit par un état $|N\rangle$: l'apparition de corrélations entre l'atome et le champ (voir (II,B,7)) implique alors nécessairement que chacun des deux sous-systèmes -et en particulier l'ensemble de spins- n'est plus dans un cas pur, mais dans un mélange statistique (il est décrit non par un vecteur d'état mais par une matrice densité). Ce résultat correspond d'ailleurs bien à l'image classique que l'on se fait de l'évolution d'un spin dans un tel champ : l'état du système atomique peut en effet être déduit de la matrice densité représentant l'atome en présence d'un champ cohérent (qui correspond quant à elle à un cas pur) en moyennant tous les éléments de cette matrice sur la phase du champ supposée aléatoire (ce qui transforme bien le cas "pur" en mélange statistique).

3) Conclusion : analogies et différences entre le champ de radiofréquence et un réseau

Nous avons, dans ce qui précède, dégagé un certain nombre d'analogies entre le champ de radiofréquence et un réseau responsable d'un processus de relaxation. Nous avons vu notamment que ces deux systèmes physiques ont une grande inertie et se corrélaient de façon négligeable avec les atomes. Nous devons cependant insister sur les différences importantes qui les distinguent. La première provient des propriétés "cohérentes" du champ et "incohérentes" du réseau : alors que le couplage avec le premier conserve, comme nous l'avons montré, le caractère statistique du système atomique (cas pur ou mélange), l'interaction avec le second "dégrade" nécessairement l'état des spins de cas pur en mélange statistique. Cette différence n'est pourtant pas fondamentale, dans la mesure où on peut envisager également (cf. § précédent) des champs de radiofréquence incohérents ayant un effet comparable sur le système de spins. On ne peut cependant pas considérer pour autant que l'action d'un champ incohérent sur un niveau atomique est assimilable à un processus de relaxation car le champ et le réseau se distinguent fondamentalement par une caractéristique essentielle, indépendante de la notion de "cohérence" évoquée plus haut : le réseau possède en effet un continuum de niveaux d'énergie différents auxquels le système atomique est couplé. L'existence de ce continuum confère un caractère irréversi-

ble au mouvement des spins qui, sous l'effet du couplage avec le réseau, évoluent, quel que soit leur état initial, vers un état d'équilibre stationnaire satisfaisant à l'équation (II,A,5). Le couplage avec la radiofréquence, même incohérente, ne conduit jamais à une telle irréversibilité : nous avons rappelé au § I-D-1 que les probabilités de présence dans les niveaux $+1/2$ et $-1/2$ de spins $1/2$ soumis à la résonance magnétique oscillent à la fréquence de RABI et ne deviennent jamais stationnaires. Cette oscillation est liée au fait que le champ ne possède pas de continuum de niveaux, mais une suite discrète de niveaux équidistants et qu'en conséquence, le spectre de la perturbation qu'il induit sur le système atomique est monochromatique et correspond à un "temps de corrélation infini" entre l'atome et le champ.

Si au lieu d'envisager l'interaction des atomes avec un seul champ monochromatique, on couplait ces derniers à un instant donné à une infinité de modes du champ électromagnétique dont les fréquences forment un continuum, on conçoit que le mouvement de spins résulterait d'une superposition d'oscillations de RABI à des fréquences différentes qui se "brouilleraient" au bout d'un certain temps, le système de spins se retrouvant alors dans un état stationnaire. Ainsi, si le couplage avec un seul mode du champ que nous envisageons dans cette étude ne peut en aucun cas induire une évolution irréversible du système atomique, il n'en est pas de même de l'interaction avec un continuum de modes qui est responsable de processus de relaxation bien connus (émission spontanée, pompage optique,...).

Nous pouvons dire en conclusion que le système de spins dans les expériences que nous allons décrire se trouve couplé, sans corrélations appréciables, à deux "volants" d'inertie de nature très différente; le couplage dissipatif avec l'un de ces volants (le réseau) tend à produire dans le système atomique une évolution irréversible; l'interaction avec l'autre "volant" (la radiofréquence) induirait, si elle agissait seule, des oscillations dans le système de spins aux fréquences de BOHR de l'atome habillé. Nous nous proposons, aux paragraphes suivants, de décrire l'évolution des atomes sous l'effet simultané de ces deux couplages.

Remarque :

Avant d'aborder cette étude, nous remarquerons pour finir qu'avec nos hypothèses d'inertie sur le champ et le réseau, ces deux "volants" ne peuvent interagir mutuellement de façon appréciable par l'intermédiaire de leur couplage avec les atomes. Ce résultat est justifié par la grande "dilution" du système de spins dans les expériences que nous décrivons. Il n'en serait pas de

même si le milieu atomique était très dense et des effets intéressants de modification du réseau ou de la radiofréquence pourraient alors devenir importants. Donnons simplement un exemple : la résonance magnétique correspond toujours à un échange de moment cinétique entre le champ et les spins, lesquels restituent ce moment cinétique au réseau; dans le cas où l'expérience est effectuée sur un échantillon solide (cristal par exemple), on peut détecter le passage à résonance par une rotation d'ensemble du cristal correspondant à un échange indirect de moment angulaire entre la radiofréquence et le réseau (⁶⁵). Des effets analogues d'échange de moment angulaire entre le champ et un faisceau de pompage optique par exemple peuvent être envisagés.

II-C. ETUDE GENERALE DE L'EQUATION PILOTE DE L'ATOME HABILLE.

1) Forme générale de l'équation pilote

Le système atomique plongé dans le champ \vec{H}_0 se trouve simultanément couplé au champ de radiofréquence et au réseau décrits au paragraphe précédent. L'évolution sous l'effet de cette double interaction de la matrice densité de l'atome habillé ρ^h se déduit très simplement de l'équation pilote de l'atome libre étudiée au § II-A : la relaxation de l'atome habillé se trouve en effet décrite simplement par l'opérateur :

$$\mathcal{R}^{(h)} = \mathcal{R} \otimes \mathcal{J}_{RF} \quad (\text{II,C,1})$$

produit tensoriel de l'opérateur de relaxation atomique \mathcal{R} et de l'opérateur unité \mathcal{J}_{RF} dans l'espace de LIOUVILLE des observables du champ. La justification de la relation (II,C,1) est immédiate : la relaxation n'agit en effet directement que sur le système atomique; d'autre part, puisque la condition (II,A,22) est supposée pour l'instant satisfaite, l'interaction entre l'atome et le réseau ne doit pas dépendre de la présence du champ de radiofréquence dont le couplage avec le système de spins ne peut se manifester pendant le temps de collision τ_c associé aux processus de relaxation; ceux-ci doivent donc agir sur l'atome comme s'il était libre, sans perturber du tout la radiofréquence. C'est ce qu'exprime simplement l'équation (II,C,1).

L'évolution de ρ^h sous l'effet de la relaxation s'écrit alors simplement :

$$\frac{d_{rel}}{dt} \rho^h = \mathcal{R}^{(h)} [\rho^h] \quad (II,C,2)$$

soit encore, compte tenu de (II,C,1) et de (II,B,4) :

$$\frac{d_{rel}}{dt} \rho^h = \mathcal{R}(\rho_{at}) \otimes \rho_{RF} \quad (II,C,3)$$

expression qui traduit très simplement le fait que la relaxation n'affecte que la partie atomique du système. Si on sépare à présent dans \mathcal{R} le rôle du "pompage" et de l'amortissement et si l'on ajoute à (II,C,3) le terme d'évolution propre dû à l'hamiltonien \mathcal{H} , on obtient finalement l'équation pilote de l'atome habillé :

$$\frac{d}{dt} \rho^h = \lambda_p^{at} \otimes \rho_{RF}(t) + \mathcal{R}_0^{(h)} [\rho^h] - i [\mathcal{H}, \rho^h] \quad (II,C,4)$$

avec $\mathcal{R}_0^{(h)} = \mathcal{R}_0 \otimes \mathcal{J}_{RF} \quad (II,C,5)$

Cette équation est l'analogie de l'équation pilote (II,A,15) relative à l'atome libre; elle décrit l'évolution de l'atome habillé sous les effets de trois processus qui s'ajoutent indépendamment et qui sont décrits par le terme de pompage :

$$\frac{d^{(1)}}{dt} \rho^h = \lambda_p^{at} \otimes \rho_{RF}(t) \quad (II,C,6)$$

le terme d'amortissement :

$$\frac{d^{(2)}}{dt} \rho^h = \mathcal{R}_0^{(h)} [\rho^h] \quad (II,C,7)$$

et le terme d'évolution propre :

$$\frac{d^{(3)}}{dt} \rho^h = -i [\mathcal{H}, \rho^h] \quad (II,C,8)$$

En absence de pompage ($\lambda_p^{at} = 0$), il est facile de voir que le système se met en équilibre dans l'état décrit par la matrice densité :

$$\rho_0^h = I_{at} \otimes \rho_{RF}(t) \quad (\text{II,C,9})$$

représentant l'atome dans un état "isotrope" en présence du champ de radiofréquence. Cet état vérifie en effet, d'après (II,A,14), la condition d'équilibre :

$$\mathcal{R}_0^{(h)}(\rho_0^h) = \mathcal{R}_0(I_{at}) \otimes \rho_{RF} = 0 \quad (\text{II,C,10})$$

et d'autre part, il satisfait l'équation :

$$\frac{d}{dt} \rho_0^h = -i [\mathcal{H}, \rho_0^h] \quad (\text{II,C,11})$$

puisque (II,C,9) est évidemment une solution de l'équation d'évolution propre du système correspondant à un état initial atomique "isotrope". On déduit donc bien de (II,C,10) et (II,C,11) que ρ_0^h satisfait à l'équation pilote (II,C,4) si $\lambda_p^{at} = 0$.

Il est possible de réécrire (II,C,4) sous une forme légèrement différente en décomposant $\rho^{(h)}$ d'une manière analogue à (II,A,8) :

$$\rho^{(h)} = \rho_0^{(h)} + \rho_1^{(h)} \quad (\text{II,C,12})$$

(II,C,4) devient alors :

$$\frac{d}{dt} (\rho_0^h + \rho_1^h) = \lambda_p^{at} \otimes \rho_{RF}(t) + \mathcal{R}_0^{(h)}(\rho_0^h + \rho_1^h) - i [\mathcal{H}, \rho_0^h + \rho_1^h]$$

soit, compte tenu de (II,C,10) et (II,C,11) :

$$\frac{d}{dt} \rho_1^h = \lambda_p^{at} \otimes \rho_{RF}(t) + \mathcal{R}_0^{(h)}(\rho_1^h) - i [\mathcal{H}, \rho_1^h] \quad (\text{II,C,13})$$

Cette équation, dans le cas d'un amortissement isotrope avec une seule constante de temps $1/\Gamma$, s'écrit enfin :

$$\frac{d}{dt} \rho_1^h = \lambda_p^{at} \otimes \rho_{RF}(t) - \Gamma \rho_1^h - i [\mathcal{H}, \rho_1^h] \quad (\text{II,C,14})$$

2) Les propriétés de l'équation pilote de l'atome habillé

a) Le terme source (II,C,6)

Il est constitué par le produit tensoriel du terme de pompage atomique en absence de radiofréquence et de l'état du champ de radiofréquence libre $\rho_{RF}(t)$: tout se passe donc comme si, sous l'effet du pompage, les atomes polarisés dans l'état décrit par λ_p^{at} se trouvaient "introduits" de façon continue dans le système et mis en contact "brusquement" avec le champ de radiofréquence avant d'avoir pu commencer à interagir avec ce champ (c'est d'ailleurs l'image que nous avons adoptée intuitivement dans le premier chapitre pour décrire qualitativement l'ensemble des expériences sur l'atome habillé). Le caractère "instantané" du pompage provient de la condition (II,A,22) satisfaite par la radiofréquence. Nous pouvons illustrer ce processus de façon particulièrement claire dans le cas de la préparation d'un état atomique excité par une irradiation lumineuse en raie large : l'atome passe alors de l'état fondamental à l'état excité en un temps τ_c de l'ordre de l'inverse $1/\Delta$ de la largeur Δ de la raie excitatrice. Ce processus d'absorption lumineuse proprement dit n'affecte pas la radiofréquence et la condition

$$\Delta \gg \omega_1$$

implique que l'atome n'a pas le temps de se coupler avec le champ habillant pendant le temps de passage d'un train d'ondes lumineuses, ce qui justifie finalement dans ce cas l'équation (II,C,6).

Afin d'étudier plus en détail le terme "source", nous allons le décomposer sur la base des états propres de l'atome habillé : désignant par $|a\rangle$, $|a'\rangle$ ces états, on obtient dans le cas général en utilisant le développement (II,B,3) de $\rho_{RF}(t)$:

$$\frac{d^{(1)}}{dt} \rho_{1,aa'}^h = \sum_{\substack{nn' \\ mm'}} C_n C_{n'}^* \langle a|n m\rangle \lambda_p^{at}{}_{mm'} \langle n' m'|a'\rangle e^{-i(n-n')\omega t} \quad (\text{II,C,15})$$

Il apparaît clairement sur cette expression que, même si le pompage effectué sur le système atomique est continu, le terme "source" pour l'atome habillé est modulé aux fréquences $(n-n')\omega$ harmoniques de celles du champ de radiofréquence, ces modulations provenant du caractère cohérent du champ auquel le système atomique est couplé.

Si le pompage atomique est lui-même modulé à une fréquence Ω (cf. § II-A-3), cette modulation, contenue dans les éléments de matrice $\lambda_{at\ mm'}^P$, vient s'ajouter aux fréquences $(n-n')\omega$ et le terme source se trouve alors modulé à la fréquence Ω et aux fréquences latérales de la forme $\Omega + (n-n')\omega$.

Remarques :

Les éléments de matrice $\langle a | n\ m \rangle$ et $\langle n' m' | a' \rangle$ de l'expression (II,C,15) décrivent la contamination des états perturbés $|a\rangle$ et $|a'\rangle$ par les états propres de \mathcal{H}_0 $|n\ m\rangle$ et $|n' m'\rangle$. Cette contamination n'est appréciable que si $|a\rangle$ et $|a'\rangle$ ne sont pas trop éloignés en énergie des états $|n\ m\rangle$ et $|n' m'\rangle$ ou encore si le nombre moyen de photons qu'ils contiennent ne diffère respectivement de n et de n' que par quelques unités. D'autre part, la présence des coefficients $C_n C_{n'}^*$ dans (II,C,15) fait que n et n' ne peuvent différer du nombre moyen N de photons contenus dans le champ que d'une quantité au plus de l'ordre de \sqrt{N} . On peut déduire de ces considérations les résultats suivants :

- Le pompage ne permet d'exciter qu'une "bande d'énergie" de l'atome habillé dont la largeur relative, de l'ordre de $1/\sqrt{N}$, est très faible; on n'explore ainsi qu'une toute petite partie du diagramme de niveaux du système : dans cette région, le diagramme est invariant dans une translation $p\omega$ ($p \ll N$) et la "force" $\lambda\sqrt{n}$ du couplage entre l'atome et la radiofréquence peut être considérée comme constante (§ I-C-1).
- Les harmoniques $r\omega = (n-n')\omega$ présents dans le terme source sont, en valeur absolue, très nombreux et s'étendent jusqu'à des fréquences de l'ordre de $\sqrt{N}\omega$.
- Le terme source à la fréquence $r\omega$ n'est important que pour des cohérences entre états $|a\rangle$ et $|a'\rangle$ dont la différence en énergie est, à quelques ω près, de l'ordre de $r\omega$.

b) Le terme d'amortissement (II,C,7)

Nous laissons pour le chapitre V la description de processus d'amortissement complexes impliquant des couplages non diagonaux entre niveaux d'énergie différents de l'atome habillé et nous nous limiterons dans ce chapitre à la description de processus de relaxation isotropes avec une seule constante de temps (voir § II-A-4). Ce terme d'amortissement s'écrit alors, pour chaque élément de matrice de l'atome habillé :

$$\frac{d^{(2)}}{dt} \rho_{1\ aa}^h = - \Gamma \rho_{1\ aa}^h \quad (\text{II,C,16})$$

La justification physique de cette équation est très claire si l'on envisage la relaxation d'un niveau atomique excité : sous l'effet de l'émission spontanée, tous les sous-niveaux Zeeman de l'atome libre se "vident" avec une même constante de temps $1/\Gamma$; il est alors évident que tous les niveaux de l'atome habillé, donc toutes les populations et cohérences Zeeman de cet atome, doivent se désintégrer avec cette même constante de temps, ce qu'exprime la relation (II,C,16). Il faut encore, pour que ce résultat soit valable, que l'atome n'ait pas le temps de se coupler à la radiofréquence pendant la durée, de l'ordre de $1/E_0$ (E_0 = énergie de la transition optique), des processus transitoires associés à l'émission spontanée. En d'autres termes, il faut que la radiofréquence satisfasse dans ce cas la "condition" toujours réalisée en pratique :

$$\gamma H_1 \ll E_0$$

c) Le terme d'évolution propre (II,C,8)

On l'écrit pour chaque élément de matrice de ρ_1^h :

$$\frac{d^{(3)}}{dt} \rho_{1,aa'}^h = -i (E_a - E_{a'}) \rho_{1,aa'}^h \quad (\text{II,C,17})$$

Cette équation décrit simplement la précession des différentes cohérences de l'atome habillé aux fréquences de BOHR de l'hamiltonien \mathcal{H}_0 .

En résumé, l'évolution complète d'un élément de matrice de l'atome habillé dans le cas d'un amortissement isotrope est donnée par la somme des trois termes (II,C,15), (II,C,16) et (II,C,17). Les trois processus de pompage, d'amortissement et d'évolution propre dans le champ H_0 sont entièrement découplés pour les différentes populations et cohérences, chacune d'entre elles évoluant de façon indépendante de toutes les autres suivant l'équation :

$$\frac{d}{dt} \rho_{1,aa'}^h = \sum_{\substack{nn' \\ mm'}} C_n C_{n'}^* \langle a|nm \rangle \lambda_{p,mm'}^{at} \langle n'm'|a' \rangle e^{-i(n-n')\omega t} \quad (\text{II,C,18})$$

$$- \Gamma \rho_{1,aa'}^h - i [E_a - E_{a'}] \rho_{1,aa'}^h$$

II-D. ETUDE GENERALE DU SIGNAL DETECTE

Nous nous proposons, dans ce paragraphe, d'étudier les propriétés générales du signal détecté dans une expérience effectuée sur l'atome habillé, telles qu'on peut les déduire de l'équation pilote (II,C,18). Ces expériences peuvent être de types très variés : elles dépendent notamment des caractéristiques du pompage réalisé sur le système atomique. Nous étudierons d'abord le cas des expériences en pompage continu (λ_p^{at} indépendant du temps) en insistant particulièrement sur la description des modulations apparaissant sur les signaux détectés aux fréquences harmoniques de la radiofréquence (§ II-D-1); puis nous nous intéresserons aux expériences en pompage modulé (§ II-D-2) et nous dirons enfin quelques mots sur les expériences en régime transitoire qui concernent la réponse de l'atome habillé à une modification soudaine des conditions expérimentales (pompage, radiofréquence ou champ statique)(§ II-D-3).

1) Etude générale des diverses modulations des signaux résonnants dans le cas d'une expérience en pompage continu

a) Expression du signal

Supposons que l'on détecte le signal S constitué par la valeur moyenne d'une certaine observable atomique O_{at} :

$$S = \langle O_{at} \rangle = \text{Tr } \rho_{at} O_{at} \quad (\text{II,D,1})$$

Pour déterminer S, il nous faut calculer la solution stationnaire de l'équation (II,C,18), en déduire grâce à (II,B,1) la matrice densité réduite du système atomique $\rho_{1 at}$ et reporter cette matrice dans (II,D,1).

Après un régime transitoire qui s'amortit en un temps de l'ordre de $1/\Gamma$ (voir §II-D-3), chaque élément de matrice $\rho_{1 aa}^h$, atteint un régime stationnaire décrit par la solution "forcée" de l'équation (II,C,18), et que l'on peut décomposer en série de FOURIER sous la forme :

$$\overline{\rho_{1 aa}^h} = \sum_r \overline{\rho_{1 aa}^h(r)} \quad (\text{II,D,2})$$

avec :

$$\overline{\rho_{1aa'}}^{h(r)} = \sum_{n,mm'} \frac{C_n C_{n-r}^* \langle a|nm \rangle \lambda_{p:mm'}^{at} \langle n-r,m'|a' \rangle e^{-ir\omega t}}{\Gamma + i [E_a - E_{a'} - r\omega]} \quad (\text{II,D,3})$$

(on a simplement fait le changement de paramètre $n-n' = r$ dans le terme source (II,C,15) de l'équation pilote).

La matrice réduite du système atomique en régime forcé s'obtient alors immédiatement, en prenant la trace de ρ_1^h par rapport à la radiofréquence; on obtient le développement en série de Fourier :

$$\overline{\rho_{1at}} = \sum_r \overline{\rho_{1at}}^{(r)} \quad (\text{II,D,4})$$

avec

$$\overline{\rho_{1at}}^{(r)}_{m''m'''} = \sum_{n''} \sum_{a,a'} \langle n''m''|a \rangle \overline{\rho_{1aa'}}^{h(r)} \langle a'|n''m''' \rangle \quad (\text{II,D,5})$$

et le signal S s'écrit finalement d'après (II,D,1) :

$$S = \sum_r S^{(r)} \quad (\text{II,D,6})$$

avec

$$S^{(r)} = \text{Tr}_{at} \overline{\rho_{1at}}^{(r)} \rho_{at} = \sum_{m''m'''} \overline{\rho_{1at}}^{(r)}_{m''m'''} \rho_{at}^{m''m''} \quad (\text{II,D,7})$$

Si l'on regroupe (II,D,3), (II,D,5) et (II,D,7), $S^{(r)}$ peut également s'écrire explicitement sous la forme :

$$S^{(r)} = \sum_{a,a'} \left\{ \sum_{n,mm'} \frac{C_n C_{n-r}^* \langle a|nm \rangle \lambda_{p:mm'}^{at} \langle n-r,m'|a' \rangle e^{-ir\omega t}}{\Gamma + i [E_a - E_{a'} - r\omega]} \right\} \times \sum_{\substack{n''m'' \\ m'''}} \langle a'|n''m''' \rangle \rho_{at}^{m''m''} \langle n''m''|a \rangle \quad (\text{II,D,8})$$

Le signal S se présente comme une somme de modulations aux fréquences $r\omega$ harmoniques de la fréquence ω du champ habillant. L'intensité de chacune de ces modulations subit des variations résonnantes lorsque la "distance" de deux niveaux d'énergie E_a et $E_{a'}$ de l'atome habillé est voisine de la fréquence de modulation. Tous ces effets peuvent s'interpréter en terme de circulation de cohérence entre le champ et le système atomique.

b) Circulation de cohérence entre la radiofréquence et l'atome habillé

Chaque élément de matrice de l'atome habillé ρ_{1aa}^h , peut être considéré formellement comme un oscillateur, de fréquence propre $E_a - E_a$, et de "bande passante" Γ . Sous l'effet du couplage avec la radiofréquence (terme source (II,C,15)), cet oscillateur est attaqué aux différentes fréquences $r\omega$ correspondant aux diverses cohérences du champ. L'excitation de chacune de ces cohérences dépend du produit des éléments de matrice $\langle a | nm \rangle \langle n-r, m' | a' \rangle$ qui décrivent la contamination des états propres de l'atome habillé sous l'effet de l'interaction entre l'atome et la radiofréquence.

Chacun des oscillateurs ainsi attaqué se met en "régime forcé" aux diverses fréquences d'excitation $r\omega$. L'amplitude des oscillations forcées obtenues va être proportionnelle à l'intensité du couplage (numérateur de (II,D,3)) et sera d'autant plus importante que la fréquence propre de l'oscillateur $E_a - E_a$, sera plus proche, à la largeur Γ de la bande passante près, de la fréquence d'excitation correspondante (dénominateur de (II,D,3)).

Le spectre de fréquences qui apparaît ainsi sur l'atome habillé comprend un très grand nombre d'harmoniques (de l'ordre de \sqrt{N}).

Nous montrons à présent que seules les premiers de ces harmoniques sont effectivement détectables sur le signal atomique S.

c) Les modulations observables sur la matrice densité réduite atomique

La matrice densité réduite du système atomique, donnée par (II,D,5), va a priori évoluer aux mêmes fréquences $r\omega$ que celle de l'atome habillé. Les modulations $r\omega$ observables sur cette matrice, qui seules peuvent être détectées physiquement, sont cependant beaucoup moins nombreuses que celles qui apparaissent sur la matrice densité de l'atome habillé et se limitent pratiquement à un très petit nombre de valeurs de r autour de zéro : d'après (II,D,5), en effet, les éléments de matrice de $\overline{\rho}_{1at}$ font intervenir les produits scalaires $\langle n | m \rangle | a \rangle$ et $\langle a' | n | m \rangle$ qui ne sont sensiblement différents de zéro que si les niveaux $| a \rangle$ et $| a' \rangle$ contiennent des nombres moyens de photons très voisins d'un même nombre n ; $| a \rangle$ et $| a' \rangle$ doivent donc être des niveaux d'énergie proches l'un de l'autre dans le diagramme de l'atome habillé (ils peuvent être séparés au plus de quelques ω). Une cohérence entre de tels niveaux ne peut, d'après les remarques de la page 88, être excitée qu'à des fréquences $r\omega$ très petites. Seules ces fréquences sont donc susceptibles d'apparaître sur les grandeurs atomiques.

De façon générale, le nombre de modulations détectables augmente avec l'amplitude du champ habillant. En effet, lorsque le couplage avec la radiofréquence croît, la contamination des niveaux $|a\rangle$ et $|a'\rangle$ fait intervenir des états non perturbés de plus en plus nombreux qui correspondent à des nombres de photons de plus en plus différents les uns des autres ... On peut montrer qualitativement de façon simple que le nombre des harmoniques observables est, en général, un entier de l'ordre de quelques ω_1/ω .

d) Résonances des signaux modulés aux croisements et anticroisements de niveaux de l'atome habillé

Lorsqu'on balaie le champ magnétique H_0 , les variations du signal détecté proviennent d'une part de la variation des fonctions d'onde de l'atome habillé (numérateur de (II,D,8)) et d'autre part de la variation des énergies propres E_a et $E_{a'}$, intervenant dans le dénominateur de (II,D,8). Les variations des fonctions d'onde peuvent être particulièrement importantes au voisinage des anticroisements de niveaux (voir § I-A). Celles des dénominateurs d'énergie conduiront à des effets résonnants lorsque deux niveaux $|a\rangle$ et $|a'\rangle$ de l'atome habillé passent à une distance l'un de l'autre de l'ordre de la valeur $r\omega$ correspondant à la modulation envisagée : un tel effet ne peut se produire qu'au voisinage d'un croisement ou anticroisement de niveaux de l'atome habillé. Nous savons en effet que le diagramme d'énergie est invariant dans une translation $r\omega$: si deux niveaux $|a\rangle$ et $|a'\rangle$ sont distants d'une quantité de l'ordre de $r\omega$, c'est qu'il existe nécessairement dans le diagramme un niveau $|a''\rangle$, d'énergie $E_{a''} = E_{a'} + r\omega$ qui, au voisinage du champ H_0 , se croise ou s'anticroise avec le niveau $|a\rangle$. Ainsi les différents effets résonnants observables sur l'atome habillé en pompage continu ne peuvent se produire que pour des valeurs du champ magnétique H_0 correspondant aux croisements et anticroisements de niveaux de son diagramme d'énergie. Les résonances associées aux anticroisements proviennent à la fois de la variation lorsqu'on balaie le champ H_0 des fonctions d'onde et des énergies propres de l'atome habillé. Les résonances de croisement ne proviennent quant à elles que de la variation résonnante des dénominateurs d'énergie et s'interprètent donc plus simplement dans ce formalisme que les premières.

Remarque :

L'introduction du niveau $|a''\rangle$ d'énergie $E_{a'} + r\omega$ permet de modifier légèrement l'expression du signal $S^{(r)}$ donné par (II,D,8) en remplaçant au numérateur de l'expression entre accolades le produit scalaire $\langle n-r, m' | a' \rangle$ par $\langle nm' | a'' \rangle$ qui, en raison de l'invariance des niveaux d'énergie par translation

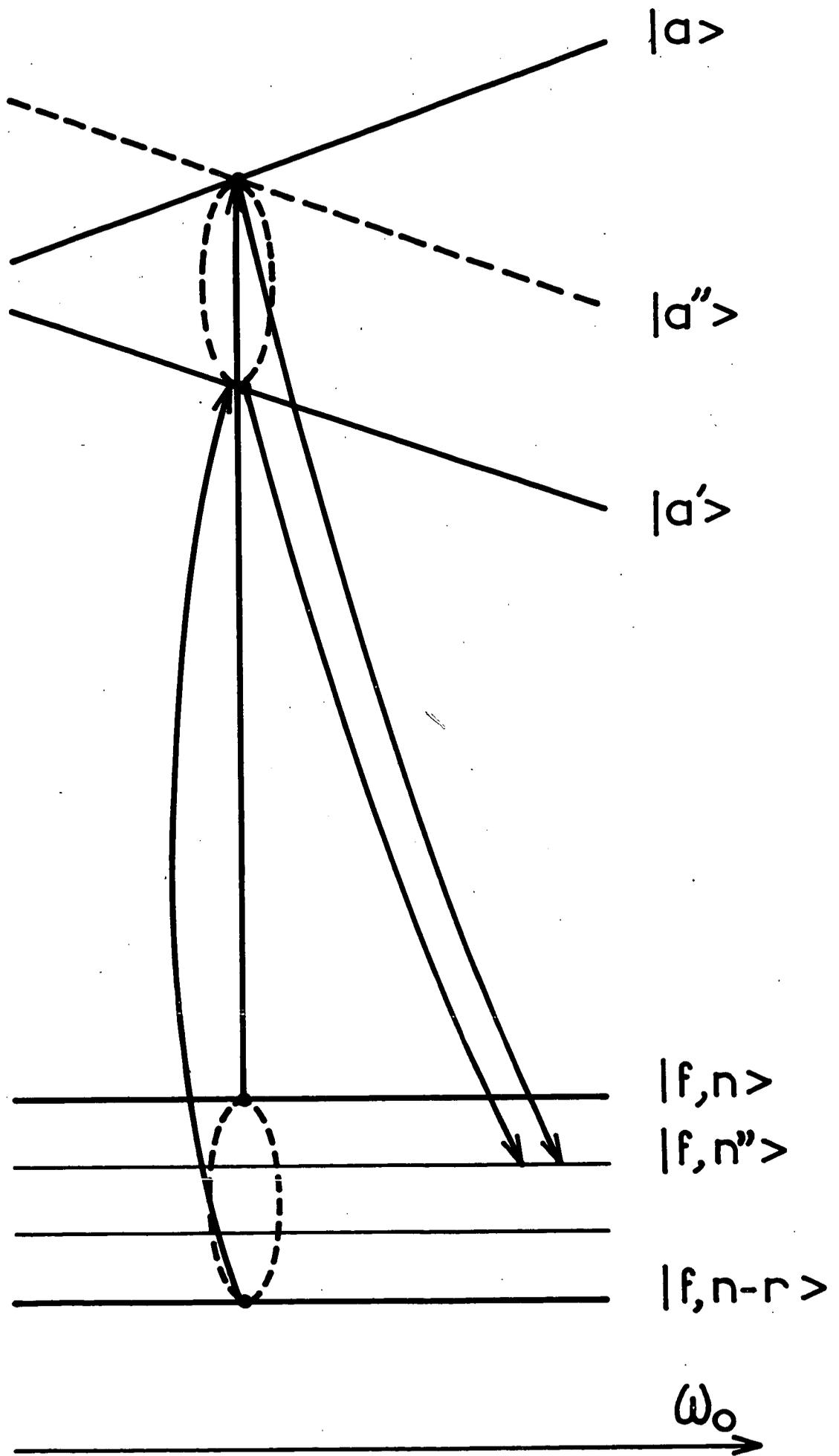
(cf. § I-C-1), lui est manifestement égal. Ce numérateur s'écrit alors :

$$\sum_{n,m,m'} C_n C_{n-r}^* \langle a | nm \rangle \lambda_p^{at} \langle nm' | a'' \rangle e^{-irwt}$$

$C_n C_{n-r}^*$ variant très peu avec n dans un domaine très large (de l'ordre de \sqrt{N}), on peut sortir ce coefficient de la sommation sur nm' qui se ramène alors à une double relation de fermeture : on fait ainsi apparaître dans le signal l'expression $\langle a | \lambda_p^{at} | a'' \rangle$, élément de matrice du pompage entre les deux niveaux de l'atome habillé qui se croisent ou s'anticroisent : le signal résonnant à un croisement ou anticroisement de deux niveaux $|a\rangle$ et $|a''\rangle$ sur une modulation rw donnée dépend finalement du produit de l'élément de matrice de pompage entre les niveaux $|a\rangle$ et $|a''\rangle$ et de l'élément de matrice de l'observable détectée O_{at} entre deux niveaux $|a\rangle$ et $|a'\rangle$ qui, au point de croisement (ou d'anticroisement), passent à une distance l'une de l'autre égale à rw (ou voisine de rw) (voir équation (II,D,8)).

e) Analogie avec la circulation de cohérence dans le cycle de pompage optique

Les transferts de cohérence entre le champ de radiofréquence et le système atomique que nous venons de décrire sont analogues aux effets de circulation de cohérence entre l'état fondamental et l'état excité d'un atome soumis au pompage optique (⁴⁶). On sait en effet que si l'atome possède de la cohérence hertzienne dans son état fondamental, celle-ci peut se transférer sous l'effet de l'irradiation lumineuse à l'état excité, les différentes observables de cet état se mettant à évoluer aux diverses fréquences de l'état fondamental. Ce transfert de cohérence sera d'autant plus important que les séparations énergétiques dans l'état excité seront plus voisines des fréquences de l'état fondamental. L'analogie avec le cas de l'atome habillé apparaît de façon particulièrement claire si l'on envisage l'exemple d'un niveau atomique excité couplé à la radiofréquence et préparé à partir d'un état fondamental diamagnétique $|f\rangle$ (voir figure 13). Les niveaux du système "atome dans l'état fondamental + radiofréquence" sont alors les états $|f,n\rangle$ représentant l'atome dans l'état $|f\rangle$ en présence de n photons. Ainsi, même si l'interaction entre l'atome et la radiofréquence est nulle dans l'état fondamental, l'atome habillé a dans cet état une "structure" associée aux diverses valeurs possibles de n . Si le champ de radiofréquence est cohérent, il y a une relation de phase entre les différents états



Fig_13

$|f, n\rangle$ et l'atome habillé possède de la cohérence hertzienne dans son état fondamental, oscillant aux fréquences ω : par exemple, la cohérence entre les états $|f, n\rangle$ et $|f, n-r\rangle$ est donnée par l'élément de matrice :

$$\langle f, n | \rho_{at} \otimes \rho_{RF} | f, n-r \rangle = C_n C_{n-r}^* e^{-i\omega t}$$

C'est cette cohérence qui se trouve transférée par excitation optique à l'état excité. λ_p^{at} s'écrit en effet dans ce cas (⁴⁶) :

$$\lambda_p^{at} = \frac{1}{T_p} \vec{e}_\lambda^* \vec{D} |f\rangle \langle f| \vec{e}_\lambda \vec{D} \quad (\text{II,D,9})$$

(T_p étant le temps de pompage, \vec{e}_λ la polarisation excitatrice et \vec{D} l'opérateur dipolaire électrique). On met alors (II,D,3) sous la forme :

$$\overline{\rho_{1 aa'}(r)} = \frac{1}{T_p} \sum_{n, mm'} \frac{\langle a | \vec{e}_\lambda^* \vec{D} | f, n \rangle C_n C_{n-r}^* e^{-i\omega t} \langle f, n-r | \vec{e}_\lambda \vec{D} | a' \rangle}{\Gamma + i [E_a - E_{a'} - \omega]} \quad (\text{II,D,10})$$

Le transfert de la cohérence hertzienne $C_n C_{n-r}^* e^{-i\omega t}$ de l'état fondamental vers l'état excité est décrit par les éléments de matrice $\langle a | \vec{e}_\lambda^* \vec{D} | f, n \rangle$ et $\langle f, n-r | \vec{e}_\lambda \vec{D} | a' \rangle$ représentés par les flèches ascendantes de la figure 13; il est résonnant lorsque les 2 états excités $|a\rangle$ et $|a'\rangle$ passent à une distance l'une de l'autre précisément égale à celle, ω , qui sépare les deux niveaux concernés de l'état fondamental (nous avons également représenté en pointillé sur la figure 13 le niveau $|a''\rangle$ d'énergie $E_a + \omega$, qui dans le cas envisagé ici se croise dans le champ résonnant avec le niveau $|a\rangle$).

Supposons enfin que l'on observe la lumière de fluorescence émise par l'état excité avec une polarisation \vec{e}_λ . On peut montrer alors que l'on détecte l'observable (⁴⁶) :

$$Q_{at} = \Gamma \vec{e}_\lambda^* \vec{D} |f\rangle \langle f| \vec{e}_\lambda \vec{D}$$

Le terme de détection dans l'équation (II,D,8) (à l'extérieur de l'accolade) s'écrit dans ces conditions :

$$\sum_{n''} \langle a' | \vec{e}_\lambda^* \vec{D} | f, n'' \rangle \langle f, n'' | \vec{e}_\lambda \vec{D} | a \rangle$$

ce qui montre que la cohérence induite sur l'atome habillé ne pourra être détectée

sur le signal que si l'émission spontanée peut "vider" les deux niveaux excités $|a \rangle$ et $|a' \rangle$ vers un même niveau $|f, n \rangle$ de l'état fondamental de l'atome habillé (flèches descendantes sur la figure 13). Toutes ces caractéristiques (conditions de résonance et de détection) sont identiques à celles du transfert de cohérence entre les états fondamental et excité d'un atome libre.

f) Cas particulier des signaux statiques

Ils correspondent au cas $r = 0$ et proviennent du couplage des populations $C_n C_n^*$ du champ de radiofréquence avec le système atomique. Ils sont donc indépendants des cohérences de ce champ et sont les mêmes que la radiofréquence soit représentée par un état cohérent de phase bien définie ou par une superposition incohérente d'états $|n \rangle$ de phase aléatoire. Nous justifions ainsi l'image du champ incohérent que nous avons introduite au chapitre I pour la description qualitative des signaux statiques observés sur l'atome habillé.

2) Etude générale du signal dans le cas d'une expérience en pompage modulé

a) Calcul du signal détecté en pompage modulé

Supposons à présent qu'au lieu d'être constant dans le temps, le taux de pompage λ_p^{at} soit modulé à la fréquence Ω suivant la formule (II,A,19). Le terme source de l'atome habillé possède maintenant un spectre de fréquences $\pm\Omega \pm r\omega$ résultant de la superposition de la fréquence de modulation Ω aux harmoniques de la fréquence du champ habillant. Tous les résultats établis en pompage continu se généralisent aisément : l'état stationnaire atteint par la matrice densité de l'atome habillé va présenter des composantes subissant des oscillations forcées aux fréquences $\pm\Omega \pm r\omega$ du terme source. L'élément de matrice stationnaire

$\rho_{1 aa'}^{h(r)}(\Omega)$, modulé à la fréquence $\Omega - r\omega$ s'écrit par exemple :

$$\rho_{1 aa'}^{h(r)}(\Omega) = \sum_{n, mm'} \frac{C_n C_{n-r}^* \langle a | nm \rangle \lambda_{\Omega mm'} \langle n-rm' | a' \rangle e^{i(\Omega-r\omega)t}}{\Gamma + i [E_a - E_{a'} - r\omega + \Omega]} \quad (II,D,12)$$

Le signal détecté dans une telle expérience se calcule à partir de (II,D,12) exactement comme en pompage continu : on obtient pour la composante $S^r(\Omega)$ modulée à $\Omega - r\omega$, la même expression que (II,D,8) à condition d'y remplacer l'expression entre accolades par le second membre de (II,D,12).

b) Résonances en pompage modulé

Effectuons une expérience en pompage modulé dans un champ magnétique H_0 fixé et faisons varier la fréquence Ω : il apparaît clairement d'après (II,D,12) que le signal détecté, modulé aux fréquences $\pm\Omega \pm rw$ va présenter des variations résonnantes lorsque la fréquence de modulation Ω vérifiera une des conditions :

$$\Omega - [E_a - E_a' - rw] \lesssim \Gamma \quad (\text{II,D,13})$$

qui exprime que Ω est égale, à la largeur Γ des niveaux près, à l'une des fréquences de BOHR de l'atome habillé entre le niveau $|a\rangle$ et le niveau $|a'\rangle$ d'énergie $E_a' = E_a + rw$. Les résonances observées dans ces conditions sont analogues à celles que BELL et BLOOM ont observé en pompage modulé sur un atome libre (³²). Leur largeur est égale à la largeur naturelle Γ des niveaux étudiés. L'intensité des signaux résonnants est proportionnelle aux produits d'éléments de matrice figurant aux numérateurs de (II,D,12) et (II,D,8). Elle dépend donc de la polarisation et de l'intensité de la radiofréquence, du champ statique H_0 , mais aussi (par l'intermédiaire de λ_Ω) des conditions du pompage modulé réalisé (longitudinal ou transversal) et de la grandeur atomique (D_{at}) détectée. La mesure des positions des résonances pour diverses valeurs du champ statique H_0 ou de l'intensité de la radiofréquence nous permet de déterminer expérimentalement le diagramme des niveaux d'énergie de l'atome habillé. On dispose ainsi d'une nouvelle méthode d'exploration de ces diagrammes, différente dans son principe de la technique du sondage par un 2e champ électromagnétique que nous avons signalée au § I-E (voir chapitre IX).

3) Etude générale des signaux détectés dans une expérience en régime transitoire

Dans les expériences que nous avons décrites jusqu'à présent (pompage continu ou modulé), l'évolution de l'atome habillé s'effectue aux différentes fréquences (rw ou $\Omega \pm rw$) imposées par le terme source de l'équation pilote et non, comme on pourrait s'y attendre a priori, aux fréquences de BOHR propres à l'hamiltonien de l'atome habillé. Ce résultat est caractéristique de toutes les expériences en "régime forcé". On ne peut en fait observer l'évolution du système à une de ses fréquences propres que pendant le régime transitoire qui précède la mise en équilibre du système dans un état stationnaire correspondant à des conditions expérimentales déterminées. De telles expériences, dites "en pulse", peuvent

être décrites de la façon générale suivante : l'atome habillé étant dans un régime stationnaire représenté par une matrice densité ρ^h en présence d'un pompage, d'un champ de radiofréquence et d'un champ statique donnés, on modifie brusquement un (ou plusieurs) de ces paramètres (obturation du faisceau de pompage dans le cas d'une expérience de pompage optique, pulse de champ de radiofréquence ou de champ statique ...). L'équation pilote étant brutalement modifiée, le système tend vers un nouvel état stationnaire décrit par une matrice densité $\overline{\rho^h}$. Le régime transitoire correspondant dure un temps de l'ordre de $1/\Gamma$. Il s'effectue aux fréquences propres de l'atome habillé et les différentes observables atomiques détectées évoluent à ces fréquences parmi lesquelles on trouve naturellement la fréquence de RABI (cf. § I-D-1) mais aussi d'autres fréquences propres comme celles qui apparaissent dans le mouvement transversal du spin atomique et que nous avons étudiées en détail au § I-D-2. L'étude de tels régimes transitoires nous fournit donc une nouvelle méthode, différente de celles que nous avons déjà mentionnées (champ "sonde" ou pompage modulé), pour déterminer les niveaux d'énergie du diagramme de l'atome habillé. Nous aurons l'occasion de décrire en détail cette méthode lorsque nous étudierons les fréquences de Larmor d'atomes habillés en champ statique faible (chapitre IX).

Nous avons ainsi montré dans ce chapitre comment on peut décrire de façon entièrement quantique une expérience quelconque de résonance magnétique. Nous avons mis les signaux de détection sous une forme se prêtant à une interprétation qualitative très claire des principaux effets physiques susceptibles de se manifester dans ces expériences. Cependant, deux problèmes de nature différente se posent encore pour calculer explicitement les signaux de détection :

- Il nous faut d'une part connaître les niveaux d'énergie et les états propres $|a\rangle$, $|a'\rangle$... de l'atome habillé que nous n'avons jusqu'à présent déterminé que pour un spin $1/2$ (§ I-C).

- D'autre part, même si ces niveaux sont connus, un simple examen des expressions (II,D,5), (II,D,8) ou (II,D,12) montre que ces formules ne se prêtent pas de façon très commode, en raison de la multiplicité des termes dont on doit tenir compte, à un calcul effectif des grandeurs observables. Il nous faut donc trouver une formulation plus condensée et plus pratique des différents signaux.

Les paragraphes suivants, qui donnent pour un spin J quelconque une description opératorielle commode des équations de BLOCH introduites dans ce chapitre, apportent une solution à ces deux problèmes.

C H A P I T R E III

FORME OPERATORIELLE DES EQUATIONS DE BLOCH POUR UN ATOME HABILLE
DE SPIN J QUELCONQUE

Nous nous proposons, dans ce chapitre, d'une part de généraliser la description des diagrammes d'énergie de l'atome habillé au cas d'un spin J quelconque d'autre part d'introduire un formalisme opératoire commode qui permet de condenser les calculs des signaux observables expérimentalement et de ramener l'étude de l'atome habillé à celle d'un spin libre évoluant dans un champ statique "fictif". Nous définirons ainsi pour un champ de radiofréquence de polarisation quelconque une transformation équivalente à celle dite du "passage dans le référentiel tournant", bien connue dans la théorie classique de la résonance magnétique nucléaire avec un champ de radiofréquence de polarisation circulaire (²³).

Le premier problème à résoudre consiste donc à déterminer les niveaux d'énergie d'un spin J quelconque habillé par des photons de radiofréquence. On pourrait songer à les déduire des niveaux d'énergie de l'hamiltonien "non perturbé" \mathcal{H}_0 (voir le diagramme de la figure 14 pour un spin $J = 1$) à l'aide d'une technique de perturbations identique à celle que nous avons utilisée avec succès pour un spin $1/2$ (méthode de la résolvante développée en Appendice II). Il apparaît cependant clairement qu'une telle technique va s'avérer dans la pratique très lourde dans la mesure où il faudra envisager l'effet du couplage non plus entre deux niveaux seulement, mais entre plusieurs niveaux qui se croisent dans un champ donné. Plutôt que d'entreprendre cette étude, qu'il faudrait d'ailleurs reprendre pour chaque valeur du spin, nous allons montrer que les niveaux d'un spin J quelconque se déduisent très simplement de ceux d'un spin $1/2$ de même rapport gyromagnétique, habillé par le même champ de radiofréquence. Qu'une telle relation existe apparaît d'ailleurs naturel si l'on remarque que, classiquement, la résonance magnétique sur un spin J se calcule simplement, à l'aide du théorème de MAJORANA (⁶⁶), à partir des formules variables pour un spin $1/2$. Nous établissons donc au § III-A le lien étroit qui existe entre les niveaux d'un spin $1/2$ habillé et ceux d'un spin J quelconque, lien qui constitue en quelque sorte une "correspondance quantique" du théorème de MAJORANA.

Une fois connus les niveaux d'énergie, il nous faut pour calculer le signal détecté dans une expérience donnée déterminer également les fonctions d'onde de l'atome habillé qui interviennent, par l'intermédiaire de "coefficients de contamination" du type $\langle a |_{nm} \rangle$, dans les expressions de la solution stationnaire de la matrice densité de l'atome habillé (équation (II,D,3)) et dans celle de la matrice densité réduite atomique (équation (II,D,5)). Le nombre de ces éléments de matrice est de plus en plus important lorsque la taille du spin augmente. De plus, le calcul doit être repris pour chaque valeur du spin, même si les conditions du pompage et de la détection ne sont pas modifiées, car les fonctions d'onde de l'atome habillé changent évidemment avec J . Il est possible de simplifier considérablement tous ces calculs en introduisant une décomposition opératorielle de la matrice densité de l'atome habillé : on sait qu'une telle décomposition, effectuée sur une base d'opérateurs tensoriels irréductibles, est d'un usage courant en physique atomique pour la matrice densité ρ_{at} d'un atome libre (⁶⁷). Elle présente dans ce cas l'avantage de s'effectuer sur des opérateurs possédant des propriétés de symétrie très simples et reliés très naturellement aux observables atomiques détectées dans une expérience (orientation, alignement, etc.). Dans le cas de la résonance magnétique, on sait d'autre part (²²) que les différents ordres tensoriels évoluent de façon totalement découplée, ce qui permet si l'on cherche à détecter une observable donnée (orientation ou alignement) de ne calculer que les composantes correspondant à cette observable dans la matrice densité et d'éviter ainsi le calcul d'un grand nombre d'éléments de matrice inutiles. Enfin, l'évolution d'une observable tensorielle donnée ne dépend pas de la taille du spin sur lequel on la détecte, ce qui évite d'avoir à reprendre les calculs pour des valeurs différentes de J (par exemple les signaux en orientation sont les mêmes, quel que soit J , que ceux qu'on observe sur un spin $1/2$). Il est possible d'apporter à la théorie quantique de la résonance magnétique les mêmes simplifications et économies de calculs en introduisant une base d' "opérateurs tensoriels" particulièrement commodes agissant dans l'espace des états de l'atome habillé et jouant pour cet atome le rôle que les opérateurs tensoriels irréductibles jouent pour l'atome libre (§ III-B). Les différentes observables atomiques se décomposent très simplement sur cette base, leur développement faisant intervenir des "coefficients de contamination opératoriels" reliés beaucoup plus directement aux quantités mesurées au cours d'une expérience que les coefficients de contamination des fonctions d'onde $\langle a |_{nm} \rangle$ dont ils dépendent évidemment.

L'introduction de ces "opérateurs tensoriels" permet enfin d'écrire l'équation pilote de l'atome habillé sous une forme concise et commode à partir de laquelle on peut décrire l'évolution du système en termes très simples (généralisation du passage dans le référentiel tournant; § III-C).

III-A. LES NIVEAUX D'ENERGIE DE L'ATOME HABILLE POUR UN SPIN J QUELCONQUE

1) Les multiplicités de niveaux de l'atome habillé

Nous avons étudié en détail au § I-C les niveaux d'un atome habillé de spin $J = 1/2$. Nous avons montré que le diagramme d'énergie pouvait, dans ce cas, se scinder en multiplicités constituées chacune de deux niveaux représentés en traits renforcés sur les figures 6 et 7 pour diverses polarisations de la radiofréquence.

Nous pouvons donner à présent de ces multiplicités une définition générale s'appliquant à un atome habillé possédant un spin J de grandeur quelconque : nous appellerons multiplicité (\mathcal{E}_n) dans un champ magnétique H_0 , l'ensemble des $(2J+1)$ niveaux notés $|\overline{m,n}\rangle$, qui se déduisent des états propres $|m,n\rangle$ de l'hamiltonien non perturbé \mathcal{H}_0 par la transformation suivante, que nous avons symbolisée par des flèches sur la figure n° 15 (relative au cas d'un spin $1/2$ habillé par un champ de radiofréquence en polarisation σ).

a) Le champ magnétique statique ayant une valeur $H_\epsilon = \frac{-\omega_\epsilon}{\gamma_\alpha}$ donnée très petite, on branche adiabatiquement la constante de couplage λ entre l'atome et le champ : au cours de cette opération, chaque état "non perturbé" $|m,n\rangle$ se transforme continûment en un état de l'atome habillé dans le champ H_ϵ , que nous appellerons $|\overline{m,n}\rangle_\epsilon$ (cette première phase de la transformation est indiquée par la flèche n° 1 sur la figure 15).

b) Le couplage une fois "branché", on balaie adiabatiquement le champ statique depuis la valeur H_ϵ jusqu'à la valeur finale $H_0 = -\omega_0/\gamma_\alpha$; partant du niveau $|\overline{m,n}\rangle_\epsilon$, on va suivre continûment au cours de ce balayage un niveau propre de l'atome habillé pour parvenir à la fin de l'opération dans l'état $|\overline{m,n}\rangle$ (flèche n° 2 sur la figure 15).

La possibilité de réaliser, même théoriquement, une telle transformation adiabatique n'est pas évidente et mérite d'être discutée : nous avons choisi comme "point de départ" de la transformation un état où l'atome et la radiofréquence ne sont pas couplés, dans un champ statique H_ϵ petit, mais de valeur finie non nulle; ainsi les niveaux d'énergie de l'hamiltonien initial ne sont pas dégénérés et donc définis sans aucune ambiguïté. Au cours du "branchement" du couplage λ et du champ H_0 , les niveaux d'énergie du système global vont varier en fonction du temps; si ces ni-

veaux, initialement séparés, restent éloignés les uns des autres, il n'y a aucune difficulté à définir une transformation assez lente pour qu'elle soit adiabatique (⁴²). La situation peut, par contre, être plus délicate lorsque deux (ou plusieurs) niveaux viennent à se couper pour une certaine valeur des paramètres (λ, H_0) : c'est en particulier le cas dans la phase (b) de la transformation lorsque le niveau suivi "croise" pour une certaine valeur de H_0 un autre niveau. La question qui se pose est de savoir s'il est alors toujours possible de "traverser" ce croisement sans qu'apparaisse une probabilité non nulle de transition vers l'autre niveau. Si le croisement de niveaux rencontré est de première espèce, il est évident que, quelle que soit la vitesse de balayage en ce point, cette probabilité de transition restera rigoureusement nulle, car les deux niveaux qui se croisent varient dans des sous-espaces orthogonaux (cf. I-A-3-a). Le problème est moins simple si le croisement de niveaux en question est de 2e espèce. La transition d'un niveau à l'autre n'est en effet, au voisinage du croisement, plus interdite par des règles de sélection strictes comme c'est le cas pour un croisement de première espèce. Une étude détaillée des critères de validité de l'approximation adiabatique (⁶⁸) permet cependant de montrer que si le passage en un point de croisement quelconque est suffisamment lent, il est toujours possible de rendre négligeable la probabilité de transition d'un niveau à l'autre et de traverser continûment ce point en restant sur le même niveau du système. En conclusion, on peut donc bien imaginer une transformation adiabatique permettant à partir des niveaux non perturbés $|m,n\rangle$ de n donné d'engendrer une multiplicité de niveaux de l'atome habillé : appelant U_A l'opérateur unitaire associé à cette transformation adiabatique, nous définirons les niveaux $|\overline{m,n}\rangle$ par la relation :

$$|\overline{m,n}\rangle = U_A |m,n\rangle \quad (\text{III,A,1})$$

Remarquons qu'il est possible de définir bien d'autres transformations adiabatiques permettant de passer des niveaux de \mathcal{H}_0 à ceux de \mathcal{H} . On pourrait par exemple "brancher" directement le couplage dans le champ H_0 , au lieu de le faire au voisinage du champ nul. Un simple examen des diagrammes d'énergie montre que les niveaux de l'atome habillé obtenus dans ces conditions à partir des niveaux $|m,n\rangle$ de \mathcal{H}_0 ne seraient en général pas les niveaux $|\overline{m,n}\rangle$, mais pourraient appartenir à des multiplicités différentes de l'atome habillé : par exemple, si ω_0 est compris entre ω et 2ω , on voit clairement sur la figure 15 que le niveau $|+,n\rangle$ se transforme dans le niveau $|\overline{-,n+1}\rangle$ et le niveau $|-,n\rangle$ dans le niveau $|\overline{+,n-1}\rangle$ (flèches pointillées n°3 sur la figure 15). L'ordre chronologique des "branchements" effectués (d'abord le

couplage λ , puis le champ H_0) est donc très important pour la définition des multiplicités de l'atome habillé.

2) L'énergie des niveaux dans une multiplicité pour un spin $J = 1/2$

Il apparaît clairement sur les figures 7 que, pour un spin $1/2$, les deux niveaux de la multiplicité \mathcal{E}_n sont symétriques par rapport à la droite d'ordonnée $n\omega$, leur énergie s'écrivant :

$$E_{\pm, n} = n\omega \pm \frac{\overline{\omega}_0}{2} \quad (\text{III,A,2})$$

$\overline{\omega}_0$ représente la distance qui sépare les deux niveaux de la multiplicité. Elle est évidemment fonction du champ statique H_0 et des paramètres définissant la radiofréquence (polarisation $\vec{\epsilon}$, fréquence ω). Elle dépend aussi du nombre n de photons de la multiplicité envisagée (c'est-à-dire encore de l'intensité du couplage $\omega_1 = 2\lambda \sqrt{n}$) et, bien entendu, du rapport gyromagnétique du spin étudié. Nous écrirons finalement :

$$\overline{\omega}_0 = \overline{\omega}_0(\vec{\epsilon}, \omega, \omega_0, \omega_1) \quad (\text{III,A,3})$$

En raison de l'invariance par translation du diagramme d'énergie (cf. § I-C-1), nous pouvons également remarquer que la séparation $\overline{\omega}_0$ des niveaux d'une multiplicité, dans un champ H_0 fixé, varie très peu lorsque n augmente de quelques unités, la modification de $\overline{\omega}_0$ ne devenant appréciable que lorsque le couplage $\omega_1 = \lambda \sqrt{n}$ change de façon notable (voir figure 8).

Il est possible de donner à l'énergie $\overline{\omega}_0$ une interprétation physique simple : au cours de la transformation adiabatique U_A , l'énergie du système "atome + champ de radiofréquence" passe de la valeur $n\omega$ à la valeur $n\omega \pm \frac{\omega_0}{2}$. Ainsi, il faut fournir au spin une énergie $\pm \frac{\omega_0}{2}$ pour l'"habiller" de n photons de radiofréquence et le "plonger" ensuite progressivement dans le champ H_0 . On peut comparer cette énergie à l'énergie $\pm \frac{\omega_0}{2}$ qu'acquiert un spin $1/2$ libre lorsqu'on le place dans un champ magnétique H_0 . La quantité $\pm \frac{\omega_0}{2}$ joue donc en quelque sorte le rôle d'une "énergie magnétique", acquise par le spin $1/2$ lorsqu'il est soumis à la transformation adiabatique U_A .

3) L'énergie des niveaux dans une multiplicité pour un spin $J > 1/2$

Si l'on "plonge" un spin J supérieur à $1/2$, en absence de radiofréquence, dans un champ H_0 , ses différents sous-niveaux Zeeman vont acquérir une énergie magnétique $m\omega_0$ égale à un multiple de l'énergie ω_0 qui sépare, dans le même champ statique les deux sous-niveaux d'un spin $1/2$ de même rapport gyromagnétique. Cette propriété remarquable se généralise, comme nous le justifions plus bas, au cas d'un atome habillé par un champ de radiofréquence pour lequel les différents sous-niveaux de la multiplicité (\mathcal{E}_n) s'écrivent :

$$E_{mn} = n\omega + \overline{m\omega_0} \quad (\text{III,A,4})$$

Dans cette expression, $\overline{\omega_0}$ est une quantité indépendante de la taille du spin étudié : elle est égale à l'énergie magnétique qui sépare les deux niveaux de la multiplicité (\mathcal{E}_n) d'un spin $1/2$ "habillé", dans le même champ statique H_0 , par le même champ de radiofréquence que le spin J étudié et ayant même rapport gyromagnétique que ce dernier. En d'autres termes, la configuration des différents sous-niveaux d'une multiplicité (\mathcal{E}_n) donnée de l'atome habillé est identique à celle des sous-niveaux Zeeman d'un atome libre de même spin "plongé" dans un champ magnétique fictif H'_0 d'amplitude $\overline{\omega_0}/\gamma_\alpha$. L'amplitude de ce champ, pour un rapport gyromagnétique donné, est indépendante de la grandeur du spin atomique envisagé et ne dépend que des paramètres caractéristiques du champ statique et de la radiofréquence (cf. équation (III,A,3)).

Afin de donner une justification simple de la formule (III,A,4), nous reprendrons une image physique classique (⁶⁹)(⁷⁰) en supposant que le système atomique de spin J considéré est constitué par une assemblée totalement symétrique de $2J$ spins $1/2$ identiques. Une telle assemblée possède en effet un moment cinétique total égal à J ; pour s'en convaincre, il suffit de remarquer que l'état symétrique :

$$\underbrace{|+,+ \dots + \rangle}_{2J \text{ fois}}$$

représentant les $2J$ spins dans l'état $+1/2$ a manifestement une composante J_z du moment cinétique le long de Oz égale à J . C'est donc bien un état propre de J^2 avec la valeur propre maximum $J(J+1)$; il en est alors de même des $2J$ autres états symétriques

obtenus par action de l'opérateur symétrique $J_- = \sum_i J_{i-}$ sur cet état. Ainsi, tout niveau atomique $|\alpha J m\rangle$ possède les mêmes propriétés angulaires qu'une superposition symétrique de $J+m$ spins dans l'état $1/2$ et de $J-m$ spins dans l'état $-1/2$, ou ce qui revient au même, peut être décrit (du point de vue de son spin) comme un ensemble de $2J$ "bosons" de spin $1/2$ dont $J+m$ occupent l'état $+1/2$ et $J-m$ l'état $-1/2$. En particulier, les énergies propres d'un niveau atomique habillé par un champ de radiofréquence, qui ne dépendent de ce niveau que par l'intermédiaire de son spin J et de son rapport gyromagnétique γ_α , seront identiques aux niveaux de l'hamiltonien symétrique :

$$\rightarrow \mathcal{H}_S = \omega a^\dagger a + \omega_0 \sum_{i=1}^{2J} J_{iz} + \sum_{i=1}^{2J} \lambda J_i (\vec{a}\vec{\epsilon} + a^\dagger \vec{\epsilon}^*) \quad (\text{III,A,5})$$

décrivant l'interaction de $2J$ bosons de spin $1/2$ de rapport gyromagnétique γ_α avec le même champ de radiofréquence.

L'énergie du niveau $|\overline{m,n}\rangle$ de l'atome habillé sera donc égale à $n\omega$ augmenté de l'énergie magnétique qu'il faut fournir à $(J+m)$ bosons dans l'état $+1/2$ et $(J-m)$ bosons dans l'état $-1/2$ lorsqu'on branche adiabatiquement la constante de couplage λ , puis le champ magnétique H_0 . Or, il résulte clairement de (III,A,5) que les $2J$ bosons équivalents au spin J sont couplés indépendamment les uns des autres à la radiofréquence. On néglige d'autre part, en raison de l'inertie de celle-ci, la réaction que chacun des spins peut avoir sur le champ et, par voie de conséquence, les interactions mutuelles des différents bosons par l'intermédiaire de leur couplage avec le champ habillant. Il en résulte que l'énergie magnétique des $2J$ bosons doit être additive : les $(J+m)$ bosons dans l'état $+1/2$ contribuent, d'après (III,A,2), à cette énergie par la quantité $(J+m) \frac{\omega_0}{2}$ tandis que les $(J-m)$ "bosons" dans l'état $-1/2$ apportent une énergie $-(J-m) \frac{\omega_0}{2}$. Finalement, l'énergie de l'état $|\overline{m,n}\rangle$, égale à $n\omega + (J+m) \frac{\omega_0}{2} - (J-m) \frac{\omega_0}{2}$, est bien donnée par l'expression (III,A,4) qui se trouve ainsi justifiée.

Remarque :

La représentation du spin J que nous venons d'utiliser est précisément celle que BLOCH et RABI (⁶⁹) ont employée pour démontrer les formules de MAJORANA (⁶⁶) qui relie les probabilités de transition d'un spin J dans un champ de radiofréquence donné traité classiquement à celles d'un spin $1/2$. Il n'est donc pas étonnant que, grâce à cette image, nous puissions, dans notre formalisme quantique,

ramener l'étude d'un atome habillé de spin J quelconque à celle d'un spin $1/2$.

4) Les propriétés du diagramme d'énergie de l'atome habillé dans le cas d'un spin $J > 1/2$

Les propriétés établies au paragraphe précédent nous permettent de déduire très simplement les diagrammes d'énergie d'un spin J quelconque de ceux d'un spin $J = 1/2$ que nous avons déjà étudiés (voir figures 6 et 7) : les $2J+1$ niveaux de la multiplicité (\mathcal{E}_n) se construisent simplement en ajoutant à $n\omega$ une énergie égale à m fois ($-J < m < J$) la séparation $\overline{\omega_0}$ des niveaux de la multiplicité (\mathcal{E}_n) correspondante d'un spin $1/2$: les figures 16 donnent les diagrammes que l'on obtient ainsi dans le cas d'un spin $J = 1$ pour diverses polarisations (π, σ_+, σ et polarisations cohérentes les plus générales possibles) de la radiofréquence. Nous allons passer en revue un certain nombre de propriétés de ces diagrammes, qu'il aurait été très difficile de mettre en évidence directement par une méthode de perturbation du type de celle que nous avons utilisée pour un spin $1/2$.

a) Les anticroisements de niveaux

Il apparaît sur les figures 16 des anticroisements de niveaux pour certaines valeurs du champ magnétique H_0 . Chacun de ces anticroisements concerne non plus 2 niveaux seulement, comme c'est le cas pour un spin $1/2$, mais $2J+1$ niveaux à la fois. Leur calcul direct à partir des niveaux non perturbés de l'hamiltonien \mathcal{H}_0 par la méthode de la résolvante nécessiterait la diagonalisation d'une matrice $(2J+1) \times (2J+1)$. Le point de vue adopté dans ce chapitre nous permet d'établir simplement une caractéristique essentielle de ces anticroisements : ils ne peuvent apparaître dans un champ H_0 donné, pour une valeur quelconque du spin, que s'il existe dans le même champ un anticroisement pour le diagramme correspondant d'un spin $1/2$ de même γ_α . Cette propriété découle immédiatement du fait que les anticroisements sont associés aux extrémums, lorsqu'on varie H_0 , des niveaux d'énergie de l'atome habillé, donc aux extrémums de la fonction $\overline{\omega_0}(\omega_0)$, laquelle reste la même quelle que soit la taille du spin. Ainsi, si le champ de radiofréquence a une polarisation σ_+ , on ne peut observer dans le diagramme que les anticroisements $\omega_0 = \omega$ (voir figure 6 pour un spin $1/2$, figure 16-b pour un spin 1); si le champ a une polarisation σ , seuls peuvent apparaître les anticroisements "impairs" $\omega_0 = (2p+1)\omega$ qui existent dans ce cas sur un spin $1/2$ (comparer les figures 7-b et 16-c). Enfin, dans le cas d'un

champ de polarisation cohérente quelconque, les anticroisements se situent au voisinage de tous les champs tels que $\omega_0 = p\omega$ (p entier quelconque, pouvant être égal à zéro si la radiofréquence n'est pas polarisée linéairement : voir figures 7-c, 7-d, 16-d et 16-e).

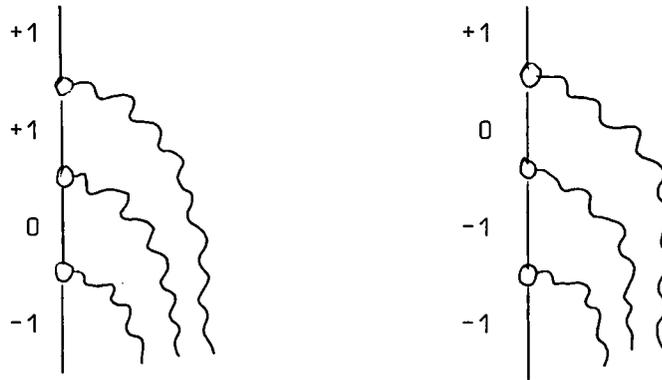
De plus, tous les anticroisements de niveaux apparaissant dans un champ donné doivent subir, quelle que soit la taille du spin, les mêmes déplacements radiatifs lorsque l'intensité du couplage entre l'atome et la radiofréquence augmente. Comme conséquence très importante de ces propriétés, les différents effets résonnants liés aux anticroisements (précession de RABI, résonance magnétique, transition à plusieurs quanta, etc.) ne peuvent se manifester pour un spin quelconque que dans les champs magnétiques où ils ont lieu pour un spin 1/2 de même rapport gyromagnétique. On retrouve ainsi les résultats établis classiquement par le théorème de MAJORANA (⁶⁶).

b) Les croisements de niveaux de l'atome habillé pour un spin $J > 1/2$

α) Les croisements "non entiers"

Tous les croisements de niveaux de l'hamiltonien non perturbé qui ne correspondent pas à un anticroisement de niveaux sur un spin 1/2 restent nécessairement des croisements de niveaux de l'atome habillé pour un spin J quelconque. En particulier, dès que J est supérieur à 1/2, il apparaît dans le diagramme d'énergie de \mathcal{H}_0 toute une série de croisements dans des champs "non entiers" de la forme $\omega_0 = \frac{p\omega}{2}, \frac{p'\omega}{3}, \frac{p''\omega}{4} \dots$ qui, pour des valeurs croissantes du spin, correspondent à des croisements de niveaux non perturbés pour lesquels $\Delta m = 2, 3, 4 \dots$ (on voit par exemple sur la figure 14 les croisements de niveaux "demi-entiers" $\Delta m = 2$ qui apparaissent pour un spin $J = 1$ dans les champs $\omega_0 = \omega/2, 3\omega/2, 5\omega/2, \dots$). Tous ces croisements doivent subsister sur l'atome habillé et cela quelle que soit la polarisation de la radiofréquence, puisqu'il ne peut jamais apparaître dans les champs correspondants d'anticroisement pour un spin 1/2. En conséquence, les niveaux d'énergie de \mathcal{H}_0 qui se croisent en ces points ne peuvent être couplés entre eux à aucun ordre par V . Il faut bien remarquer que cette absence de couplage ne résulte pas toujours d'une règle de sélection sur le moment cinétique du système global "atome + radiofréquence" comme c'est en général le cas pour un spin 1/2. Il est par exemple évident qu'avec une polarisation cohérente du champ, superposition de photons σ_+ , σ_- et π , la conservation du moment cinétique n'empêche aucunement un couplage indirect entre les niveaux de \mathcal{H}_0 $|+1, n\rangle$ et $|-1, n+3\rangle$ ($J=1$) qui se croisent dans le champ

$\omega_0 = 3\omega/2$. En fait, le couplage entre ces niveaux peut s'effectuer par les deux "chemins" symbolisés par les deux diagrammes ci-dessous :



L'absence d'anticroisement dans le champ $\omega_0 = 3\omega/2$ implique nécessairement que les contributions au couplage de ces deux chemins doivent, au point de croisement, interférer de façon destructive. C'est bien ce que l'on vérifie par un calcul direct des amplitudes de transition associées à ces deux diagrammes (Appendice II).

Le croisement de niveaux $\omega_0 = 3\omega/2$ de l'atome habillé est donc un croisement de 2e espèce (cf. §I-A-3-a)) pour une polarisation cohérente (σ_+ , σ_- , π) de la radiofréquence. Son existence ne peut en aucun cas être tenue ici pour accidentelle dans la mesure où elle est une conséquence directe des propriétés fondamentales des diagrammes d'énergie de l'atome habillé que nous venons d'étudier. L'annulation du couplage, dont nous venons de montrer un exemple sur un croisement donné et à l'ordre le plus bas, doit en fait survenir pour tous les croisements de niveaux non-entiers et à tous les ordres de la perturbation car elle est encore une conséquence dans notre formalisme quantique du théorème de MAJORANA.

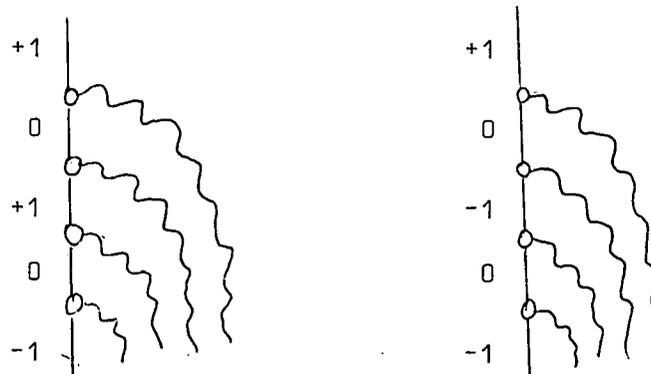
Pour des polarisations de la radiofréquence qui ne sont pas des superpositions cohérentes des photons σ et π , les amplitudes de transition associées à chacun des diagrammes que nous venons de décrire s'annulent : les croisements de niveaux non entiers redeviennent des croisements de niveaux de première espèce de l'atome habillé : c'est le cas des champs en polarisation π , σ_+ ou σ_- .

Dans tous les cas, ces croisements non entiers proviennent de l'intersection de niveaux appartenant à des multiplicités d'énergie différentes de l'atome habillé. Lorsque le couplage entre l'atome et la radiofréquence (c'est-à-dire le nombre n de photons) augmente, ces multiplicités se déforment et les croi-

sements subissent des déplacements radiatifs qui peuvent devenir très importants et conduire à la disparition du croisement lorsque les niveaux auxquels il correspond deviennent tangents, puis cessent de se couper (cf. § I-C).

β) Les croisements "entiers"

Les croisements de niveaux de l'atome habillé dans les champs "entiers" de la forme $\omega_0 = p\omega$ subsistent également pour un spin J supérieur à $1/2$ s'ils existent dans les mêmes conditions sur un spin $1/2$. On aura donc un ensemble complet de croisements "entiers" $\omega_0 = p\omega$ pour un champ de radiofréquence en polarisation π (figure 16-a); dans le cas d'un champ σ_+ , tous les croisements $\omega_0 = p\omega$ ($p \neq 1$) resteront des croisements de l'atome habillé (figure 16-b) et enfin, pour un champ en polarisation σ , il ne subsiste plus que les croisements pairs $\omega_0 = 2p\omega$ (figure 16-c). Dans ce dernier cas, ces croisements pairs qui, sur un spin $1/2$, sont de première espèce deviennent de 2e espèce dès que J est supérieur à $1/2$: par exemple les deux niveaux $|+1, n+4\rangle$ et $|+1, n\rangle$ ($J = 1$) qui se croisent dans le champ $\omega_0 = 2\omega$ peuvent être couplés entre eux (par absorption de quatre photons de type σ_+, σ_-) via deux chemins différents, symbolisés par les diagrammes ci-dessous



Les amplitudes de transition correspondantes doivent interférer de façon destructive (³⁸) puisqu'avec une telle polarisation de la radiofréquence, on observe un croisement dans ce champ pour un spin $J = 1/2$.

c) Expression exacte des niveaux d'énergie pour les polarisations π et σ^+ de la radiofréquence

Avant d'achever ce paragraphe, nous allons donner l'expression de l'énergie $\overline{\omega_0}$ et celle des états propres de l'atome habillé dans chaque multiplicité pour une valeur quelconque du spin J et dans les deux cas où la polarisation du champ de radiofréquence permet d'effectuer les calculs sans approximations (ces calculs sont donnés en détail en Appendice III).

α) Champ de radiofréquence en polarisation π (figure 16-a)

Les états propres, qui ont déjà été donnés au chapitre I dans le cas d'un spin 1/2, se mettent de façon générale sous la forme :

$$|\overline{m,n}\rangle = |m\rangle \otimes |\overline{n}_m\rangle \quad (\text{III,A,6})$$

avec :

$$|\overline{n}_m\rangle = e^{-m\lambda/\omega(a^\dagger - a)} |n\rangle \quad (\text{III,A,7})$$

Les produits scalaires des états du champ de radiofréquence $|\overline{n}_m\rangle$ vérifient la relation importante :

$$\langle \overline{n}_m | \overline{n}'_{m'} \rangle = J_{n-n'} \left[(m-m') \frac{\omega_1}{\omega} \right] \quad (\text{III,A,8})$$

Quant à l'énergie $\overline{\omega_0}$ elle est dans ce cas identique à l'énergie magnétique de l'atome libre plongé dans le même champ statique :

$$\overline{\omega_0} = \omega_0 \quad (\text{III,A,9})$$

et les niveaux d'énergie de la multiplicité \mathcal{E}_n s'écrivent simplement :

$$E_{\overline{m,n}} = n\omega + m\omega_0 \quad (\text{III,A,10})$$

β) Champ de radiofréquence en polarisation σ⁺ (figure 16-b)

Les états propres de la multiplicité \mathcal{E}_n sont donnés par l'expression :

$$|\overline{m,n}\rangle = \sum_{m'} R_{m'm}^{(J)}(\theta_n) |m', n+m-m'\rangle \quad (\text{III,A,11})$$

dans laquelle $R^{(J)}$ représente la matrice de rotation standard d'un spin J autour de l'axe Oy. θ_n est l'angle défini par la relation (I,C,6) :

$$\text{tg } \theta_n = \frac{\omega_1(n)}{\omega_0 - \omega} ; \quad (-\pi \leq \theta_n \leq 0)$$

Remarque :

La détermination de l'angle θ_n (défini entre $-\pi$ et 0) est ici très importante (cf. Appendice III) : en champ statique nul ($\omega_0 = 0$) et en couplage faible, il faut en effet que θ_n soit voisin de zéro afin que le niveau $|\overline{m,n}\rangle$ donné par (III,A,11) puisse tendre, conformément à sa définition, vers le niveau "non perturbé" $|m,n\rangle$ lorsque ω_1 s'annule. Comme $\text{tg } \theta_n = -\frac{\omega_1(n)}{\omega}$ est alors négatif (rappelons que λ et ω_1 sont supposés positifs; voir note page 33), il est nécessaire d'adopter pour θ_n la détermination comprise entre $-\pi$ et 0 (la détermination comprise entre 0 et π conduisant en champ statique nul à un angle θ_n voisin de π).

Il résulte clairement de (III,A,11) que les états propres de l'atome habillé sont des superpositions d'états non perturbés de \mathcal{H}_0 pour lesquels la valeur du moment cinétique total le long de Oz est constante (égale à $m+n$), ce qui est bien conforme aux règles de sélection établies pour une telle polarisation au § I-B-3. Quant à l'énergie magnétique dans une multiplicité, elle s'écrit :

$$\overline{\omega}_0 = \omega - \sqrt{(\omega_0 - \omega)^2 + \omega_1^2} \quad \text{(III,A,12)}$$

ce qui donne pour énergie des sous-niveaux de la multiplicité (\mathcal{E}_n) :

$$E_{m,n} = n\omega + m\omega - m \sqrt{(\omega_0 - \omega)^2 + \omega_1^2} \quad \text{(III,A,13)}$$

Chaque multiplicité est donc constituée d'un "faisceau" de $2J+1$ branches d'hyperboles (voir figure 16-b) pour $J = 1$) centrées en $\omega_0 = \omega$ et se coupant pour les deux valeurs du champ magnétique données par l'expression :

$$\omega_0 = \omega \pm \sqrt{\omega^2 - \omega_1^2} \quad \text{(III,A,14)}$$

Remarque :

Il ne faut pas confondre les états $|\overline{m,n}\rangle$ de n donné, avec les niveaux associés à l'anticroisement I_n^1 de l'atome habillé dans le champ $\omega_0 = \omega$. Dans le cas d'un spin $J = 1/2$, il est clair par exemple que les niveaux $|+\rangle_N^{(h)}$ et $|-\rangle_N^{(h)}$ définis au § I-C-2 sont respectivement les états $|\overline{-,N+1}\rangle$ et $|\overline{+,N}\rangle$ appartenant aux multiplicités \mathcal{E}_{N+1} et \mathcal{E}_N .

III-B. LA DESCRIPTION OPERATORIELLE DE L'ATOME HABILÉ

Les résultats obtenus au paragraphe précédent nous permettent d'établir une analogie intéressante entre les niveaux d'énergie d'un atome habillé et ceux d'un atome libre plongé dans un "champ magnétique fictif" d'amplitude $H_0' = -\bar{\omega}_0/\gamma_\alpha$. Chaque multiplicité de l'atome habillé sous-tend en effet un espace à $2J+1$ dimensions que l'on peut considérer formellement comme un niveau atomique "fictif" de spin J , décomposé par le champ H_0' en $(2J+1)$ "sous-niveaux Zeeman" $|\overline{m,n}\rangle$. La structure des niveaux d'énergie de l'atome habillé dans un champ H_0 donné (voir figure 17) présente ainsi une grande similitude avec celle d'un atome libre "fictif" possédant une infinité de niveaux (αJ) équidistants, ayant tous le même moment cinétique \vec{J} et le même rapport gyromagnétique (tant que n varie peu en valeur relative, cf. § I-C-1).

Appelons \bar{P}_n le projecteur sur la multiplicité \mathcal{E}_n :

$$\bar{P}_n = \sum_m |\overline{m,n}\rangle \langle \overline{m,n}| \quad \text{(III,B,1)}$$

Les différents projecteurs \bar{P}_n vérifient manifestement les relations d'orthogonalité et de fermeture :

$$\bar{P}_n \bar{P}_{n'} = \bar{P}_n \delta_{nn'} \quad \text{(III,B,2)}$$

$$\sum_n \bar{P}_n = 1 \quad \text{(III,B,3)}$$

qui permettent de décomposer tout opérateur de l'atome habillé et en particulier son opérateur densité ρ^h sur les diverses multiplicités \mathcal{E}_n suivant la relation :

$$\rho^h_{nn'} = \sum_{mm'} \rho^h_{mm'} \quad \text{avec} \quad \rho^h_{nn'} = \bar{P}_n \rho^h \bar{P}_{n'} \quad \text{(III,B,4)}$$

Poursuivant notre analogie, nous voyons que les éléments de matrice des projections "diagonales" ρ^h_{nn} jouent le rôle des diverses populations et cohérences "Zeeman" de notre atome "fictif", alors que les projections non diagonales $\rho^h_{nn'} (n \neq n')$ décrivent des cohérences "haute fréquence" entre niveaux atomiques "fictifs" différents (ressemblant par exemple à des cohérences optiques ou hyperfines). Nous nous proposons dans ce paragraphe de développer cette comparaison qui va nous permettre

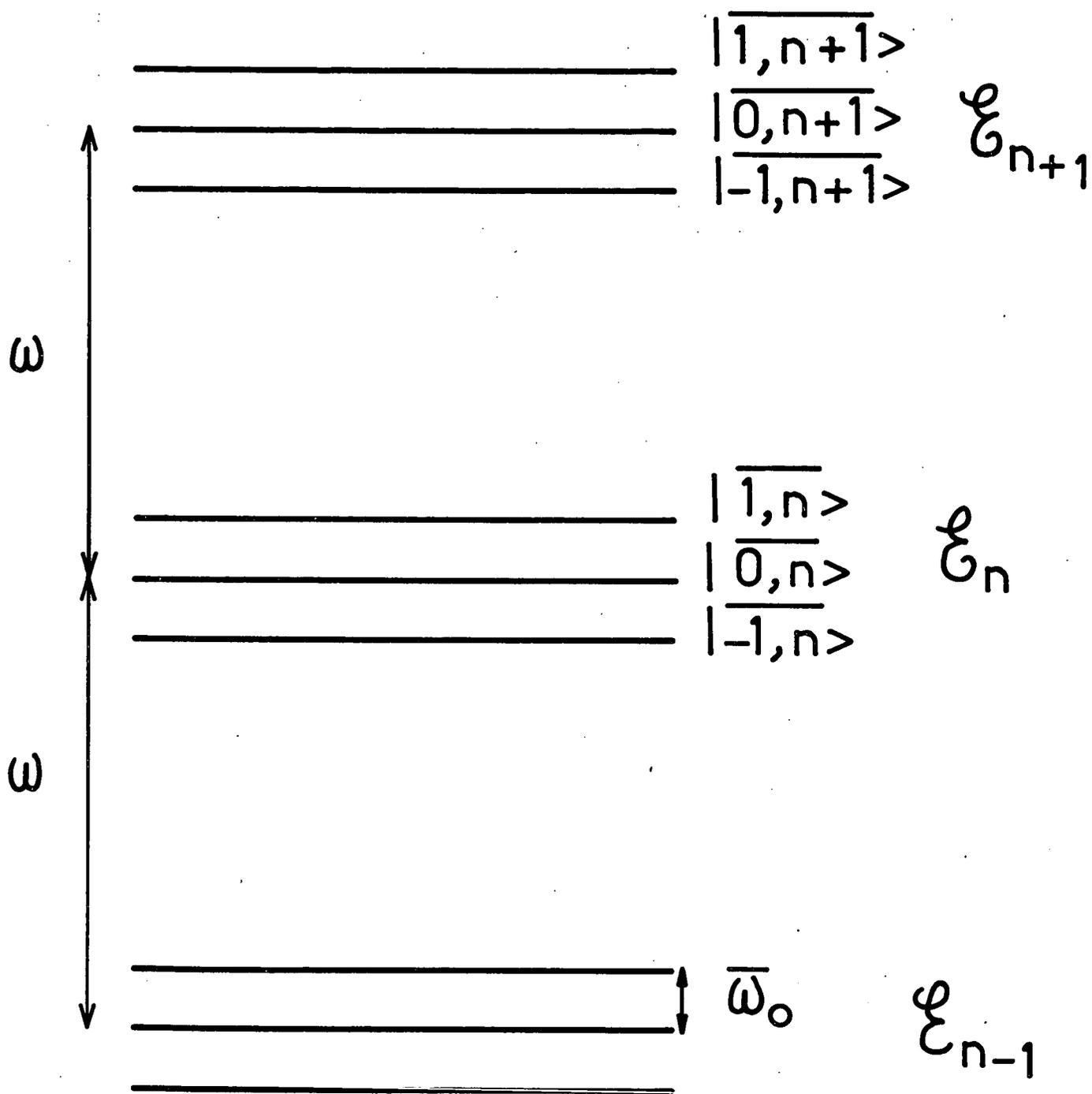


Fig - 17

d'analyser en termes très simples les propriétés physiques de l'atome habillé en les ramenant à celles de l'atome libre "fictif" que nous venons de définir. Nous savons que les différentes populations et cohérences d'un système atomique libre se décrivent de manière particulièrement commode dans le formalisme opératoire des tenseurs irréductibles (que nous rappelons au § III-B-1). Nous serons donc conduits à définir des opérateurs qui jouent pour l'atome habillé le rôle de ces opérateurs tensoriels et nous étudierons simplement leurs propriétés (§ III-B-2). Il nous restera finalement à relier ces opérateurs -dont la définition est purement formelle- aux grandeurs physiques mesurées réellement dans une expérience (§ III-B-3).

1) Rappel sur les opérateurs tensoriels irréductibles d'un atome libre

a) Définitions et propriétés

Avant de généraliser la notion d'opérateur tensoriel à l'atome habillé, nous allons brièvement rappeler les propriétés fondamentales des opérateurs tensoriels irréductibles $T^{(k)}$ relatifs à un système atomique libre (⁴²) : ces opérateurs possèdent $2k+1$ composantes T_q^k ($q = -k \dots k$) se transformant les unes dans les autres dans une rotation suivant la relation :

$$R T_q^k R^{-1} = \sum_{q'=-k}^k T_{q'}^k R_{q'q}^{(k)} \quad (\text{III,B,5})$$

($R^{(k)}$ est la matrice représentant la rotation dans un espace de spin k).

Les T_q^k commutent d'autre part avec le moment cinétique \vec{J} suivant les relations classiques :

$$\begin{aligned} [J_{\pm}, T_q^k] &= \sqrt{k(k+1)-q(q\pm 1)} T_{q\pm 1}^k \\ [J_z, T_q^k] &= q T_q^k \end{aligned} \quad (\text{III,B,6})$$

On utilise souvent en physique atomique (⁷¹) des opérateurs tensoriels irréductibles particuliers ayant la propriété de relier sélectivement entre eux deux niveaux seulement (αJ) et ($\alpha' J'$) donnés : nous appellerons ${}_{\alpha\alpha'}^{JJ'} T_q^k$ un tel opérateur qui sera défini dans la base standard ($\alpha J m$) par les éléments de matrice :

$$\langle \alpha_1 J_1 m | \frac{JJ'}{\alpha\alpha'} T_q^k | \alpha_2 J_2 m' \rangle = \delta_{\alpha\alpha_1} \delta_{\alpha'\alpha_2} \delta_{J_1 J_2} \delta_{J_2 J_1} (-1)^{J-m'} \langle JJ' m-m' | kq \rangle \quad (\text{III,B,7})$$

($\langle JJ' m-m' | kq \rangle$ est un coefficient de CLEBSCH-GORDAN).

Les opérateurs $\frac{JJ'}{\alpha\alpha'} T_q^k$ ainsi définis vérifient la condition d'orthogonalité :

$$\text{Tr} \left[\frac{JJ'}{\alpha\alpha'} T_q^k \frac{J_1 J_2 T_{q'}^{k'}}{\alpha_1 \alpha_2} \right] = \delta_{\alpha\alpha_1} \delta_{\alpha'\alpha_2} \delta_{JJ_1} \delta_{J'J_2} \delta_{kk'} \delta_{qq'} \quad (\text{III,B,8})$$

et la relation de conjugaison hermitique :

$$\frac{JJ'}{\alpha\alpha'} T_q^k = (-1)^{J-J'+q} \frac{J' J T_q^{k'}}{\alpha' \alpha} \quad (\text{III,B,9})$$

leur trace enfin est donnée par la relation :

$$\text{Tr} \left[\frac{JJ'}{\alpha\alpha'} T_q^k \right] = \sqrt{2J+1} \delta_{\alpha\alpha'} \delta_{JJ'} \delta_{k0} \delta_{q0} \quad (\text{III,B,10})$$

seuls les tenseurs diagonaux ($\alpha=\alpha'$; $J=J'$) de rang nul ($k=0$) ayant une trace différente de zéro.

Remarquons enfin que les opérateurs tensoriels d'ordre un $\frac{JJ'}{\alpha\alpha'} T_q^1$ définis à l'intérieur du niveau (αJ) sont proportionnels aux composantes du moment cinétique J de ce niveau (théorème de WIGNER-ECKART) et vérifient les relations :

$$\frac{JJ'}{\alpha\alpha'} T_{\pm 1}^1 = \alpha_{\pm 1}(J) J_{\pm} ; \quad \frac{JJ'}{\alpha\alpha'} T_0^1 = \alpha_0(J) J_z \quad (\text{III,B,11})$$

Les coefficients $\alpha_{\pm 1}(J)$ et $\alpha_0(J)$ sont des facteurs de normalisation qui dépendent de la taille du spin J et dont l'introduction est nécessaire pour assurer l'orthonormalisation des $\frac{JJ'}{\alpha\alpha'} T_q^1$ (relation (III,B,8)). On a :

$$\alpha_0(J) = \left[\frac{J(J+1)(2J+1)}{3} \right]^{-1/2} ; \quad \alpha_{\pm 1}(J) = \mp \frac{1}{\sqrt{2}} \alpha_0(J) \quad (\text{III,B,12})$$

b) Décomposition des opérateurs atomiques sur les opérateurs tensoriels irréductibles

Une des propriétés fondamentales des $\frac{JJ'}{\alpha\alpha'} T_q^k$ est de constituer une base orthonormée dans l'espace de LIOUVILLE des opérateurs atomiques. En particulier, on peut décomposer la matrice densité ρ_{at} sur cette base sous la forme :

$$\rho_{at} = \sum_{kq} \sum_{\substack{JJ' \\ \alpha\alpha'}} JJ' C_{\alpha\alpha'}^{k*} T_{\alpha\alpha'}^k \quad (\text{III,B,13})$$

Les coefficients $JJ' C_{\alpha\alpha'}^k$ représentent les valeurs moyennes des opérateurs tensoriels irréductibles dans le système atomique étudié. On a en effet, en tenant compte de l'hermiticité de ρ_{at} et des relations (III,B,8) et (III,B,13) :

$$JJ' C_{\alpha\alpha'}^k = \text{Tr} \left\{ \rho_{at}^\dagger T_{\alpha\alpha'}^k \right\} = \text{Tr} \left\{ \rho_{at} T_{\alpha\alpha'}^k \right\} = \langle T_{\alpha\alpha'}^k \rangle \quad (\text{III,B,14})$$

Ces coefficients satisfont d'autre part la condition de conjugaison complexe déduite de (III,B,9) :

$$JJ' C_{\alpha\alpha'}^k = (-)^{J-J'+q} J' J C_{\alpha'\alpha}^{k*} \quad (\text{III,B,15})$$

Si on se limite à l'étude d'un niveau atomique αJ donné, on décrira l'atome par la matrice densité $JJ \rho_{at}$ restreinte à ce niveau :

$$JJ \rho_{at} = \sum_{kq} JJ C_{\alpha\alpha}^{k*} T_{\alpha\alpha}^k \quad (\text{III,B,16})$$

La décomposition (III,B,16) porte en fait sur les $(2J+1)$ premiers ordres tensoriels ($0 \leq k \leq 2J$), car il résulte immédiatement de (III,B,7) que tous les opérateurs $JJ T_{\alpha\alpha}^k$ sont identiquement nuls dès que $k > 2J$. Si le niveau étudié possède un spin $J = 1/2$, sa matrice densité se décomposera uniquement sur le tenseur d'ordre zéro $JJ T_{\alpha\alpha}^0$ (opérateur scalaire à trace non nulle décrivant la population globale du niveau) et sur les tenseurs d'ordre un $JJ T_{\alpha\alpha}^1$ (proportionnels au spin \vec{J} du niveau d'après l'équation (III,B,11)) qui décrivent son orientation. Si le niveau possède un spin $J = 1$, il apparaîtra dans la décomposition (III,B,16) des tenseurs d'ordre 2 $JJ T_{\alpha\alpha}^2$ (opérateurs quadrupolaires décrivant l'alignement du système), etc.

2) Introduction d'une base opératorielle commode pour l'atome habillé

a) Le moment cinétique fictif de l'atome habillé

Revenons à l'étude d'un niveau atomique (αJ) interagissant avec le champ de radiofréquence. Nous appellerons moment cinétique fictif de l'atome habillé l'opérateur \vec{J} dont les éléments de matrice entre multiplicités différentes sont

nuls et les éléments de matrice à l'intérieur d'une multiplicité identiques à ceux du moment cinétique atomique \vec{J} dans la base standard des niveaux $|\alpha J m\rangle$ de l'atome libre :

$$\langle \overline{m, n} | \vec{j} | \overline{m', n'} \rangle = \delta_{nn'} \langle \alpha J m | \vec{J} | \alpha J m' \rangle \quad (\text{III, B, 17})$$

Par définition, les sous-niveaux $|\overline{m, n}\rangle$ de chaque multiplicité sont états propres de l'opérateur j_z avec la valeur propre m :

$$j_z |\overline{m, n}\rangle = m |\overline{m, n}\rangle \quad (\text{III, B, 18})$$

On peut alors mettre l'hamiltonien \mathcal{H} de l'atome habillé sous la forme :

$$\mathcal{H} = n\omega \overline{P}_n + \overline{\omega}_0 j_z \quad (\text{III, B, 19})$$

qui le sépare en deux parties dont l'une ($n\omega \overline{P}_n$) représente l'énergie du "centre de gravité" de chaque multiplicité et l'autre ($\overline{\omega}_0 j_z$) joue le rôle d'un "hamiltonien Zeeman" à l'intérieur de chaque multiplicité.

b) Les opérateurs tensoriels fictifs de l'atome habillé

Nous appellerons opérateurs tensoriels fictifs de l'atome habillé des opérateurs que nous noterons ${}^{nn'}\mathcal{C}_q^k$ qui possèdent des éléments de matrice non nuls entre deux multiplicités \mathcal{E}_n et $\mathcal{E}_{n'}$, seulement de l'atome habillé et dont les éléments de matrice entre états propres de cet atome sont identiques à ceux d'un opérateur irréductible atomique T_q^k dans la base standard (αJ) :

$$\begin{aligned} \langle \overline{m_1 n_1} | {}^{nn'}\mathcal{C}_q^k | \overline{m_2 n_2} \rangle &= \delta_{n_1 n_2} \delta_{m_1 m_2} \langle \alpha J m_1 | T_q^k | \alpha J m_2 \rangle \\ &= \delta_{n_1 n_2} \delta_{m_1 m_2} (-)^{J-m_2} \langle J J m_1 - m_2 | k q \rangle \end{aligned} \quad (\text{III, B, 20})$$

Ces opérateurs étant définis de façon identique aux opérateurs ${}^{JJ'}T_q^k$ (cf. relation (III, B, 7)) possèdent exactement les mêmes propriétés :

- Ils vérifient notamment les relations de commutation avec le spin "fictif" \vec{j} analogues à (III, B, 6) :

$$\begin{cases} [j_{\pm}, {}^{nn'}\mathcal{C}_q^k] = \sqrt{k(k+1)-q(q\pm 1)} {}^{nn'}\mathcal{C}_{q\pm 1}^k \\ [j_z, {}^{nn'}\mathcal{C}_q^k] = q {}^{nn'}\mathcal{C}_q^k \end{cases} \quad (\text{III, B, 21})$$

- Ils satisfont les relations d'orthogonalité correspondant à (III,B,8) :

$$\text{Tr} \left[\begin{matrix} n_1 n_2 \mathcal{C}_q^k & n_1' n_2' \mathcal{C}_{q'}^{k'} \end{matrix} \right] = \delta_{n_1 n_1'} \delta_{n_2 n_2'} \delta_{kk'} \delta_{qq'} \quad (\text{III,B,22})$$

et la relation de conjugaison hermitique semblable à (III,B,9) :

$${}^{nn'} \mathcal{C}_q^k = (-)^q {}^{nn'} \mathcal{C}_{-q}^{k*} \quad (\text{III,B,23})$$

Les opérateurs tensoriels d'ordre un définis à l'intérieur d'une multiplicité \mathcal{E}_n sont proportionnels aux composantes du spin fictif \vec{j} défini dans cette multiplicité : on a les relations analogues à (III,B,11) :

$${}^{nn'} \mathcal{C}_q^1 = \alpha_q(J) {}^{nn'} j_q \quad (\text{III,B,24})$$

avec $j_{\pm 1} = j_{\pm}$ et $j_0 = j_z$.

Enfin, les ${}^{nn'} \mathcal{C}_q^k$ constituent une base dans l'espace de LIOUVILLE des opérateurs de l'atome habillé. La matrice densité ρ^h se décompose sous la forme analogue à (III,B,13) :

$$\rho^h = \sum_{kq} \sum_{nn'} {}^{nn'} C_q^{k*} {}^{nn'} \mathcal{C}_q^k \quad (\text{III,B,25})$$

Dans cette expression, les coefficients ${}^{nn'} C_q^k$ sont les valeurs moyennes dans l'état atomique habillé des opérateurs tensoriels fictifs :

$${}^{nn'} C_q^k = \langle {}^{nn'} \mathcal{C}_q^k \rangle \quad (\text{III,B,26})$$

et vérifient la relation de conjugaison complexe (cf. (III,B,15))

$${}^{nn'} C_q^k = (-)^q {}^{n'n} C_{-q}^{k*} \quad (\text{III,B,27})$$

c) Changement de base et rotations "fictives" dans les multiplicités de l'atome habillé

Nous avons adopté dans ce qui précède comme "base standard" dans chaque multiplicité de l'atome habillé la base $|\overline{m,n}\rangle$ des états propres de

l'énergie, ce qui revient à quantifier le spin fictif \vec{j} le long de la direction du champ magnétique fictif agissant sur ce spin. Ce choix n'est pas le seul possible et nous pouvons tout aussi bien adopter n'importe quelle autre base déduite de la précédente dans une "rotation fictive" :

$$|\overline{m}, n\rangle = \sum_{m'} R_{m'm}^{(J)} |\overline{m'}, n\rangle \quad (\text{III,B,28})$$

Nous pouvons rattacher à cette "nouvelle base standard" de nouveaux opérateurs tensoriels fictifs de l'atome habillé déduits des ${}^{nn'}\mathcal{C}_q^k$ par la même "rotation fictive" :

$${}^{nn'}\mathcal{C}'_q{}^k = \sum_{q'} R_{q'q}^{(k)} {}^{nn'}\mathcal{C}_q{}^k \quad (\text{III,B,29})$$

Les ${}^{nn'}\mathcal{C}'_q{}^k$ ainsi définis vérifient manifestement toutes les propriétés satisfaites par les ${}^{nn'}\mathcal{C}_q{}^k$ et constituent donc une base équivalente à celle des ${}^{nn'}\mathcal{C}_q{}^k$ dans l'espace de LIOUVILLE de l'atome habillé. Cette base correspond simplement à une direction de quantification du spin fictif différente de celle du champ magnétique fictif. Bien que ce choix puisse paraître a priori plus compliqué, nous verrons qu'on peut avoir intérêt dans certains cas à adopter une telle base, notamment lorsque le champ de radiofréquence est très intense et introduit une direction de quantification plus commode que celle du champ fictif (cf. chapitre V).

Revenons enfin sur le qualificatif de "fictives" que nous avons associé aux "rotations" définies par les relations (III,B,28) et (III,B,29). Bien que ces opérations soient formellement équivalentes à des rotations dans les multiplicités \mathcal{E}_n , il est bien clair cependant qu'elles ne décrivent en aucun cas des rotations physiques réelles de l'atome habillé. Pour effectuer une telle rotation sur un état $|\overline{m}, n\rangle$, il faut en effet faire "tourner" simultanément l'atome et le champ de radiofréquence. L'état obtenu à l'issue de la rotation sera donc un état atomique habillé par des photons de radiofréquence dont la polarisation $\vec{\epsilon}'$ est différente de celle $\vec{\epsilon}$ des photons qui "habillent" l'atome avant la rotation. Un tel état ne peut donc évidemment pas être décrit par une superposition d'états $|\overline{m}, n\rangle$, encore moins par une superposition d'états d'une multiplicité \mathcal{E}_n donnée. En d'autres termes, les multiplicités (\mathcal{E}_n) ne sont jamais des espaces irréductibles pour les rotations réelles du système physique. En ce sens, les opérateurs \vec{j} et ${}^{nn'}\mathcal{C}_q{}^k$ introduits dans ce paragraphe ne sont pas de vrais opérateurs de moment cinétique ou de vrais opéra-

teurs tensoriels irréductibles pour l'atome habillé (d'où le nom de fictif que nous leur avons donné). Ils vérifient cependant un ensemble de propriétés mathématiques qui les apparentent à de tels opérateurs et qui en font, comme nous allons le voir, des intermédiaires de calcul très commodes pour l'étude des propriétés de l'atome habillé.

3) Relation entre les opérateurs tensoriels atomiques et les opérateurs tensoriels fictifs de l'atome habillé

Les opérateurs "fictifs" $\mathcal{E}_q^{nn'k}$, qui sont définis de façon purement formelle, ne sont pas des observables directement détectées dans une expérience sur l'atome habillé. On mesure en effet généralement dans une telle expérience une grandeur physique relative au système atomique seul, c'est-à-dire une grandeur produit tensoriel de l'opérateur unité I_{RF} de la radiofréquence par une observable atomique O_{at} . Celle-ci peut se décomposer sous une forme analogue à (III,B,16) sur les opérateurs tensoriels atomiques $\mathcal{J}_{\alpha}^{JJ_Tk}$ à l'intérieur du niveau (αJ) étudié (*), si bien que l'observable de l'atome habillé détectée s'écrit :

$$O_{at} \otimes I_{RF} = \sum_{kq} \mathcal{J}_{\alpha}^{JJ_Qk*} \mathcal{J}_{\alpha}^{JJ_Tk} \otimes I_{RF} \quad (\text{II,B,30})$$

Chacun des opérateurs $\mathcal{J}_{\alpha}^{JJ_Tk} \otimes I_{RF}$ peut à son tour être décomposé sur les multiplicités de l'atome habillé sous la forme d'une somme de projections :

$$\mathcal{J}_{\alpha}^{JJ_Tk} \otimes I_{RF} = \sum_{nn'} \mathcal{J}_{\alpha}^{nn'} \mathcal{J}_{\alpha}^{JJ_Tk} \quad \text{avec} \quad \mathcal{J}_{\alpha}^{nn'} \mathcal{J}_{\alpha}^{JJ_Tk} = \bar{P}_n \mathcal{J}_{\alpha}^{JJ_Tk} \otimes I_{RF} \bar{P}_{n'} \quad (\text{III,B,31})$$

Ce sont ces projections, que nous noterons plus simplement $\mathcal{T}_q^{nn'k}$, qui constituent les opérateurs "physiques" de l'atome habillé et nous nous proposons, dans ce paragraphe,

(*) Nous nous limitons ici à l'étude d'observables définies dans un niveau atomique donné. Nous ne décrirons donc pas les grandeurs physiques possédant une cohérence ("optique", "hyperfine" ou autre) entre deux niveaux différents. Il serait facile d'étendre notre étude à des grandeurs de ce type. Il faudrait alors tenir compte du couplage simultané de deux niveaux avec la radiofréquence et introduire des opérateurs tensoriels fictifs $\mathcal{J}_{\alpha}^{nn'} \mathcal{E}_q^k$ agissant entre des multiplicités différentes de l'atome habillé dans chacun des niveaux (on devra toutefois supposer, comme nous l'avons déjà fait au § I-E, que ces deux niveaux interagissent indépendamment l'un de l'autre avec la radiofréquence).

de les exprimer en fonction des opérateurs "fictifs" ${}^{nn'}\mathcal{C}_q^k$ avec lesquels, comme nous allons le voir, il ne faut pas les confondre. Nous commencerons par étudier les cas simples où la polarisation de la radiofréquence permet d'effectuer les calculs exactement.

a) Les projections ${}^{nn'}T_q^k$ des opérateurs tensoriels atomiques dans les cas solubles

Si le champ de radiofréquence est linéaire et parallèle à H_0 (polarisation π), les éléments de matrice des opérateurs ${}^{nn'}T_q^k$ entre états propres de l'atome habillé se déduisent immédiatement de la relation (III,A,6) :

$$\langle \overline{m,n} | {}^{nn'}T_q^k | \overline{m',n'} \rangle = \langle m | T_q^k | m' \rangle \langle \overline{n} | \overline{n',m'} \rangle$$

L'élément de matrice de T_q^k au second membre de cette équation impose la condition $m-m' = q$; on a alors $\langle \overline{n} | \overline{n',m'} \rangle = J_{n-n'}(q \frac{\omega_1}{\omega})$ dans cette relation (cf. équation (III,A,8)) et finalement :

$$\langle \overline{m,n} | {}^{nn'}T_q^k | \overline{m',n'} \rangle = \langle m | T_q^k | m' \rangle J_{n-n'}(q \frac{\omega_1}{\omega}) \quad \text{(III,B,32)}$$

Dans le cas d'un champ de radiofréquence tournant perpendiculaire à H_0 , on déduit de même de (III,A,11) la relation :

$$\langle \overline{m,n} | {}^{nn'}T_q^k | \overline{m',n'} \rangle = \sum_{m''m'''} R_{m''m}^{(J)}(\theta_n) R_{m''m'}^{(J)}(\theta_n) \langle m'', n+m-m'' | T_q^k | m''', n'+m'-m''' \rangle$$

Compte tenu de la règle de sélection $m'' - m''' = q$ et du fait que T_q^k est diagonal dans l'espace des photons de radiofréquence, on peut réécrire cette équation sous la forme :

$$\langle \overline{m,n} | {}^{nn'}T_q^k | \overline{m',n'} \rangle = \langle m | R^{-1}(\theta_n) T_q^k R(\theta_n) | m' \rangle \delta_{q+m'-m, n-n'}$$

soit encore, d'après (III,B,1) :

$$\langle \overline{m,n} | {}^{nn'}T_q^k | \overline{m',n'} \rangle = \sum_{q'} R_{q',q}^{(k)}(\theta_n) \langle m | T_{q'}^k | m' \rangle \delta_{q+m'-m, n-n'}$$

L'élément de matrice au second membre de cette dernière équation impose la condition $m - m' = q'$, qui compte tenu de la présence de $\delta_{q+m'-m, n-n'}$ limite à la seule valeur

$q' = q+n'-n$ la sommation sur q' . Enfin, la matrice $R^{(k)}$ étant unitaire et ses éléments de matrice réels (elle représente une rotation autour de Oy), on obtient finalement l'expression :

$$\langle \overline{m, n} | {}^{nn'} T_q^k | \overline{m', n'} \rangle = R_{q, q+n'-n}^{(k)}(\theta_n) \langle m | T_{q+n'-n}^k | m' \rangle \quad (\text{III, B, 33})$$

Les relations (III, B, 32) et (III, B, 33) permettent d'exprimer très simplement les opérateurs ${}^{nn'} T_q^k$ en fonction des opérateurs tensoriels "fictifs" de l'atome habillé sous la forme :

$${}^{nn'} T_q^k = J_{n-n'} \left(q \frac{\omega_1}{\omega} \right) {}^{nn'} \mathcal{C}_q^k \quad (\text{III, B, 34})$$

pour un champ linéaire π et :

$${}^{nn'} T_q^k = R_{q, q+n'-n}^{(k)}(\theta_n) {}^{nn'} \mathcal{C}_{q+n'-n}^k \quad (\text{III, B, 35})$$

pour un champ tournant σ_+ .

Il apparaît ainsi clairement que les ${}^{nn'} T_q^k$ sont différents des opérateurs tensoriels "fictifs" de l'atome habillé. En particulier, ils n'obéissent plus aux relations de commutation simples avec le moment cinétique fictif \vec{j} satisfait par les ${}^{nn'} \mathcal{C}_q^k$. Leur évolution dans le temps qui dépend de leur commutateur avec l'hamiltonien \mathcal{H} (III, B, 19) sera donc beaucoup plus difficile à étudier. Toutes ces raisons justifient l'introduction dans notre théorie des ${}^{nn'} \mathcal{C}_q^k$ qui, malgré leur caractère artificiel du point de vue physique présentent sur les ${}^{nn'} T_q^k$ de nombreux avantages d'ordre mathématique et sont reliés à ces derniers par des relations simples ((III, B, 34), (III, B, 35)) que nous allons à présent généraliser pour une polarisation quelconque de la radiofréquence.

b) Décomposition des ${}^{nn'} T_q^k$ sur les ${}^{nn'} \mathcal{C}_q^k$ dans le cas général

Dans les deux cas de polarisation conduisant à des calculs solubles, la projection ${}^{nn'} T_q^k$ d'un opérateur de rang k se décompose sur des opérateurs tensoriels fictifs ${}^{nn'} \mathcal{C}_q^k$ de même rang et les coefficients de cette décomposition ne dépendent que de la différence $n-n'=r$ des indices des multiplicités correspondantes et non pas séparément de n et de n' . Nous montrons en Appendice IV que ces résultats, qui sont liés au caractère dipolaire magnétique du couplage entre l'atome et la radiofréquence et à l'invariance par translation du diagramme d'énergie de l'atome habillé, sont valables dans le cas d'une polarisation quelconque de la radiofréquence

pour laquelle les équations (III,B,34) et (III,B,35) se généralisent sous la forme :

$${}^{n,n-r}T_q^k = \sum_{q'} (r)_{A_{qq'}}^k \quad {}^{n,n-r}T_{q'}^k \quad (III,B,36)$$

La projection ${}^{n,n-r}T_q^k$ se décompose ainsi en général sur l'ensemble des opérateurs tensoriels irréductibles de l'atome habillé opérant entre les multiplicités \mathcal{E}_n et \mathcal{E}_{n-r} et de même rang k que l'opérateur tensoriel atomique considéré. Les coefficients opératoriels $(r)_{A_{qq'}}^k$, dépendent évidemment de la polarisation $\vec{\epsilon}$ et en général des paramètres $\omega, \omega_0, \omega_1$. Dans le cas d'un champ linéaire en polarisation π ils s'écrivent :

$$(r)_{A_{qq'}}^k = \delta_{qq'} J_r(q \frac{\omega_1}{\omega}) \quad (III,B,37)$$

et pour un champ tournant σ_+ :

$$(r)_{A_{qq'}}^k = R_{q,q-r}^{(k)} (\theta_n) \delta_{q',q-r} \quad (III,B,38)$$

Les coefficients $(r)_{A_{qq'}}^k$, vérifient un certain nombre de propriétés -démontrées en Appendice IV- qui résultent notamment des relations de conjugaison hermitique et d'orthogonalité satisfaites par les opérateurs T_q^k et ${}^{nn'}T_q^k$. Insistons ici sur une propriété essentielle de ces coefficients : ils sont indépendants de la taille du spin J dès lors que la condition $J \geq 2k$ nécessaire pour que les opérateurs tensoriels de rang k puissent être définis dans le niveau atomique est remplie. Cette indépendance par rapport à la taille du spin se constate aisément sur les équations (III,B,37) et (III,B,38) et nous la démontrons de façon générale en Appendice IV pour une polarisation quelconque de la radiofréquence. C'est l'un des grands avantages de ce formalisme opératoriel que de "condenser" toute "l'information" contenue dans les fonctions d'onde de l'atome habillé sous une forme qui ne dépend pas de la taille du spin, ce qui conduit finalement à réaliser une grande économie de calculs. Pour déterminer un coefficient $(r)_{A_{qq'}}^k$, donné, il suffira par exemple de considérer le spin le plus petit ($J = k/2$) compatible avec l'existence d'une grandeur tensorielle d'ordre k et d'écrire pour cette valeur du spin l'élément de matrice entre deux états $|\overline{m}, n\rangle$ et $|\overline{m-q'}, n-r\rangle$ de l'opérateur atomique T_q^k . A partir des équations (III,B,20) et (III,B,36), on obtient immédiatement l'expression qui nous sera utile par la suite :

$${}^{(r)}A_{qq'}^k = (-1)^{J+m+q'} \frac{\langle \overline{m, n} | T_q^k | \overline{m-q', n-r} \rangle}{\langle JJ m, -m+q' | k q' \rangle} \quad (\text{III, B, 39})$$

III-C. DESCRIPTION D'UNE EXPERIENCE DANS LE FORMALISME OPERATORIEL : GENERALISATION DE LA NOTION DE REFERENTIEL TOURNANT

Compte tenu des équations (III, B, 30) et (III, B, 31), le signal détecté dans une expérience se met sous la forme générale :

$$S = \langle O_{at} \otimes I_{RF} \rangle = \sum_{kq} \sum_{nr} O_q^{k*} \langle n, n-r | T_q^k \rangle \quad (\text{III, C, 1})$$

qui, d'après (III, B, 36), s'écrit encore :

$$S = \sum_{kqq'} \sum_{n,r} O_q^{k*} {}^{(r)}A_{qq'}^k \langle n, n-r | \mathcal{T}_q^k \rangle \quad (\text{III, C, 2})$$

Pour calculer ce signal, il nous faut donc établir l'équation d'évolution satisfaite par les différentes composantes tensorielles fictives $\langle n, n-r | \mathcal{T}_q^k \rangle$ c'est-à-dire encore transcrire l'équation pilote (II, C, 13) de l'atome habillé dans la base opératorielle introduite au paragraphe précédent. Le passage des T_q^k aux \mathcal{T}_q^k (de l'équation (III, C, 1) à (III, C, 2)) complique légèrement l'expression du signal mais simplifie considérablement, comme nous l'avons déjà signalé, la forme des équations d'évolution en raison des relations de commutation simples entre j_z (qui intervient dans l'hamiltonien (III, B, 19)) et les \mathcal{T}_q^k . Nous allons montrer effectivement dans ce paragraphe que l'équation pilote satisfaite par les $\langle \mathcal{T}_q^k \rangle$ peut, moyennant certaines transformations simples, s'interpréter comme celle d'un spin libre plongé dans le champ statique fictif H'_0 , point de vue qui généralise au cas d'une polarisation quelconque de la radiofréquence le passage classique au référentiel tournant.

1) L'équation de Bloch pour les opérateurs tensoriels "fictifs" de l'atome habillé

Pour établir cette équation, il suffit de multiplier les deux membres de (II, C, 13) par les différentes composantes ${}^{nn'} \mathcal{T}_q^k$ et de prendre la trace

des produits obtenus. Les calculs correspondants sont effectués en Appendice IV. On a intérêt pour les mener à bien à décomposer la matrice de pompage atomique sous une forme analogue à (III,B,16) :

$$\lambda_p^{at} = \sum_{kq} \lambda_q^{k*} T_q^k \quad (III,C,3)$$

et à adopter pour les opérateurs tensoriels "fictifs" une représentation d'interaction définie par la relation :

$$n, n-r \tilde{\mathcal{E}}_q^k = e^{-ir\omega t} n, n-r \mathcal{E}_q^k \quad (III,C,4)$$

ce qui permet d'éliminer dans le mouvement propre des cohérences de l'atome habillé l'évolution à la "haute fréquence" $r\omega$.

L'équation pilote obtenue pour la valeur moyenne $\langle n, n-r \tilde{\mathcal{E}}_q^k \rangle$ s'écrit alors :

$$\frac{d}{dt} \langle n, n-r \tilde{\mathcal{E}}_q^k \rangle = \sum_{q', s} \mathcal{P}(n) \lambda_{q'}^k (s) A_{q', q}^{k*} e^{-is\omega t} - \Gamma \langle n, n-r \tilde{\mathcal{E}}_q^k \rangle + iq\bar{\omega}_0 \langle n, n-r \tilde{\mathcal{E}}_q^k \rangle \quad (III,C,5)$$

Au deuxième membre de cette équation, le premier terme décrit le pompage des différentes composantes tensorielles de l'atome habillé; le second terme décrit une relaxation isotrope avec une seule constante de temps Γ (nous avons également déterminé en Appendice IV l'équation pilote des $nn' \mathcal{E}_q^k$ dans le cas où la relaxation prend une forme beaucoup plus générale et permet de coupler entre eux plusieurs niveaux atomiques différents. L'équation obtenue dans ce cas sera utile au chapitre V). Le dernier terme de (III,C,5) décrit enfin la précession de Larmor de l'opérateur tensoriel fictif en représentation d'interaction, dans le champ fictif $H'_0 = -\bar{\omega}_0/\gamma_\alpha$.

Il apparaît clairement sur (III,C,5) que l'évolution des différentes composantes $\langle n, n-r \tilde{\mathcal{E}}_q^k \rangle$ de l'atome habillé est indépendante de r et ne dépend finalement de n que par le coefficient $\mathcal{P}(n)$ décrivant la distribution des photons dans le mode du champ de radiofréquence envisagé (*). Il en résulte que le quotient par $\mathcal{P}(n)$

(*) En fait, l'équation pilote dépend également implicitement de n par l'intermédiaire des coefficients opératoriels qui sont fonction de $\omega_1 = 2\lambda \sqrt{n}$; on peut négliger cependant la variation de ω_1 sur la largeur de la distribution $\mathcal{P}(n)$.

des diverses cohérences de l'atome habillé de n et $n-r$ quelconques, qui sont excitées de la même façon et subissent au cours du temps exactement la même évolution, sont égales à tout instant. Ceci nous conduit à définir, à la place de toutes ces quantités, une composante tensorielle réduite unique :

$$\langle\langle \mathcal{C}_q^k \rangle\rangle = \frac{1}{\mathcal{P}(n)} \langle n, n-r \tilde{\mathcal{C}}_q^k \rangle \quad (\text{III,C,6})$$

qui peut encore s'écrire, en faisant $r = 0$ et en remarquant que l'on a évidemment $\langle n n \tilde{\mathcal{C}}_q^k \rangle = \langle n n \mathcal{C}_q^k \rangle$:

$$\langle\langle \mathcal{C}_q^k \rangle\rangle = \frac{1}{\mathcal{P}(n)} \langle n n \mathcal{C}_q^k \rangle \quad (\text{III,C,7})$$

Cette composante réduite ne dépend donc plus directement ni de n ni de r et son évolution est décrite par l'équation pilote :

$$\frac{d}{dt} \langle\langle \mathcal{C}_q^k \rangle\rangle = \sum_{q',s} \lambda_{q'}^k \langle s \rangle A_{q',q}^{k*} e^{-is\omega t} - \Gamma \langle\langle \mathcal{C}_q^k \rangle\rangle + iq\bar{\omega}_0 \langle\langle \mathcal{C}_q^k \rangle\rangle \quad (\text{III,C,8})$$

dans laquelle la distribution $\mathcal{P}(n)$ des photons dans le champ a totalement disparu.

Montrons enfin que cette distribution disparaît également de l'expression (III,C,2) du signal lorsqu'on l'exprime en fonction des composantes réduites $\langle\langle \mathcal{C}_q^k \rangle\rangle$. Compte tenu de (III,C,4) et (III,C,6), (III,C,2) s'écrit en effet :

$$S = \sum_{k,q,q'} \sum_{n,r} O_q^{(k)*} \langle r \rangle A_{qq'}^{(k)} \mathcal{P}(n) \langle\langle \mathcal{C}_{q'}^{(k)} \rangle\rangle e^{ir\omega t}$$

La sommation sur n dans cette dernière expression ($\sum_n \mathcal{P}(n) = 1$) fait bien disparaître $\mathcal{P}(n)$ et donne finalement :

$$S = \sum_{k,q,q',r} O_q^{(k)*} \langle r \rangle A_{qq'}^{(k)} \langle\langle \mathcal{C}_{q'}^{(k)} \rangle\rangle e^{ir\omega t} \quad (\text{III,C,9})$$

Ainsi, la description quantitative de n'importe quelle expérience sur l'atome habillé s'effectue en 2 étapes :

- a) On détermine l'évolution des $\langle\langle \mathcal{C}_q^{(k)} \rangle\rangle$ à l'aide de (III,C,8).
- b) On reporte les solutions obtenues dans (III,C,9) pour calculer le signal.

La forme de l'équation (III,C,8) est identique à celle qui représenterait l'évolution des composantes tensorielles d'un atome libre soumis à un processus de pompage modulé. Ceci nous conduit, comme nous le montrons à présent, à décrire l'expérience réalisée sur l'atome habillé en lui associant une "expérience équivalente" effectuée sur un système de spins en absence de radiofréquence.

2) Problème équivalent dans le référentiel "tournant généralisé"

Une expérience de résonance magnétique effectuée dans le champ statique \vec{H}_0 en présence de la radiofréquence est caractérisée par les paramètres λ_q^k décrivant le pompage des spins et O_q^k précisant l'observable détectée. Elle dépend également des processus de relaxation atomiques que nous supposons ici définis par une constante de temps unique $1/\Gamma$. A cette expérience réelle, schématisée par le diagramme 1 ci-dessous, les équations (III,C,8) et (III,C,9) suggèrent d'associer l'expérience fictive équivalente symbolisée par le diagramme n° 2 : l'atome se trouve plongé dans un champ

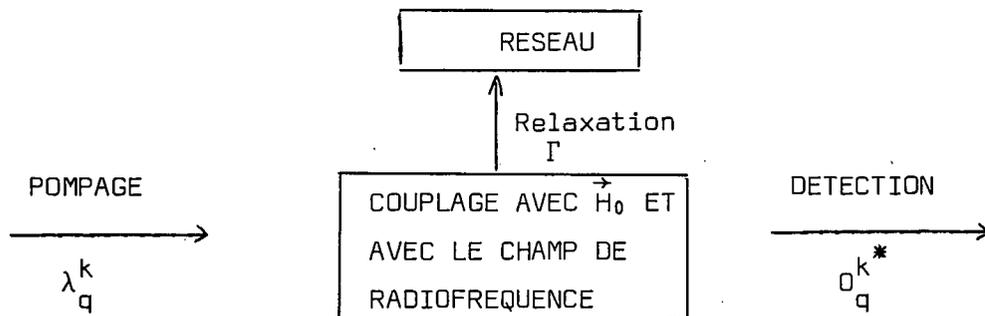


Diagramme n° 1 symbolisant l'expérience réelle

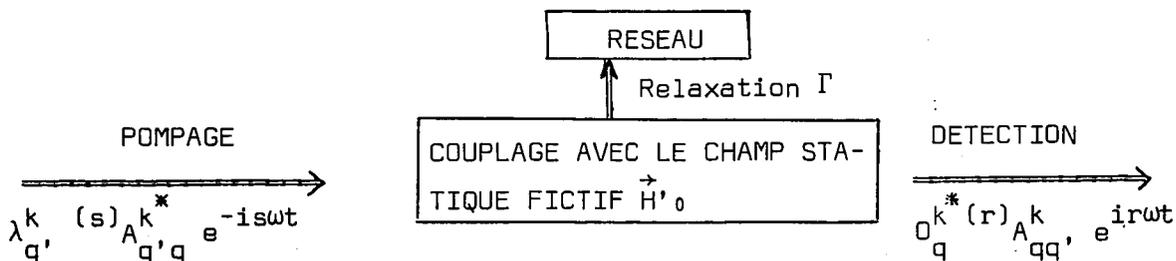


Diagramme n° 2 symbolisant l'expérience équivalente

\vec{H}'_0 dont l'amplitude contient toute l'information utile relative aux énergies propres de l'atome habillé. Le champ de radiofréquence a disparu. La relaxation reste décrite, comme dans l'expérience réelle, par la constante de temps unique $1/\Gamma$. Tous les effets liés à la contamination des fonctions d'onde sont contenus dans les coefficients opératoriels qui modifient les facteurs de pompage et de détection ^(*), lesquels deviennent modulés aux fréquences harmoniques de ω . Nous avons déjà interprété ces modulations au chapitre II en termes de circulation de cohérence entre l'atome et le champ quantifié. Nous pouvons en donner ici une autre explication : le fait que l'on puisse se ramener au problème simple d'un spin libre dans un champ statique suggère que l'ensemble des transformations conduisant aux équations fondamentales (III,C,8) et (III,C,9) constitue en quelque sorte l'analogie quantique, dans le cas d'une polarisation quelconque de la radiofréquence, du passage classique dans le référentiel tournant; cette analogie nous conduit à une interprétation simple des modulations du pompage et de la détection; il est en effet normal qu'un pompage continu dans le référentiel du laboratoire devienne modulé dans le référentiel tournant; de même un signal statique dans ce dernier référentiel doit évidemment donner naissance à un signal modulé dans le référentiel du laboratoire ...

La forme (III,C,8) donnée aux équations de BLOCH de l'atome habillé apparaît ainsi beaucoup plus simple que celle de l'équation générale (II,C,18) établie au chapitre précédent : elle limite en effet les calculs à la détermination de $\overline{\omega_0}$ et des coefficients ${}^{(r)}A_{qq}^k$, qui définissent le passage au "référentiel tournant"; elle ramène également un problème à une infinité de dimension dans l'espace des états de l'atome habillé à l'étude beaucoup plus simple d'un système à $(2J+1)$ niveaux seulement; elle met enfin clairement en évidence un certain nombre de propriétés très importantes du signal détecté sur une observable tensorielle atomique dans une expérience quelconque.

3) Propriétés générales du signal détecté sur une observable tensorielle atomique

Il résulte manifestement des équations (III,C,8) et (III,C,9) que

(*) Dans le cas d'un processus de relaxation plus complexe, nous montrons en Appendice IV que l'amortissement des composantes tensorielles réduites $\ll \mathcal{G}^k \gg$ subit, comme leur pompage et leur détection, une modification dépendant des ${}^{(r)}A_{qq}^k$ coefficients opératoriels (voir chapitre V).

le signal détecté sur une observable tensorielle de rang k donnée ne peut dépendre que de l'excitation λ_q^k , des observables tensorielles de même rang k dans le système atomique. En d'autres termes, le couplage du système atomique avec le champ de radiofréquence ne peut en aucun cas coupler entre elles des observables tensorielles d'ordres différents. Ce résultat, évident si l'on traite le champ de radiofréquence classiquement (²²), provient du caractère dipolaire magnétique de l'hamiltonien d'interaction entre l'atome et la radiofréquence et correspond dans notre formalisme quantique au fait que les coefficients opératoriels ${}^{(r)}A_{qq}^k$, ne "mélangent" pas entre eux les ordres tensoriels.

D'autre part, le signal détecté ne dépend pas, toutes choses égales par ailleurs, de la taille du spin sur lequel l'expérience a été réalisée. Ce résultat découle simplement de l'indépendance par rapport à J des coefficients opératoriels qui interviennent dans les équations (III,C,8) et (III,C,9). Il en résulte que les différents effets observables en orientation ($k = 1$) sont les mêmes quel que soit J et identiques à ceux qu'on peut observer sur un spin $1/2$ de même rapport gyromagnétique; de même les différents signaux détectés en alignement ($k = 2$) sont les mêmes que ceux qu'on peut observer sur un spin $J = 1$, etc. Dans la mesure où les méthodes de détection optiques utilisées dans cette étude ne nous permettent de mesurer que l'orientation ou l'alignement du système atomique (⁷²), nous constatons que toutes les propriétés de l'atome habillé pourront s'analyser à l'aide des diagrammes d'énergie d'un spin $1/2$ (figures 7) ou d'un spin 1 (figures 16), même si la taille effective du spin sur lequel l'expérience est réalisée est plus grande ($J = 3/2$ pour l'état fondamental du ^{201}Hg par exemple).

4) Les équations de Bloch dans le cas particulier de l'orientation

Nous terminerons ce chapitre en explicitant les équations (III,C,8) et (III,C,9) dans le cas où l'on s'intéresse à l'évolution de l'orientation atomique ($k = 1$). Il peut alors être utile de mettre ces équations sous une forme légèrement différente qui fait apparaître les composantes du moment cinétique plutôt que celles des opérateurs tensoriels. Appelons $\langle \vec{J} \rangle_0$ le "vecteur de pompage" représentant la valeur stationnaire du spin atomique introduit dans le système atomique sous l'effet des seuls processus de pompage et de relaxation (c'est-à-dire encore en champ statique et de radiofréquence nuls); $\langle \vec{J} \rangle_0$ est relié aux coefficients de pompage λ_q^1 par les relations déduites de (III,B,11) :

$$\lambda_q^1 = \Gamma \alpha_q(J) \langle J_q \rangle_0 \quad (\text{III,C,10})$$

D'autre part, la composante tensorielle réduite $\ll \mathcal{C}_q^1 \gg$ peut s'écrire, d'après (III,C,7) et (III,B,24) :

$$\ll \mathcal{C}_q^1 \gg = \frac{1}{\mathcal{P}_{(n)}} \langle {}^{nn} \mathcal{C}_q^1 \rangle = \frac{1}{\mathcal{P}_{(n)}} \alpha_q(J) \langle {}^{nn} j_q^{\cdot} \rangle = \alpha_q(J) \ll j_q^{\cdot} \gg \quad (\text{III,C,11})$$

en définissant le spin fictif "réduit" de l'atome habillé par la relation analogue à (III,C,7) :

$$\ll \vec{j}^{\cdot} \gg = \frac{1}{\mathcal{P}_{(n)}} \langle {}^{nn} \vec{j}^{\cdot} \rangle \quad (\text{III,C,12})$$

Finalement, compte tenu de (III,C,10, 11 et 12), l'équation pilote du spin fictif se met sous une forme qui dépend explicitement des composantes du vecteur de pompage $\langle \vec{J} \rangle_0$:

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} \ll \vec{j}_q^{\cdot} \gg = \sum_{q',s} \Gamma \langle J_{q'} \rangle_0 \frac{\alpha_{q'}^{\cdot}(J)}{\alpha_q(J)} (s)_{A_{q',q}}^{k*} e^{-is\omega t} \\ - \Gamma \ll \vec{j}_q^{\cdot} \gg + iq\overline{\omega}_0 \ll \vec{j}_q^{\cdot} \gg \end{aligned} \quad (\text{III,C,13})$$

Enfin, l'expression générale du signal détecté sur la composante $\langle J_{q''} \rangle$ de l'orientation atomique se met sous la forme déduite de (III,C,9)

$$\langle J_{q''} \otimes I_{RF} \rangle = \sum_{rq} (r)_{A_{q''q}}^k \frac{\alpha_q(J)}{\alpha_{q''}(J)} \ll \vec{j}_q^{\cdot} \gg e^{ir\omega t} \quad (\text{III,C,14})$$

Nous disposons à présent de l'ensemble des formules générales qui vont nous permettre de calculer explicitement de façon très simple divers types d'expériences réalisables sur l'atome habillé.

C H A P I T R E I V

LE CALCUL DES RESONANCES MAGNETIQUES DE COHERENCE DANS LE FORMALISME DE L'ATOME HABILLE

INTRODUCTION

Nous nous proposons de décrire dans ce chapitre les divers signaux de détection correspondant aux résonances magnétiques de cohérence. Nous avons, au chapitre I (§ I-D-2), donné une interprétation physique de ces résonances en nous limitant à une description semi-qualitative des signaux statiques qui leur sont associés. Le formalisme introduit au chapitre précédent va nous permettre de compléter cette description en calculant explicitement les divers signaux modulés détectés en orientation et en alignement sur ces résonances. Nous présenterons ainsi sous une forme globale et synthétique un ensemble d'effets résonnants dont l'étude n'a été effectuée jusqu'à présent que dans certains cas particuliers et dans des formalismes semi-classiques variés ne permettant pas de mettre clairement en évidence l'unité des phénomènes observés.

Nous commencerons (§ IV-A) par une étude générale du signal résonnant dans laquelle nous indiquerons comme on peut, au voisinage d'un croisement de niveaux de l'atome habillé, isoler les termes séculaires importants qui contribuent à la résonance et mettre en évidence dans l'expression du signal un facteur d'excitation et un facteur de détection dont nous étudierons les propriétés. Nous préciserons ensuite les conditions générales que doit satisfaire le pompage atomique pour qu'on puisse observer ces signaux (§ IV-B); nous montrerons notamment qu'il n'est pas toujours nécessaire, pour les détecter, d'exciter de la cohérence Zeeman dans la vapeur atomique et que certaines résonances magnétiques de cohérence peuvent, contrairement à celles qui ont été étudiées jusqu'à présent, apparaître en pompage purement longitudinal. Nous passerons enfin en revue toutes les résonances magnétiques de cohérence détectables en orientation (§ IV-C) et en alignement (§ IV-D).

Remarque :

Ce chapitre d'application du formalisme de l'atome habillé n'est pas indispensable à la compréhension des chapitres théoriques suivants. Il est donc

possible d'en différer la lecture et de passer directement au chapitre V.

IV-A. ETUDE GENERALE DU SIGNAL RESONNANT

1) Expression générale du signal. Séparation des résonances de croisement et d'anticroisement de niveaux

Les résonances magnétiques de cohérence apparaissent dans des expériences réalisées en pompage atomique continu. On calculera donc les signaux résonnants correspondants en déterminant la solution stationnaire de (III,C,8) avec un terme source λ_q^k indépendant du temps :

$$\langle\langle \mathcal{C}_q^k \rangle\rangle = \sum_{q',s} \lambda_{q'}^k (s)_{A_{q',q}^k}^* \frac{e^{-is\omega t}}{\Gamma - i[s\omega + q\bar{\omega}_0]} \quad (\text{IV,A,1})$$

et en reportant cette solution dans l'expression (III,C,9) du signal ; on obtient alors pour la détection d'une observable tensorielle de rang k :

$$S^{(k)} = \sum_{\substack{qq',q'' \\ s,s'}} \left\{ \lambda_{q'}^k (s)_{A_{q',q}^k}^* \sigma_{q''}^{k*} (s+s')_{A_{q''q}^k} \right\} \frac{e^{is'\omega t}}{\Gamma - i[s\omega + q\bar{\omega}_0]} \quad (\text{IV,A,2})$$

(on a effectué le changement d'indice $r - s = s'$).

Le calcul général que nous venons de faire, qui ne spécifie pas encore les conditions expérimentales dans lesquelles nous nous plaçons (caractéristiques du pompage utilisé, valeur du champ magnétique statique, polarisation de la radiofréquence) s'applique aussi bien aux résonances magnétiques de cohérence qu'aux résonances magnétiques à un ou plusieurs quanta : on voit en effet apparaître sur l'expression (IV,A,2) tous les signaux résonnants associés aux croisements et anticroisements du diagramme d'énergie de l'atome habillé dont nous avons déjà donné une interprétation physique générale (§ I-D et II-D). Les résonances d'anticroisement correspondent sur (IV,A,2) aux extrémums de la fonction $\bar{\omega}_0(\omega_0)$ et aux variations rapides lorsqu'on balaie ω_0 des coefficients opératoriels présents au numérateur de cette expression. Ces résonances ne seront pas étudiées ici, car elles correspondent à des effets classiques dont nous avons d'ailleurs donné une interprétation qualitative au chapitre I. Les modulations observables sur ces résonances sont

également bien connues et correspondent par exemple au phénomène classique de précession du moment transversal à la fréquence ω dans une expérience de résonance magnétique.

Nous nous limiterons donc ici à une étude des résonances de croisement de niveaux dont il est facile de voir qu'elles sont associées aux annulations des dénominateurs d'énergie de l'expression (IV,A,2) : la condition de résonance :

$$s\omega + q\overline{\omega_0} = 0 \quad (\text{IV,A,3})$$

correspond en effet manifestement à l'intersection de deux niveaux $|\overline{m,n}\rangle$ et $|\overline{m-q,n-s}\rangle$ appartenant aux multiplicités \mathcal{E}_n et \mathcal{E}_{n-s} de l'atome habillé. Ces résonances sont d'autre part, comme nous l'avons déjà signalé, beaucoup plus faciles à calculer dans notre formalisme que les transitions à plusieurs quanta car les coefficients opératoriels qui décrivent les contaminations des fonctions d'onde peuvent être généralement considérés comme constants sur le profil de la raie, ce qui n'est pas le cas ^(pour) les résonances d'anticroisement.

Il existe deux cas de polarisation où les calculs peuvent s'effectuer exactement et conduire à une expression rigoureuse du signal détecté. Pour un champ de radiofréquence en polarisation π , (IV,A,2) devient compte tenu de (III,A,9) et (III,B,37) :

$$S^{(k)} = \sum_{q,s,s'} \lambda_q^k J_s \left(q \frac{\omega_1}{\omega} \right) O_q^{k*} J_{s+s'} \left(q \frac{\omega_1}{\omega} \right) \frac{e^{is'\omega t}}{\Gamma - i [s\omega + q\omega_0]} \quad (\text{IV,A,4})$$

Pour un champ de radiofréquence σ_+ , compte tenu de (III,A,12) et (III,B,38), on obtient après un calcul simple :

$$S^{(k)} = \sum_{q,s,s'} \lambda_{q+s}^k R_{q+s,q}^{(k)}(\theta_n) O_{q+s+s'}^{k*} R_{q+s+s',q}^{(k)}(\theta_n) \frac{e^{is'\omega t}}{\Gamma - i [(q+s)\omega - q \sqrt{(\omega_0 - \omega)^2 + \omega_1^2}]} \quad (\text{IV,A,5})$$

Le signal donné par l'expression générale (IV,A,2) ou les solutions particulières (IV,A,4) et (IV,A,5) comporte un très grand nombre de termes et son calcul explicite peut être considérablement simplifié si l'on remarque que seul un petit nombre d'entre eux est généralement susceptible de résonner en un point de croisement.

2) Séparation des termes séculaires

On peut, dans la sommation (IV,A,2), éliminer d'emblée les termes correspondant à $q = 0$, car leurs dénominateurs sont indépendants du champ magnétique et ils ne peuvent donc pas subir de variation résonnante.

D'autre part, les quantités ω et $\bar{\omega}_0$ étant fixées en un point de croisement, la condition (IV,A,3) ne peut être réalisée que pour un couple (ou un petit nombre de couples) des valeurs des indices s et q . Par exemple, dans le cas d'un champ de radiofréquence en polarisation π et d'un signal détecté en orientation ($k = 1$; $q = \pm 1, 0$), la condition de résonance $s\omega + q\omega_0 = 0$ sera remplie au voisinage du croisement de niveaux $\omega_0 = \omega$ si l'on choisit pour s et q les couples de valeurs $s = 1, q = -1$ ou $s = -1, q = 1$. Pour calculer le signal résonnant, on pourra dans (IV,A,2) limiter la sommation sur s et q à ces couples particuliers que nous noterons (s_0, q_0) et négliger la contribution non résonnante de tous les autres termes de la sommation (approximation séculaire).

Le signal détecté sur une modulation donnée $s'\omega$ peut alors se mettre sous la forme d'une somme de contributions correspondant à chacun des couples (s_0, q_0) :

$$S^{(k)}(s'\omega) = \sum_{q_0, s_0} S_{s_0, q_0}^{(k)}(s'\omega) \quad (IV,A,6)$$

avec :

$$S_{s_0, q_0}^{(k)}(s'\omega) = \frac{e^{is'\omega t}}{\Gamma - i[s_0\omega + q_0\bar{\omega}_0]} \left\{ \sum_q \lambda_q^k (s_0) A_{q, q_0}^{k*} \right\} \left\{ \sum_{q''} O_{q''}^{k*} (s_0 + s') A_{q'', q_0}^k \right\} \quad (IV,A,7)$$

La contribution $S_{s_0, q_0}^{(k)}(s'\omega)$ au signal se présente ainsi comme le produit d'un terme modulé et résonnant au croisement de niveaux par deux facteurs d'intensité (entre accolades dans (IV,A,7)) dépendant des coefficients opératoriels et des conditions de pompage et de détection; nous allons étudier ces deux facteurs plus en détail, ce qui nous permettra de retrouver un certain nombre de caractéristiques des signaux résonnants déjà signalées au chapitre II.

3) Le facteur d'excitation

C'est le premier terme entre accolades dans (IV,A,7). Il ne dépend que des conditions du pompage (λ_q^k) et du croisement de niveaux envisagé (par l'inter-

médiaire de s_0, q_0), mais il est par contre indépendant des conditions de la détection (observable \hat{O}_{at} et modulation $s'\omega$ détectées). Compte tenu de (III,B,39), ce facteur peut s'écrire :

$$\sum_{q'} \lambda_{q'}^k (s_0)_{A_{q',q_0}^k}^* = (-1)^{J+m+q_0} \sum_{q'} \frac{\langle \overline{m,n} | \lambda_{q'}^k T_{q'}^k | \overline{m-q_0, n-s_0} \rangle^*}{\langle JJ; m, -m+q_0 | k q_0 \rangle} \quad (IV,A,8)$$

Cette quantité est proportionnelle à l'élément de la matrice hermitique $\lambda_{p'}^{at}$ (donnée par (III,C,3)) entre les deux niveaux $|\overline{m,n}\rangle$ et $|\overline{m-q_0, n-s_0}\rangle$ qui se croisent dans le champ résonnant; pour exciter une résonance de croisements de niveaux de l'atome habillé, il faut donc, quelle que soit l'observable et la modulation détectées, que la matrice de pompage possède un élément de matrice non nul entre deux des niveaux propres de l'atome habillé qui se croisent. Nous retrouvons ainsi dans le formalisme tensoriel ce résultat important, déjà signalé au chapitre II (remarque de la page 93).



4) Le facteur de détection

C'est le deuxième terme entre accolades dans (IV,A,7). Il est totalement indépendant des conditions du pompage et ne dépend que du croisement de niveaux envisagé (s_0, q_0) et des caractéristiques de la détection (observable \hat{O}_{at} et modulation $s'\omega$). On peut l'écrire, comme le facteur d'excitation, sous la forme :

$$\sum_{q''} \hat{O}_{q''}^k (s_0+s')_{A_{q'',q_0}^k} = (-1)^{J+m+q_0} \sum_{q''} \frac{\langle \overline{m,n} | \hat{O}_{q''}^k T_{q''}^k | \overline{m-q_0, n-s_0-s'} \rangle}{\langle JJ; m, -m+q_0 | k q_0 \rangle} \quad (IV,A,9)$$

Ce facteur est donc proportionnel à l'élément de matrice de l'observable détectée \hat{O}_{at} entre deux niveaux $|\overline{m,n}\rangle$ et $|\overline{m-q_0, n-s_0-s'}\rangle$ qui passent au point de croisement à une distance $s'\omega$ correspondant à la fréquence de la modulation détectée. On retrouve ici encore un résultat général établi au chapitre II (remarque, pages 93-94).

IV-B. ETUDE DES CARACTERISTIQUES DU POMPAGE

Comme nous venons de le voir, il est nécessaire, pour observer n'importe quelle résonance de croisement de niveaux sur l'atome habillé de réaliser grâce au pompage atomique une excitation "cohérente" de deux niveaux de l'atome habillé qui se croisent. Nous nous proposons ici d'étudier les propriétés générales que doit satisfaire le pompage pour qu'une telle excitation soit possible. Nous aborderons successivement le cas des signaux détectés en orientation et en alignement.

1) Signaux de croisement de niveaux en orientation : Nécessité d'un pompage transversal

L'excitation d'une résonance de cohérence en orientation nécessite toujours des conditions de pompage atomique transversal. Nous avons signalé ce résultat au chapitre I (§ I-D-2) lorsque nous avons effectué une étude qualitative des résonances de croisement de niveaux d'un spin 1/2. Nous sommes à présent en mesure de donner une démonstration générale de ce résultat, valable quelle que soit la nature du croisement de niveaux étudié (1ère ou 2e espèce) ou encore la modulation s^ω détectée. Nous allons montrer en effet que l'on ne peut pas observer un croisement de niveaux en orientation ($k = 1$), à l'aide d'un pompage longitudinal ($q' = 0$). Il faudrait pour que cela soit possible que la condition découlant de (IV,A,8) :

$$\langle \overline{m-q_0, n-s_0} | T_0^1 | \overline{m, n} \rangle \neq 0 \quad \text{(IV,B,1)}$$

soit remplie. T_0^1 étant proportionnel à J_z cette condition implique que J_z possède un élément de matrice non nul entre deux niveaux de l'atome habillé qui se croisent; or ce résultat est précisément incompatible avec l'existence de ce croisement de niveaux. Nous pouvons le montrer simplement par le raisonnement suivant : l'orthogonalité de deux états propres quelconques $|\overline{m, n}\rangle$ et $|\overline{m', n'}\rangle$ de l'hamiltonien \mathcal{H} permet d'écrire la relation :

$$\langle \overline{m, n} | \mathcal{H} | \overline{m', n'} \rangle = E_{\overline{m, n}} \langle \overline{m, n} | \overline{m', n'} \rangle = E_{\overline{m', n'}} \langle \overline{m, n} | \overline{m', n'} \rangle = 0 \quad \text{(IV,B,2)}$$

valable quel que soit le champ magnétique H_0 . En remarquant que la dérivée de \mathcal{H} par rapport à ω_0 est égale à J_z :

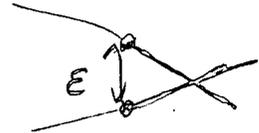
$$\frac{\partial \mathcal{H}}{\partial \omega_0} = J_z \quad (\text{IV,B,3})$$

On obtient immédiatement en dérivant (IV,B,2) la relation :

$$E_{\overline{m',n'}} \left\langle \frac{\partial \overline{m,n}}{\partial \omega_0} \middle| \overline{m',n'} \right\rangle + E_{\overline{m,n}} \left\langle \frac{\partial \overline{m',n'}}{\partial \omega_0} \middle| \overline{m,n} \right\rangle + \langle \overline{m,n} | J_z | \overline{m',n'} \rangle = 0 \quad (\text{IV,B,4})$$

dans laquelle $\left| \frac{\partial \overline{m,n}}{\partial \omega_0} \right\rangle$ et $\left| \frac{\partial \overline{m',n'}}{\partial \omega_0} \right\rangle$ représentent les dérivées des états propres de l'atome habillé par rapport à ω_0 . Si les deux niveaux $|\overline{m,n}\rangle$ et $|\overline{m',n'}\rangle$ se croisent, on a au point de croisement la condition :

$$E_{\overline{m,n}} = E_{\overline{m',n'}} = \overline{E}$$



qui permet de réécrire (IV,B,4) sous la forme :

$$\overline{E} \frac{\partial}{\partial \omega_0} \langle \overline{m,n} | \overline{m',n'} \rangle + \langle \overline{m,n} | J_z | \overline{m',n'} \rangle = 0 \quad (\text{IV,B,5})$$

Le produit scalaire de deux états propres de \mathcal{H} est égal à zéro et indépendant de ω_0 ; il s'ensuit qu'au point de croisement le premier terme de (IV,B,5) est nul et qu'il en est donc de même du second, ce qui démontre bien l'impossibilité de réaliser la condition (IV,B,1). Pour que le facteur d'excitation (IV,A,8) soit différent de zéro, il faut donc que l'on ait $q' \neq 0$ et que le pompage atomique soit transversal. En d'autres termes, une excitation "cohérente" des niveaux d'énergie de l'atome habillé qui se croisent nécessite toujours, en orientation, l'excitation d'une cohérence Zeeman du système atomique.

2) Signaux de croisement de niveaux en alignement

Dans ce cas, la démonstration précédente n'est manifestement plus valable. Deux cas fondamentalement différents se présentent, suivant qu'on étudie un croisement de niveaux de première ou de deuxième espèce.

a) Croisement de 1ère espèce : nécessité d'un pompage transversal

Si le croisement de niveaux est de première espèce, nous savons que les niveaux qui se croisent ne peuvent, dans leur décomposition sur les états propres de \mathcal{H}_0 contenir aucun état commun (cf. I-A-3-a). Si le pompage est longitu-

dinal (λ_p^{at} proportionnel à T_0^2), il est facile de voir que tous les éléments de matrice de λ_p^{at} entre deux niveaux appartenant à un tel croisement sont nuls : en effet, la matrice de pompage, qui est évidemment diagonale par rapport aux photons de radiofréquence, l'est aussi dans ce cas par rapport aux états atomiques; elle est donc diagonale dans la base des états propres de \mathcal{H}_0 et ne peut posséder d'élément de matrice différent de zéro entre deux niveaux de l'atome habillé ne contenant aucun état propre commun. En conséquence, il est nécessaire de réaliser un pompage atomique transversal pour exciter de façon cohérente un tel croisement de niveaux. Remarquons que ce raisonnement s'applique également à l'orientation. La propriété démontrée au paragraphe précédent est cependant plus générale puisqu'elle est valable aussi bien pour les croisements de première que de deuxième espèce, ce qui n'est pas, comme nous allons le voir maintenant, le cas pour les signaux en alignement.

b) Croisements de 2e espèce en alignement : possibilité d'un pompage longitudinal

Si le croisement de niveaux est de 2e espèce, il est, comme nous l'avons signalé au § I-A-3-a, possible de trouver des états propres de \mathcal{H}_0 communs dans la décomposition de deux niveaux de l'atome habillé qui se croisent. Aucune règle de sélection ne s'oppose dans ce cas à l'existence d'un élément de matrice non nul de T_0^2 entre ces deux niveaux. Il est alors possible de réaliser, même en pompage longitudinal, une excitation cohérente de l'atome habillé. En d'autres termes, il n'est pas nécessaire dans ce cas que le pompage soit cohérent dans la base des états propres "non perturbés" de \mathcal{H}_0 pour l'être dans celle de l'hamiltonien total \mathcal{H} de l'atome habillé : on peut donc observer les résonances de cohérence associées aux croisements de niveaux de deuxième espèce de cet atome sans exciter par le pompage des cohérences Zeeman dans le système atomique. Nous analyserons en détail au chapitre V (§ V-A-4-d) le cas de la résonance de croisement de niveaux qui apparaît en alignement, en champ nul, pour une polarisation linéaire de la radiofréquence (figure 16-d) et nous donnerons sur cet exemple précis une interprétation physique de ce résultat qui peut a priori paraître paradoxal dans la mesure où on associe généralement l'observation des résonances de cohérence à une excitation "cohérente" des sous-niveaux Zeeman atomiques.

Remarque :

Les résonances magnétiques de cohérence associées aux croisements de deuxième espèce que nous venons de définir semblent s'apparenter à des résonances magnétiques ordinaires dans la mesure où on peut les observer dans des conditions

de pompage longitudinal ne permettant de préparer que les populations du système atomique non perturbé. Nous devons bien remarquer cependant que les propriétés de ces résonances les distinguent fondamentalement des résonances d'anticroisement : en particulier, comme pour toute résonance de croisement, leur largeur est proportionnelle à la largeur naturelle Γ des niveaux qui se croisent et s'annule lorsque Γ tend vers zéro, ce qui n'est jamais le cas pour les résonances magnétiques ordinaires qui subissent toujours un élargissement supplémentaire proportionnel à la force de l'anticroisement auquel elles sont associées.

IV-C. ETUDE DES RESONANCES MAGNETIQUES DE COHERENCE DETECTEES EN ORIENTATION

Nous nous proposons dans ce paragraphe de calculer explicitement les divers signaux résonnants de croisement de niveaux détectés en orientation, tels qu'ils résultent des formules (IV,A,2), (IV,A,4) ou (IV,A,5) dans lesquelles on fait $k = 1$. Le pompage atomique devant être, dans ces conditions, toujours transversal, nous le supposerons orienté le long de Ox et nous mettrons le terme source λ_q^1 sous la forme déduite de (III,C,10) :

$$\begin{cases} \lambda_{\pm 1}^1 = \Gamma \alpha_{\pm 1}(J) \langle J_x \rangle > 0 \\ \lambda_0^1 = 0 \end{cases} \quad (\text{IV,C,1})$$

Nous allons passer successivement en revue les divers cas de polarisation de la radio-fréquence en rappelant qu'a priori, les signaux résonnants susceptibles d'apparaître en orientation doivent être, quelle que soit la taille effective du spin, identiques à ceux que l'on obtiendrait dans le cas $J = 1/2$. Nous vérifierons en particulier sur les formules obtenues dans chaque cas de polarisation que les résonances observées ne peuvent se situer que dans les champs magnétiques où il apparaît un croisement de niveaux dans le diagramme d'énergie d'un spin $1/2$, à l'exclusion de tous les croisements de type "non entiers" tels que $\omega_0 = p\omega/q$ qui apparaissent dans les diagrammes dès que $J > 1/2$.

1) Champ de radiofréquence tournant en polarisation σ^+

L'expression du signal s'obtient dans ce cas simplement en faisant $k = 1$ dans (IV,A,5).

a) Position des résonances observables

L'annulation du dénominateur d'énergie dans (IV,A,5) s'exprime par la condition :

$$(q+s)\omega = q \sqrt{(\omega_0 - \omega)^2 + \omega_1^2} \quad (\text{IV,C,2})$$

Cette annulation ne conduira à un effet résonnant lorsqu'on varie ω_0 que si les quantités q et $q+s$, qui doivent être comprises entre -1 et $+1$, sont simultanément différentes de zéro. On ne conservera donc dans (IV,A,5) que les termes séculaires pour lesquels on a :

$$q_0 + s_0 = q_0 \neq \pm 1$$

soit encore :

$$q_0 = \pm 1 ; \quad s_0 = 0 \quad (\text{IV,C,3})$$

Les croisements observables correspondront donc, puisque $s_0 = 0$, aux deux points d'intersection de deux niveaux appartenant à la même multiplicité de l'atome habillé. Ces points se situent dans les champs ω_0 vérifiant l'équation (III,A,14) :

$$\omega_0 = \omega \pm \sqrt{\omega^2 - \omega_1^2}$$

Nous retrouvons ainsi de façon générale le résultat établi au § I-D-2 à propos des signaux statiques associés à ces résonances sur un spin $1/2$.

b) Les modulations détectées

La quantité $q+s+s'$, qui représente l'ordre de la composante de l'orientation détectée (cf. équation (IV,A,5)) doit être, puisque $k = 1$, comprise entre -1 et $+1$. Il s'ensuit, compte tenu de (IV,C,3), ($q+s = \pm 1$), que s' est nécessairement compris entre -2 et $+2$: les seules modulations détectables correspondent donc aux fréquences $\pm 2\omega$, $\pm\omega$ et à la fréquence 0 (signal statique). D'autre part, les modulations impaires $\pm\omega$ ne peuvent être détectées que sur une observable longitudinale (on a en effet nécessairement $q+s+s' = 0$ si $s' = \pm 1$); enfin les modulations "paires" ($\pm 2\omega$ et signal statique) correspondent à une détection transversale ($q+s+s' = \pm 1$ si

$s' = 0$, ou ± 2).

c) Intensité des signaux résonnants

Le calcul des signaux résonnants s'effectue immédiatement en ne gardant que les termes séculaires de l'expression (IV,A,5) et en remplaçant les éléments de matrice de $R^{(1)}$ par leur expression en fonction de l'angle θ (voir Appendice IID). Pour fixer les idées, nous supposons que les modulations 0 et 2ω sont détectées sur le moment transversal $\langle J_x \rangle$ et la modulation ω sur le moment longitudinal $\langle J_z \rangle$. On obtient alors simplement, compte tenu de (IV,A,5), (III,B,11) et (IV,C,1) :

- Signal statique :

$$S(0) = \langle J_x \rangle_0 \frac{(1+\cos \theta)^2}{4} \frac{\Gamma^2}{\Gamma^2 + [\omega - \sqrt{(\omega_0 - \omega)^2 + \omega_1^2}]^2} \quad (\text{IV,C,4})$$

- Signal modulé à 2ω :

$$S(2\omega) = - \langle J_x \rangle_0 \frac{\sin^2 \theta}{4} \Gamma \left\{ \frac{\Gamma \cos 2\omega t + [\omega - \sqrt{(\omega_0 - \omega)^2 + \omega_1^2}] \sin 2\omega t}{\Gamma^2 + [\omega - \sqrt{(\omega_0 - \omega)^2 + \omega_1^2}]^2} \right\} \quad (\text{IV,C,5})$$

- Signal modulé à ω :

$$S(\omega) = - \langle J_x \rangle_0 \frac{1}{2} (1+\cos \theta) \sin \theta \Gamma \left\{ \frac{\Gamma \cos \omega t + [\omega - \sqrt{(\omega_0 - \omega)^2 + \omega_1^2}] \sin \omega t}{\Gamma^2 + [\omega - \sqrt{(\omega_0 - \omega)^2 + \omega_1^2}]^2} \right\} \quad (\text{IV,C,6})$$

Rappelons que dans ces expressions θ est défini par la relation (I,C,6).

Pour calculer l'intensité d'une résonance correspondant à une valeur donnée de ω , il faut donc déterminer la position du croisement associée à cette valeur du couplage (équation (III,A,14)), ce qui permet d'obtenir la valeur du paramètre θ à reporter dans les formules (IV,C,4), (IV,C,5) et (IV,C,6). Les signaux modulés apparaissent comme une somme de courbes d'absorption et de dispersion de Lorentz en quadrature. Rappelons enfin que lorsque l'intensité de la radiofréquence augmente, les deux résonances viennent se rejoindre en $\omega_0 = \omega$ et disparaissent lorsque $\omega_1 > \omega$. Avant de se rejoindre, elles subissent un élargissement dû à la diminution de la pente des niveaux qui se croisent. Si l'on veut calculer dans cette région la forme du signal, on ne peut plus séparer les contributions des deux résonances ni négliger la variation du paramètre θ sur le profil de la raie. Ces résonances ont été étudiées en détail dans la thèse de 3e cycle de M. LE DOURNEUF (⁷³). Nous reviendrons sur l'étude expérimentale effectuée dans cette thèse au chapitre IX.

2) Champ de radiofréquence en polarisation π

L'expression du signal résonnant s'obtient alors en faisant $k = 1$ dans (IV,A,4).

a) Position des résonances observables

L'annulation du dénominateur d'énergie dans (IV,A,4) s'exprime par la condition :

$$s\omega + q\omega_0 = 0$$

q étant égal à ± 1 , on observera un spectre complet de résonances $\omega_0 = \pm s\omega$. Ce spectre correspond bien à l'ensemble des croisements de niveaux observables avec cette polarisation de la radiofréquence dans le diagramme d'énergie d'un spin 1/2 (voir figure 7-a).

b) Modulations détectées

Aucune condition ne limite, sur l'expression (IV,A,4), l'ordre de la modulation détectée : tous les harmoniques $s'\omega$ de la radiofréquence seront donc observables. Remarquons cependant que la condition $q \neq 0$ impose à la détection d'être transversale, quel que soit l'harmonique observé.

c) Intensité des signaux résonnants

Supposons pour fixer les idées une détection du moment cinétique le long de Ox. On obtient alors immédiatement l'expression du signal modulé à la fréquence $s'\omega$ et résonnant dans le champ $\omega_0 = s\omega$ sous la forme :

$$S = \langle J_x \rangle_0 \left\{ \begin{aligned} & \left[J_s \left(\frac{\omega_1}{\omega} \right) J_{s+s'} \left(\frac{\omega_1}{\omega} \right) + J_s \left(\frac{\omega_1}{\omega} \right) J_{s-s'} \left(\frac{\omega_1}{\omega} \right) \right] \frac{\Gamma^2 \cos s' \omega t}{\Gamma^2 + (s\omega + \omega_0)^2} \\ & - \left[J_s \left(\frac{\omega_1}{\omega} \right) J_{s+s'} \left(\frac{\omega_1}{\omega} \right) - J_s \left(\frac{\omega_1}{\omega} \right) J_{s-s'} \left(\frac{\omega_1}{\omega} \right) \right] \frac{\Gamma(\omega_0 + s\omega) \sin s' \omega t}{\Gamma^2 + (s\omega + \omega_0)^2} \end{aligned} \right\} \quad (\text{IV,C,7})$$

Nous retrouvons ainsi l'expression classique des résonances paramétriques ⁽¹⁵⁾⁽¹⁷⁾⁽¹⁸⁾ qui apparaissent sur des signaux en quadrature prenant la forme de courbes d'absorption et de dispersion de Lorentz. Il est clair d'après (IV,C,7) que ces signaux ne subissent aucun déplacement ni élargissement radiatif, quelle que soit l'intensité de la radiofréquence. Leurs propriétés ont été étudiées en détail par N. POLONSKY ⁽⁴⁷⁾. Nous rappellerons brièvement les vérifications expérimentales qui ont été faites de la formule (IV,C,7) au chapitre IX.

3) Champ de radiofréquence en polarisation σ

Le calcul exact des signaux résonnants n'est plus possible dans ce cas de polarisation; les coefficients de couplage opératoriels -ainsi que l'énergie $\overline{\omega_0}$ - ne peuvent en effet être déterminés que par un calcul de perturbation. Ce calcul se ramène d'ailleurs à celui des niveaux d'énergie et des états propres de l'atome habillé auxquels les quantités $\overline{\omega_0}$ et ${}^{(r)}A_{qq}^1$, sont reliées par les expressions (III,A,4) et (III,B,39). Sans entrer dans les détails de ces calculs, nous sommes en mesure de déduire de la formule générale (IV,A,2) l'ensemble des propriétés des résonances de cohérence observables avec cette polarisation de la radiofréquence.

a) Position des résonances observables

L'énergie $\overline{\omega_0}$ représentant la séparation des niveaux dans une multiplicité de l'atome habillé est dans ce cas de polarisation (cf. figure 7-b) toujours inférieure à ω . q étant égal à ± 1 , la condition de résonance (IV,A,3) ne peut être réalisée que si l'indice s prend la valeur $s_0 = 0$. Cette condition se réduit alors à :

$$\overline{\omega_0}(\omega_0) = 0 \quad (\text{IV,C,8})$$

et les résonances observables correspondent aux différents points d'intersection des niveaux de chaque multiplicité, au voisinage des champs tels que $\omega_0 = 2p\omega$: on retrouve le spectre pair de résonances associées à l'ensemble des croisements de niveaux apparaissant dans ces conditions sur le diagramme d'énergie d'un spin 1/2 (cf. figure 7-b).

Au voisinage de chacun de ces points de croisement, si l'intensité de la radiofréquence n'est pas trop importante, on peut effectuer un développement limité de $\overline{\omega_0}$ autour de $\omega_0 - 2p\omega$ et exprimer la condition de résonance (IV,C,8) sous la forme :

$$\overline{\omega_0}(\omega_0) = \omega_0 - 2p\omega + \delta_{2p} \left(\frac{\omega_1}{\omega}\right)^2 = 0 \quad (\text{IV,C,9})$$

δ_{2p} étant le coefficient numérique de déplacement du point de croisement calculé en Appendice II.

b) Modulations détectées

Elles dépendent du facteur de détection (formule (IV,A,9)) qui, pour le terme séculaire $s_0 = 0$, $q_0 = \pm 1$, se met sous la forme :

$$\sum_{q''} \rho_{q''}^{k*} (s') A_{q'' \pm 1}^1$$

On peut montrer simplement à partir des règles de sélection satisfaites par le couplage V pour cette polarisation de la radiofréquence (voir Appendice IV) que les coefficients opératoriels $(s') A_{q'' \pm 1}^1$ qui apparaissent dans cette expression ne sont différents de zéro que si les indices q'' et s' sont de parités opposées : ainsi si s' est pair, q'' doit être impair, c'est-à-dire nécessairement égal à ± 1 et inversement si s' est impair, q'' doit être pair, donc égal à zéro. En d'autres termes, les modulations paires sont observées en détection transversale ($q'' = \pm 1$) et les modulations impaires en détection longitudinale ($q'' = 0$). Remarquons que le même résultat a déjà été obtenu pour la polarisation σ_+ (§ IV-C-1). Dans ce dernier cas cependant, le nombre de modulations détectées était limité alors que pour un champ de polarisation σ l'ordre de modulation s' peut prendre n'importe quelle valeur.

c) Intensité des signaux résonnants

L'expression du signal résonnant s'obtient au voisinage d'un croisement $\omega_0 = 2p\omega$ en ne conservant que les termes séculaires de (IV,A,2) et en y remplaçant $\bar{\omega}_0$ par son expression approchée (IV,C,9) :

$$S = \sum_{q_0, q' \neq 0} \sum_{q'', s'} \lambda_{q'}^k (0) A_{q', q_0}^{1*} (s') A_{q'', q_0}^1 \frac{e^{is'\omega t}}{\Gamma - iq_0 [\omega_0 - 2p\omega + \delta_{2p} (\frac{\omega_1}{\omega})^2]} \quad (IV,C,10)$$

On montre en Appendice IV que les coefficients $(0) A_{q', \pm 1}^{1*}$ et $(s') A_{q'', \pm 1}^1$ qui interviennent dans cette expression (rappelons que $q_0 = \pm 1$) sont au voisinage du croisement $\omega_0 = 2p\omega$ d'un ordre minimum $2p$ et $|2p - s'|$ en ω_1/ω . On peut alors mettre le signal modulé à $s'\omega$ et résonnant au voisinage du champ $\omega_0 = 2p\omega$ sous la forme générale :

$$S = \Gamma \langle J_x \rangle_0 \left(\frac{\omega_1}{\omega}\right)^{|2p| + |2p - s'|} \text{Re} \left\{ \frac{I_{ps'} e^{is'\omega t}}{\Gamma - i[\omega_0 - 2p\omega + \delta_{2p} (\frac{\omega_1}{\omega})^2]} \right\} \quad (IV,C,11)$$

$I_{ps'}$, est un facteur numérique d'intensité entièrement calculable si on connaît les fonctions d'onde de l'atome habillé au voisinage du croisement de niveaux. Il est clair, d'après (IV,C,11), que le signal le plus important pour une résonance donnée apparaît sur la modulation paire $s'\omega = 2p\omega$ la plus proche de la fréquence de Larmor ω_0 dans le champ résonnant. Le signal statique étudié au § I-D-2 est d'ordre deux fois plus élevé en ω_1/ω . Nous avons étudié en détail les propriétés de toutes ces résonances ⁽²²⁾ et vérifié expérimentalement les prévisions de la formule (IV,C,11) (intensités, déplacements, largeur des signaux, etc. voir chapitre IX).

Remarque :

La formule (IV,C,11) n'est valable qu'à la limite des couplages faibles ($\frac{\omega_1}{\omega} < 1$). Si la radiofréquence est intense, des effets de saturation importants apparaissent sur les résonances, dont l'expression (IV,C,11) ne rend pas compte; nous avons vu en particulier au § I-D-2 que les résonances se déplacent avec les croisements auxquels elles sont associées jusqu'en champ nul où elles disparaissent en se confondant avec la résonance $\omega_0 = 0$. La largeur des signaux résonnants, qui sur l'expression (IV,C,11) est indépendante de ω_1 , augmente notablement avant que la résonance ne disparaisse, car la pente des niveaux associés au croisement diminue alors fortement (voir figure n° 8). La résonance en champ nul ($p = 0$) voit également sa largeur augmenter de façon considérable à ce moment. Nous décrirons ce dernier effet en détail au chapitre suivant (effet Hanle de l'atome habillé).

Indiquons, pour achever ce paragraphe, que si le champ de radiofréquence est polarisé linéairement dans une direction quelconque, on n'observe plus en orientation qu'une résonance associée au croisement de niveaux en champ nul qui seul subsiste dans ce cas sur un spin 1/2 (voir figure 7-c). Nous n'insisterons pas davantage pour l'instant sur cette résonance que nous étudierons en détail au chapitre suivant consacré à l'atome habillé en champ statique faible. Nous avons rappelé sur la figure 18 l'aspect du spectre des résonances magnétiques de cohérence en orientation pour les diverses polarisations de la radiofréquence tel qu'il résulte de l'étude que nous venons d'effectuer.

IV-D. ETUDE DES RESONANCES MAGNETIQUES DE COHERENCE DETECTEES EN ALIGNEMENT

En alignement, seules peuvent être observées, quelle que soit la taille effective du spin, les résonances associées à des croisements de niveaux apparaissant sur le diagramme d'énergie d'un spin $J = 1$. Ainsi, en plus des croisements déjà observables en orientation, on pourra détecter les résonances correspondant à un spectre "demi-entier" $\omega_0 = (2p+1)\omega/2$. Nous allons indiquer rapidement, sans détailler les calculs comme nous l'avons fait pour l'orientation, les divers signaux résonnants correspondant à chaque polarisation de la radiofréquence.

1) Champ de radiofréquence tournant en polarisation σ^+

Les croisements de niveaux étant dans ce cas de polarisation de première espèce (voir § III-A-4-b), le pompage atomique doit être transversal.

a) Position des résonances observables

La condition de résonance sera toujours donnée par (IV,C,2), mais les indices q et $q+s$ peuvent à présent prendre les valeurs ± 1 et ± 2 ; plusieurs cas vont donc se présenter :

- (α) • Si on a $q = q+s = \pm 2$
ou encore $q = q+s = \pm 1$
la condition (IV,C,2) s'écrira :

$$\omega = \sqrt{(\omega_0 - \omega)^2 + \omega_1^2}$$

ce qui correspond aux deux croisements de niveaux

$$\omega_0 = \omega \pm \sqrt{\omega^2 - \omega_1^2}$$

qui, en couplage faible, tendent vers $\omega_0 = 0$ et $\omega_0 = 2\omega$. Il s'agit donc des mêmes croisements que ceux qu'on observe en orientation.

- (β) • Si on a $q = \pm 1, q+s = \pm 2$
la condition de résonance devient

$$2\omega = \sqrt{(\omega_0 - \omega)^2 + \omega_1^2}$$

ce qui correspond aux deux croisements de niveaux "entiers"

$$\omega_0 = \omega \pm \sqrt{4\omega^2 - \omega_1^2}$$

qui, en couplage faible, tendent vers $\omega_0 = -\omega$ et $\omega_0 = 3\omega$.

- (γ) • Enfin, si on a $q = \pm 2, q+s = \pm 1$
la condition de résonance

$$\omega = 2 \sqrt{(\omega_0 - \omega)^2 + \omega_1^2}$$

correspond aux deux croisements de niveaux "demi-entiers"

$$\omega_0 = \omega \pm \sqrt{\frac{\omega^2}{4} - \omega_1^2}$$

qui, en couplage faible, tendent vers $\omega_0 = \omega/2$ et $\omega_0 = 3\omega/2$.

Polarisation de la
radiofréquence

Spectre des résonances magnétiques de cohérence
en orientation

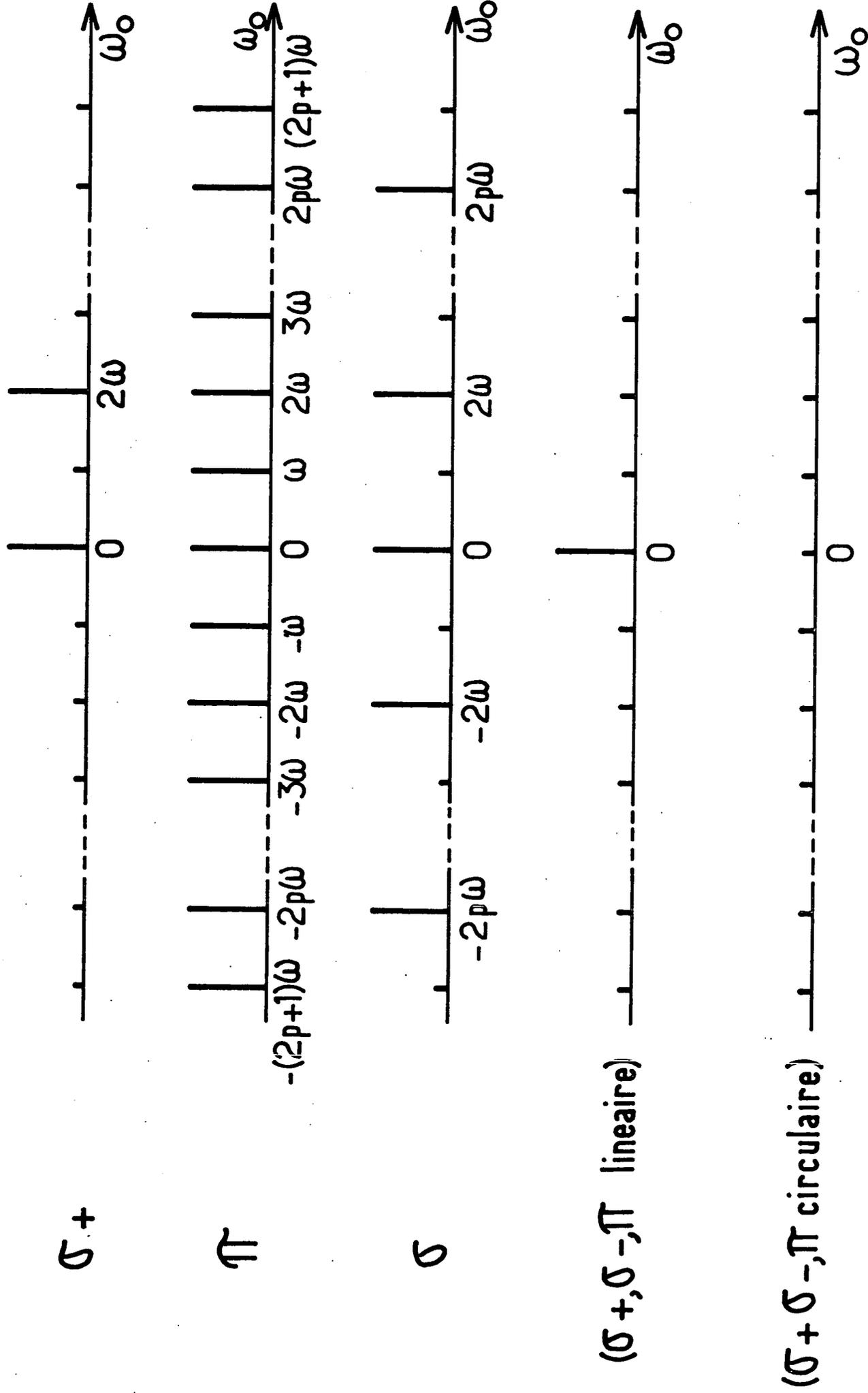


Fig. 18

b) Les modulations observables

Dans la formule (IV,A,5), l'indice $q+s+s'$ doit être compris entre -2 et +2 et $q+s$ est égal à ± 1 ou ± 2 ; s' peut donc varier de -4 à +4 : on observe ainsi les modulations jusqu'à l'harmonique 4 de la radiofréquence.

Le calcul exact des signaux résonnants s'effectue aisément à partir de (IV,A,5) et de l'expression des éléments de matrice de rotation d'un spin $k = 2$ (voir Appendice III). Ce calcul a d'ailleurs été effectué en détail, dans le formalisme classique, par SERIES et al (¹⁶) qui ont étudié les propriétés des résonances en alignement observées dans l'état excité 6^3P_1 du ¹⁹⁸Hg.

2) Champ de radiofréquence en polarisation π

Le signal est donné par l'expression (IV,A,4) avec $k = 2$. Le pompage doit encore être transversal car les croisements de niveaux sont toujours dans ce cas de première espèce (voir § III-A+4-b). L'indice q pouvant prendre à présent les valeurs ± 1 et ± 2 , on observera un spectre "entier" $\omega_0 = p\omega$ de résonances (correspondant à $q = \pm 1$ ou à $q = \pm 2$ et s pair) et un spectre "demi-entier" $\omega_0 = (2p+1)\omega/2$ (correspondant à $q = \pm 2$ et s impair). Chaque résonance peut être détectée sur toutes les modulations $s'\omega$. La détection doit toujours être transversale car q est différent de zéro. Tout comme en orientation, il apparaît clairement d'après (IV,A,4) que les résonances ne doivent subir aucun déplacement ni élargissement radiatif.

3) Champ de radiofréquence en polarisation σ

Les signaux résonnants se calculent dans ce cas en faisant $k = 2$ dans (IV,A,2), les quantités $\overline{\omega_0}$ et ${}^{(r)}A_{qq}^2$, devant être déterminées par des méthodes d'approximation. Nous nous contenterons d'indiquer qu'au spectre pair $\omega_0 = 2p\omega$ de résonances déjà présentes en orientation s'ajoute un spectre "demi-entier" de résonances $\omega_0 = (2p+1)\omega/2$. Ces dernières résonances sont associées à des croisements de niveaux entre multiplicités différentes de l'atome habillé et se déplacent, pour des valeurs croissantes de p , alternativement vers les champs forts et les champs faibles lorsque l'intensité de la radiofréquence augmente. Les sens de ces déplacements apparaissent clairement sur le diagramme de la figure 16-c. Toutes les résonances s'observent sur tous les harmoniques $s'\omega$ de la radiofréquence.

Remarquons enfin que les signaux du spectre "demi-entier" correspondent pour cette polarisation de la radiofréquence à des croisements de première espèce (voir § III-A-4-b) et nécessitent un pompage atomique transversal. Par contre, les résonances du spectre pair sont associées à des croisements de deuxième espèce et pourraient être observées en pompage longitudinal.

4) Champ de polarisation cohérente quelconque

Dans ce cas, les croisements de niveaux entiers disparaissent en général tous (figures 16-d et 16-e), sauf le croisement en champ nul dans le cas d'une polarisation linéaire de la radiofréquence (figure 16-d). On n'observera donc en alignement que les résonances du spectre demi-entier et éventuellement la résonance de croisement de niveaux en champ nul. Tous les croisements devenant dans ce cas de deuxième espèce (§ III-A-4-b), les signaux pourront s'observer en pompage longitudinal.

La figure 19 résume l'aspect du spectre de résonance observé en alignement pour les diverses polarisations de la radiofréquence, tel qu'il résulte de l'étude que nous venons d'entreprendre. Nous décrirons, au chapitre IX, les vérifications expérimentales que nous avons faites de tous ces résultats théoriques.

Polarisation de la
radiofréquence

Spectre des résonances magnétiques de cohérence
en alignement

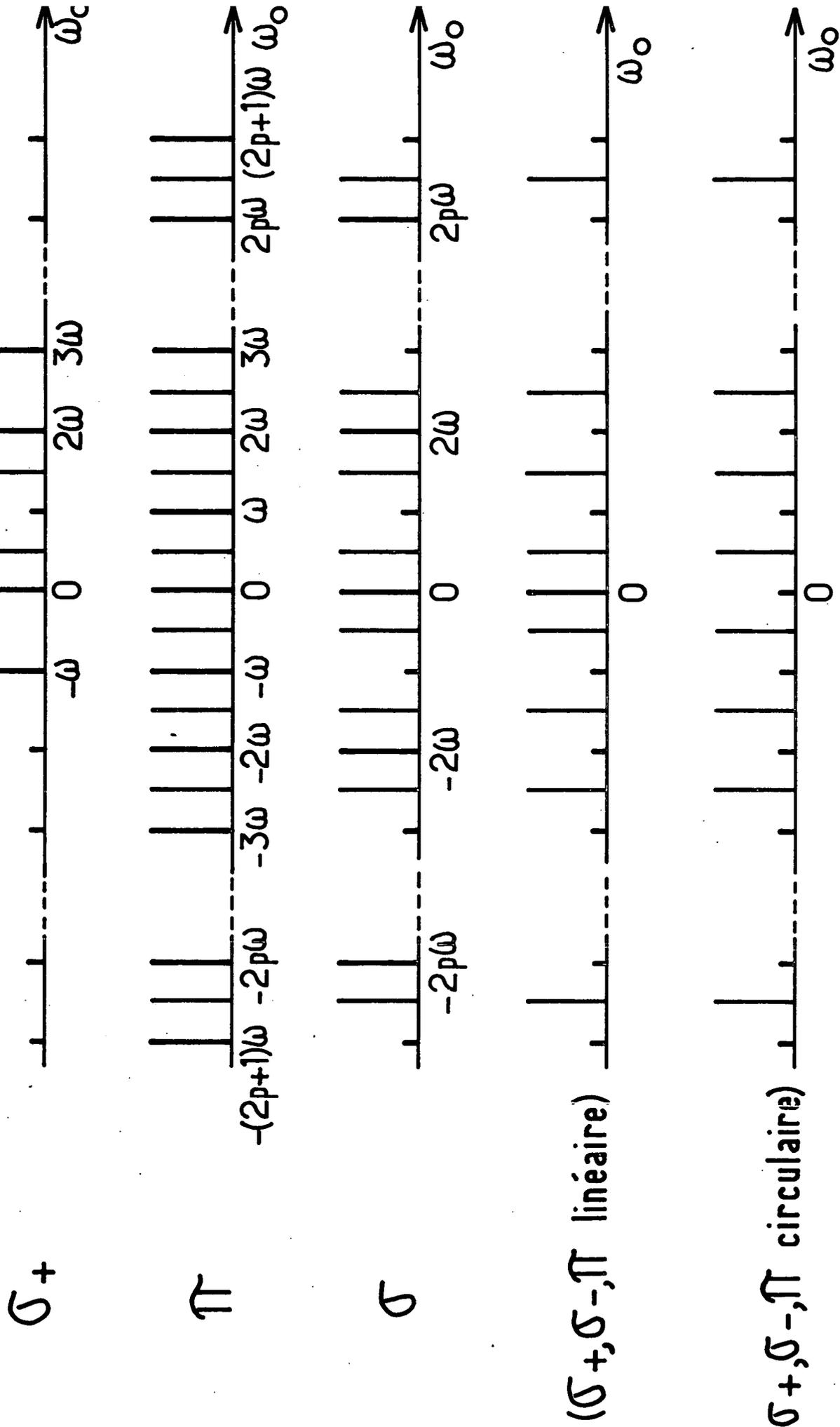


Fig. 19

C H A P I T R E V

- LES PROPRIETES MAGNETIQUES DE L' ATOME HABILLE EN CHAMP STATIQUE FAIBLE -

INTRODUCTION

Nous avons vu au chapitre I (§ I-D-3) que les niveaux d'énergie d'un atome interagissant avec des photons de radiofréquence subissaient, en champ statique faible ($\omega_0 \ll \omega$), une perturbation dont la nature est fondamentalement différente suivant que le champ est polarisé linéairement ou non.

Dans le premier cas, la pente des niveaux en fonction du champ statique H_0 peut, si l'intensité de la radiofréquence est suffisamment grande, différer profondément de celle correspondant à l'atome libre; pour certaines valeurs et directions de \vec{H}_1 , elle peut même s'annuler. De plus, nous verrons que les propriétés magnétiques de l'atome habillé en champ faible ont en général un caractère anisotrope : la fréquence de précession de Larmor dans un champ \vec{H}_0 donné dépend de l'angle entre ce champ et le champ de radiofréquence; d'autre part, cette précession est en général elliptique, et non plus circulaire comme sur l'atome libre. Ces propriétés sont naturellement liées au fait que le champ habillant introduit une direction privilégiée dans l'espace et reflètent le caractère tensoriel du facteur de Landé de l'atome habillé.

Pour mener à bien le calcul de tous ces effets (§ V-A), nous utiliserons la méthode opératorielle développée au chapitre III. Cette méthode est particulièrement commode dans la mesure où elle tient compte simultanément de la modification, sous l'effet du couplage avec la radiofréquence, des énergies et des états propres du système atomique. Elle ramène l'étude de l'atome habillé à celle d'un atome libre évoluant dans un champ magnétique "fictif" se déduisant du champ réel par une simple affinité. Cette méthode opératorielle permet également d'établir simplement les "équations de Bloch" de l'atome habillé en champ faible, à partir desquelles on peut aisément interpréter les différents résultats expérimentaux (effet Hanle, résonance magnétique de l'atome habillé, etc.).

Ayant ainsi étudié en détail les propriétés d'un niveau atomique couplé à un champ de radiofréquence linéaire intense et non résonnant, nous abordons au § V-B le cas où le champ de radiofréquence interagit simultanément avec deux espè-

ces atomiques différentes : nous montrons comment la modification du facteur de Landé de deux atomes distincts conduit à une égalisation, pour certaines valeurs de l'amplitude du champ habillant, de leurs fréquences de Larmor (supposées différentes sur les atomes libres) et rend ainsi possible une "circulation de cohérence Zeeman" entre les deux espèces atomiques. Ici encore, le formalisme opératoire de l'atome habillé permet de rendre compte assez simplement de ces divers phénomènes.

Dès que la polarisation de la radiofréquence n'est plus linéaire, la dégénérescence des niveaux d'énergie de l'atome habillé en champ statique nul est levée (§ I-D-3). Il n'est plus possible alors de décrire les propriétés atomiques en champ faible à l'aide d'un tenseur de Landé et le comportement du système devient complètement différent de celui que nous décrivons aux § V-A et V-B. En particulier, comme nous l'avons déjà signalé au § I-D-3-c, l'effet d'un champ de radiofréquence polarisé circulairement peut, en champ \vec{H}_0 faible, être décrit comme celui d'un champ statique \vec{H}_f "équivalent" agissant sur le niveau atomique. Nous préciserons au § V-C les conditions de validité et les limites de cette équivalence et montrerons comment elle permet de rendre compte simplement de différents effets observés sur le système atomique.

V-A. PROPRIETES MAGNETIQUES D'UN ATOME HABILLE, EN CHAMP STATIQUE FAIBLE, PAR DES PHOTONS DE RADIOFREQUENCE POLARISES LINEAIREMENT (*)

Nous adopterons dans ce paragraphe comme axe de quantification du système, non pas la direction du champ statique \vec{H}_0 (comme c'était le cas aux chapitres précédents), mais celle du champ de radiofréquence habillant supposé orienté le long de Oz. H_0 étant faible et H_1 pouvant être très intense, c'est en effet cette direction qui doit être privilégiée si l'on veut décrire simplement les propriétés du système. Nous commencerons par rappeler les caractéristiques de l'atome habillé en champ \vec{H}_0 nul (§ V-A-1); puis nous traiterons le couplage Zeeman avec le champ statique comme une perturbation levant la dégénérescence dans chaque multiplicité de l'atome habillé, ce qui nous amènera à introduire et à étudier le tenseur de Landé de cet atome (§ V-A-2) à partir duquel nous pourrions calculer simplement sa précession de Larmor (§ V-A-3). Nous décrirons enfin, grâce aux équations de Bloch de l'atome habillé, les diverses expériences qui permettent de vérifier les propriétés prévues par la théorie (§ V-A-4).

(*) Voir également référence (³⁰).

1) L'atome habillé en champ statique nul

L'hamiltonien \mathcal{H}'_0 de l'atome habillé en champ nul s'écrit :

$$\mathcal{H}'_0 = \omega a^\dagger a + \lambda J_z (a + a^\dagger) \quad (V,A,1)$$

Ses niveaux d'énergie et ses états propres sont identiques à ceux de l'atome habillé par des photons de radiofréquence de polarisation π lorsqu'on fait tendre ω_0 vers 0 : ils se groupent donc en multiplicités \mathcal{E}_n distantes de ω , $(2J+1)$ fois dégénérées. Les projections des opérateurs tensoriels atomiques dans ces multiplicités sont simplement données par la formule (III,B,34). En particulier, le moment cinétique \vec{J} , proportionnel à l'opérateur tensoriel d'ordre un (cf. équation (III,B,11)), s'exprime en fonction du moment fictif \vec{j} suivant la relation :

$${}^{nn}J_q = J_0 \left(q \frac{\omega_1}{\omega} \right) {}^{nn}j_q \quad (V,A,2)$$

qui, explicitée pour les différentes composantes, s'écrit :

$${}^{nn}J_z = {}^{nn}j_z ; \quad {}^{nn}J_{\pm} = J_0 \left(\frac{\omega_1}{\omega} \right) {}^{nn}j_{\pm} \quad (V,A,3)$$

Les équations (V,A,3) montrent que les éléments de matrice du moment cinétique entre états propres de l'atome habillé en champ nul sont différents des éléments de matrice correspondants du moment cinétique d'un atome libre : on passe en effet de ${}^{nn}\vec{j}'$ à ${}^{nn}\vec{j}$ par une affinité d'axe Oz et de rapport $J_0 \left(\frac{\omega_1}{\omega} \right)$. Nous verrons que ce résultat est à l'origine des propriétés particulières d'anisotropie du moment magnétique de l'atome habillé.

2) Le tenseur de Landé de l'atome habillé en champ faible

a) Hamiltonien Zeeman du niveau atomique en champ faible

En présence d'un champ magnétique \vec{H}_0 , l'hamiltonien Zeeman du niveau atomique est donné par la relation :

$$\mathcal{H}_{at} = -g_\alpha \mu_B \vec{J} \cdot \vec{H}_0$$

(*) - Voir l'annexe B, équation (B,1).

Nous supposons ici le champ magnétique suffisamment faible pour que \mathcal{H}_{at} puisse être considéré comme une perturbation de l'hamiltonien \mathcal{H}'_0 ($\omega_0 \ll \omega$) : la levée de dégénérescence sous l'effet du champ magnétique des différentes multiplicités de l'atome habillé \mathcal{E}_n s'obtiendra donc au premier ordre en diagonalisant la projection ${}^{nn}\mathcal{H}_{\text{at}}$ de \mathcal{H}_{at} dans \mathcal{E}_n :

$${}^{nn}\mathcal{H}_{\text{at}} = -g_\alpha \mu_B \vec{H}_0 \cdot {}^{nn}\vec{j} \quad (\text{V,A,4})$$

Compte tenu des relations (V,A,3), (V,A,4) s'écrira en fonction des composantes du champ et du moment cinétique fictif :

$${}^{nn}\mathcal{H}_{\text{at}} = -g_\alpha \mu_B \left[H_{\text{oz}} {}^{nn}j_z + H_{\text{ox}} {}^{nn}j_x J_0\left(\frac{\omega_1}{\omega}\right) + H_{\text{oy}} {}^{nn}j_y J_0\left(\frac{\omega_1}{\omega}\right) \right] \quad (\text{V,A,5})$$

Les niveaux d'énergie varient linéairement en fonction de H_0 , ce qui permet de définir un facteur de Landé de l'atome habillé. Il apparaît cependant que ce facteur de Landé est anisotrope : les valeurs propres des composantes de ${}^{nn}\vec{j}$ étant, par définition, les mêmes que celles d'un moment cinétique ordinaire, on voit aisément que ce facteur de Landé est égal à celui de l'atome libre, g_α , si \vec{H}_0 est parallèle à Oz (radiofréquence en polarisation π ; cf. figure 7-a), à $g_\alpha J_0\left(\frac{\omega_1}{\omega}\right)$ si H_0 est perpendiculaire à Oz. On retrouve ainsi le résultat annoncé au chapitre I (formule (I,C,11)) et on justifie a posteriori la description donnée des niveaux d'énergie au voisinage du champ nul pour une polarisation σ de la radiofréquence (§ I-C-4). On constate que dans ce dernier cas (\vec{H}_0 perpendiculaire à \vec{H}_1), le facteur de Landé s'annule pour toutes les valeurs de ω_1/ω correspondant à un zéro de J_0 .

Remarque :

La théorie présentée ici est basée sur un calcul de perturbation au 1er ordre en ω_0/ω . Si le champ \vec{H}_0 est orienté dans une direction différente de Oz, le couplage magnétique \mathcal{H}_{at} possède des projections "non-diagonales" ${}^{nn'}\mathcal{H}_{\text{at}}$ et induit donc un "mélange" des multiplicités \mathcal{E}_n définies en champ nul. Ce mélange est responsable, aux ordres supérieurs de la perturbation, de la courbure des niveaux d'énergie qui apparaît visiblement sur la figure 8 par exemple. Cette courbure des niveaux peut être déterminée théoriquement (⁴⁸) à l'aide d'un calcul de perturbation au troisième ordre en ω_0/ω . Nous n'en tiendrons pas compte ici, ce qui revient également à négliger le mélange des multiplicités et à identifier les multiplicités de

l'atome habillé en champ faible à celles qui sont définies en champ rigoureusement nul. On notera l'analogie de la théorie présentée ici avec celle de l'effet Zeeman de structure fine (ou hyperfine) d'un atome libre : au premier ordre, la perturbation magnétique, proportionnelle à H_0 , agit à l'intérieur de chaque niveau de moment cinétique donné, ce qui permet de définir un facteur de Landé des niveaux. Ce n'est qu'en champ intermédiaire ou en champ fort que le couplage entre niveaux différents intervient, conduisant à un mélange de niveaux de moments cinétiques différents à la courbure des niveaux et aux effets de découplage PASCHEN-BACK (ou BACK-GOUDSMIT) bien connus.

b) Problème équivalent : atome libre dans un champ magnétique fictif

Pour diagonaliser l'hamiltonien ${}^{nn} \mathcal{H}_{at}$, on a intérêt à introduire la notion de champ magnétique fictif : l'hamiltonien (V,A,5) est en effet formellement identique à celui d'un atome libre plongé dans un champ magnétique \vec{H}'_0 de composantes :

$$\begin{cases} H'_{oz} = H_{oz} \\ H'_{ox} = H_{ox} J_0 \left(\frac{\omega_1}{\omega}\right) \\ \quad \quad \quad y \quad \quad \quad y \end{cases} \quad (V,A,6)$$

On a alors :

$${}^{nn} \mathcal{H}_{at} = -g_\alpha \mu_B \vec{H}'_0 \cdot {}^{nn} \vec{J} \quad (V,A,7)$$

Comme les éléments de matrice de ${}^{nn} \vec{J}$ sont, par définition, identiques à ceux d'un moment cinétique libre, on aboutit ainsi au résultat simple suivant : l'introduction du champ fictif \vec{H}'_0 permet de remplacer l'étude d'un système à facteur de Landé anisotrope par celle d'un atome libre de facteur de Landé isotrope, mais plongé dans un champ magnétique \vec{H}'_0 se déduisant du champ réel appliqué \vec{H}_0 par une affinité orthogonale d'axe Oz et de rapport $J_0 \left(\frac{\omega_1}{\omega}\right)$.

Les niveaux d'énergie dans un champ magnétique faible de direction quelconque se calculent alors immédiatement : la multiplicité \mathcal{E}_n se scinde en $(2J+1)$ sous-niveaux équidistants séparés par un intervalle $\overline{\omega}_0$ dont la valeur absolue est donnée par la formule :

$$\begin{aligned} |\overline{\omega}_0| &= |g_\alpha \mu_B H'_0| = |g_\alpha \mu_B| \sqrt{H_{oz}^2 + J_0^2 \left(\frac{\omega_1}{\omega}\right) (H_{ox}^2 + H_{oy}^2)} \\ &= |g_\alpha \mu_B| \sqrt{H_{o//}^2 + J_0^2 \left(\frac{\omega_1}{\omega}\right) H_{o\perp}^2} \end{aligned} \quad (V,A,8)$$

(on appelle respectivement $H_{0//}$ et $H_{0\perp}$ les composantes de H_0 parallèles et perpendiculaires à la direction Oz du champ habillant).

Nous pouvons à présent calculer le facteur de Landé pour un champ H_0 faisant un angle ψ quelconque avec Oz. On a alors

$$H_{0//} = H_0 \cos \psi \quad ; \quad H_{0\perp} = H_0 \sin \psi$$

soit :

$$|\overline{\omega_0}| = |g_\alpha \mu_B H_0| \sqrt{\cos^2 \psi + J_0^2 \left(\frac{\omega_1}{\omega}\right) \sin^2 \psi}$$

Le facteur de Landé dans la direction ψ obéit donc à la relation générale :

$$|\overline{g}_\psi| = g_\alpha \sqrt{\cos^2 \psi + J_0^2 \left(\frac{\omega_1}{\omega}\right) \sin^2 \psi} \quad (V,A,9)$$

c) Le tenseur de Landé de l'atome habillé et ses représentations géométriques

On peut rendre compte de l'anisotropie du facteur de Landé décrit au paragraphe précédent, en définissant un tenseur de Landé \overline{g} de l'atome habillé de composantes cartésiennes \overline{g}_{ij} ($i, j = x, y, z$). Rapporté aux axes Oxyz, ce tenseur est diagonal et possède la symétrie de révolution autour de Oz :

$$\overline{g} = g_\alpha \begin{bmatrix} J_0 \left(\frac{\omega_1}{\omega}\right) & 0 & 0 \\ 0 & J_0 \left(\frac{\omega_1}{\omega}\right) & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{bmatrix} \quad (V,A,10)$$

L'énergie magnétique (V,A,5) s'écrit alors de façon générale en appliquant la règle de sommation d'EINSTEIN sur les indices répétés :

$${}^{nn} \mathcal{H}_{at} = -\mu_B \overline{g}_{ij} H_{oi} {}^{nn} j_j \quad (V,A,11)$$

De même, on obtient pour le champ magnétique fictif (V,A,6) l'expression :

$$H'_{oi} = \overline{g}_{ij} H_{oj} \quad (V,A,12)$$

Pour obtenir une représentation géométrique du tenseur de Landé, on peut reporter dans chaque direction de l'espace une longueur proportionnelle au facteur de Landé $|\bar{g}_\psi|$ dans cette direction; on obtient alors une surface de révolution autour de Oz, dont la courbe méridienne est donnée en coordonnées polaires par l'équation (V,A,9) (voir figure n° 20). Si le champ de radiofréquence est nul, on a $J_0(\frac{\omega_1}{\omega}) = 1$, et la surface est évidemment une sphère décrivant le facteur de Landé isotrope de l'atome libre; pour les valeurs de ω_1/ω annulant J_0 , on a $|\bar{g}_\psi| = |g_\alpha \cos \psi|$ et la surface est constituée de deux sphères tangentes au plan xOy : le facteur de Landé est alors égal à celui de l'atome nu le long de Oz et nul pour un champ magnétique perpendiculaire à Oz.

Si au lieu de reporter dans chaque direction $|\bar{g}_\psi|$, on reporte $\rho_\psi = \frac{1}{|\bar{g}_\psi|}$, on obtient une courbe méridienne d'équation polaire :

$$\rho_\psi = \frac{1}{g_\alpha} \frac{1}{\sqrt{\cos^2 \psi + J_0^2(\frac{\omega_1}{\omega}) \sin^2 \psi}} \quad (V,A,13)$$

qui n'est autre, dans le plan xOz, que l'ellipse :

$$z^2 + J_0^2(\frac{\omega_1}{\omega}) x^2 = \frac{1}{g_\alpha^2} \quad (V,A,14)$$

On définit ainsi un ellipsoïde de révolution aplati, de révolution autour de Oz. On notera l'analogie de ces représentations géométriques avec celles des surfaces ou des ellipsoïdes des indices, ou d'inertie employés communément pour représenter géométriquement l'indice de réfraction tensoriel, ou le tenseur d'inertie, d'un système physique anisotrope.

3) La précession de Larmor de l'atome habillé

Après avoir étudié les niveaux d'énergie de l'atome habillé, nous allons maintenant préciser l'évolution de son moment cinétique $\vec{J} = \sum_{nn'} {}^{nn'}\vec{J}$. Celle-ci peut se séparer en deux composantes distinctes : un mouvement "lent" à la fréquence $\bar{\omega}_0$, auquel se superposent des oscillations forcées "rapides" aux fréquences $p\omega$. Le mouvement "lent" correspond à l'évolution des projections "diagonales" ${}^{nn'}\vec{J}$ du spin à l'intérieur de chaque multiplicité \mathcal{E}_n ; les oscillations rapides sont liées au contraire à l'évolution des projections ${}^{nn'}\vec{J}$ entre multiplicités différentes. Nous allons pour l'instant nous limiter à l'étude du mouvement "lent" qui décrit en quel-

que sorte l'évolution moyenne du spin, la moyenne étant prise sur quelques périodes du mouvement rapide. Pour étudier cette évolution "lente", nous commencerons par décrire celle du moment fictif ${}^{nn}\vec{j}'$, relié à ${}^{nn}\vec{j}$ par l'affinité (V,A,3).

a) Evolution du moment cinétique fictif ${}^{nn}\vec{j}'$ de l'atome habillé
L'équation de HEISENBERG s'écrit pour ${}^{nn}\vec{j}'$

$$\begin{aligned} i \frac{d}{dt} {}^{nn}\vec{j}'_i &= [{}^{nn}\vec{j}'_i, \mathcal{H}] \\ &= [{}^{nn}\vec{j}'_i, \mathcal{H}_{at}] \end{aligned} \quad (V,A,15)$$

(Le commutateur de ${}^{nn}\vec{j}' = \bar{P}_n \vec{j} \bar{P}_n$ avec $\mathcal{H}'_0 = \mathcal{H} - \mathcal{H}_{at} = \omega a^\dagger a + \lambda J_z (a + a^\dagger)$ est en effet nul puisque \bar{P}_n est un projecteur sur une multiplicité dégénérée d'états propres de \mathcal{H}'_0).

Introduisant deux fois la relation de fermeture sur les projecteurs \bar{P}_n , nous pouvons développer \mathcal{H}_{at} sous la forme :

$$\mathcal{H}_{at} = \sum_{nn'} \bar{P}_n \mathcal{H}_{at} \bar{P}_{n'}$$

Le commutateur de (V,A,15) fait alors intervenir des opérateurs de la forme ${}^{nn}\vec{j}'_i \bar{P}_n \mathcal{H}_{at} \bar{P}_{n'}$. De tels opérateurs, agissant entre les multiplicités \mathcal{E}_n et $\mathcal{E}_{n'}$, évoluent à l'ordre zéro en \mathcal{H}_{at} , à la fréquence $(n-n')\omega$. Si $n' \neq n$, l'effet de ces termes sur l'évolution de ${}^{nn}\vec{j}'_i$, statique à l'ordre zéro en \mathcal{H}_{at} , est faible (approximation séculaire). Nous négligerons donc dans le développement de \mathcal{H}_{at} les projections $\bar{P}_n \mathcal{H}_{at} \bar{P}_{n'}$, ($n' \neq n$) qui conduisent à des termes non séculaires et nous écrirons :

$$i \frac{d}{dt} {}^{nn}\vec{j}'_i = [{}^{nn}\vec{j}'_i, {}^{nn}\mathcal{H}_{at}] \quad (V,A,16)$$

ce qui revient, comme pour le calcul des niveaux d'énergie, à étudier l'effet de la perturbation magnétique à l'intérieur de chacune des multiplicités définies en champ nul. Si on utilise l'expression (V,A,7) de ${}^{nn}\mathcal{H}_{at}$ en fonction du champ fictif \vec{H}'_0 , (V,A,16) devient :

$$i \frac{d}{dt} {}^{nn}\vec{j}'_i = [{}^{nn}\vec{j}'_i, -g_\alpha \mu_B \vec{H}'_0 \cdot {}^{nn}\vec{j}'] \quad (V,A,17)$$

Par définition, les relations de commutation des ${}^{nn}j_i$ sont identiques à celles des composantes du moment cinétique de l'atome libre (cf. § III-B-1). Nous voyons alors clairement l'intérêt des notions de moment cinétique et de champ fictif précédemment introduites : au lieu d'étudier l'évolution compliquée dans le champ \vec{H}_0 d'un système à facteur de Landé anisotrope, nous sommes ramenés à l'étude simple de l'évolution du moment cinétique d'un atome libre dans le champ \vec{H}'_0 . Ainsi le mouvement du vrai moment cinétique ${}^{nn}\vec{J}$ se détermine en trois étapes :

- on effectue sur \vec{H}_0 l'affinité (V,A,6) pour obtenir \vec{H}'_0
- on calcule, à l'aide de (V,A,17), l'évolution du moment fictif ${}^{nn}\vec{j}$ dans \vec{H}'_0
- on revient à l'aide de l'affinité (V,A,3) à l'observable physique ${}^{nn}\vec{J}$.

b) Description de la précession de Larmor de l'atome habillé

La relation (V,A,17) conduit à l'équation pour les valeurs moyennes :

$$\frac{d}{dt} \langle {}^{nn}\vec{j} \rangle = g_\alpha \mu_B \langle {}^{nn}\vec{j} \rangle \wedge \vec{H}'_0 \quad (V,A,18)$$

qui décrit la précession de Larmor de $\langle {}^{nn}\vec{j} \rangle$ sur un cône de révolution autour de \vec{H}'_0 à la fréquence $g_\alpha \mu_B H'_0$. L'évolution de $\langle {}^{nn}\vec{J} \rangle$ s'obtient en effectuant l'affinité (V,A,3) :

α) fréquence de Larmor : La fréquence de précession de $\langle {}^{nn}\vec{J} \rangle$ est évidemment la même que celle de $\langle {}^{nn}\vec{j} \rangle$. Cette fréquence n'est plus celle de l'atome libre, $\omega_0 = -g_\alpha \mu_B H_0$, mais devient :

$$\bar{\omega}_0 = -g_\alpha \mu_B H'_0 = -\bar{g}_\psi \mu_B H_0 \quad (V,A,19)$$

Elle correspond évidemment à la séparation en énergie des sous-niveaux Zeeman calculés au paragraphe précédent. De la mesure de la fréquence de précession pour diverses orientations de \vec{H}_0 , on peut, à l'aide de (V,A,19), déduire le facteur de Landé anisotrope \bar{g}_ψ de l'atome habillé et déterminer expérimentalement la surface des facteurs de Landé (voir chapitre IX de la partie expérimentale).

β) Forme de la précession : La surface engendrée par le vrai moment cinétique $\langle {}^{nn}\vec{J} \rangle$ se déduit par l'affinité (V,A,3) du cône de révolution décrit par $\langle {}^{nn}\vec{j} \rangle$ autour de \vec{H}'_0 : appelons \vec{H}''_0 le transformé de \vec{H}'_0 dans la même affinité :

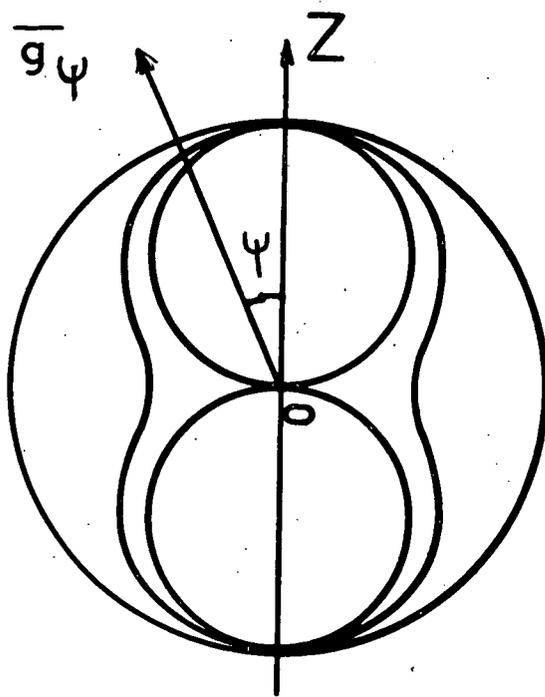


Fig - 20

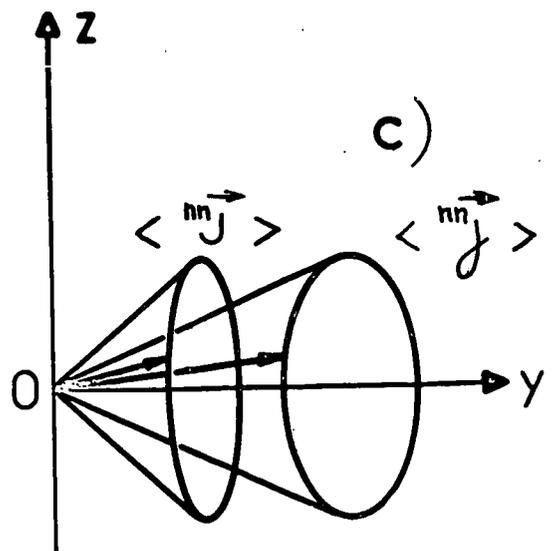
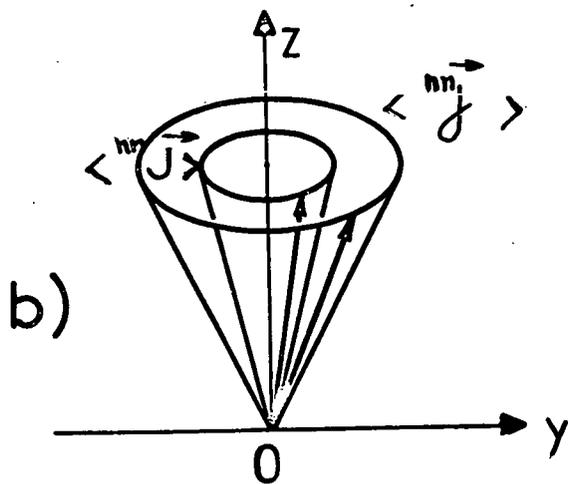
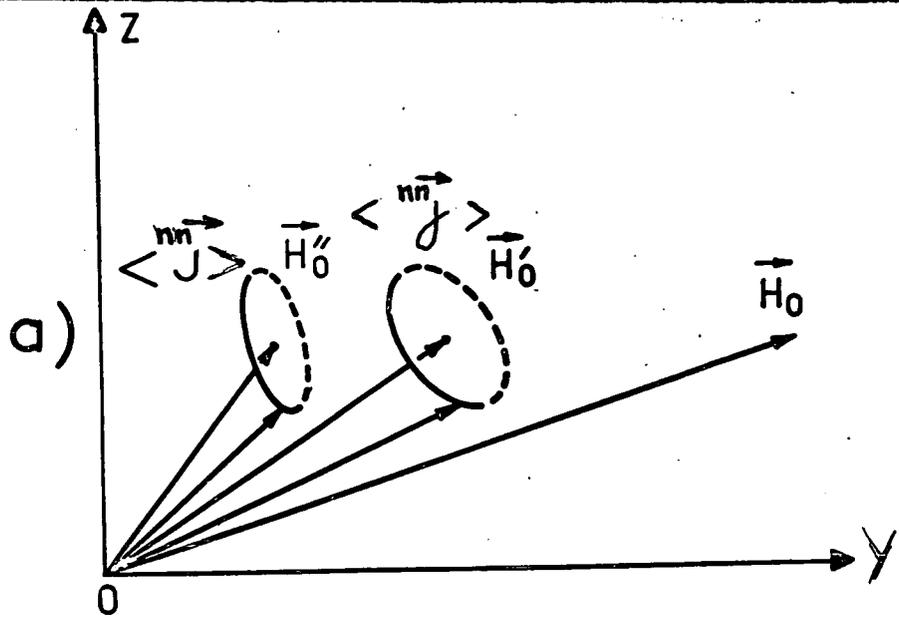


Fig - 21

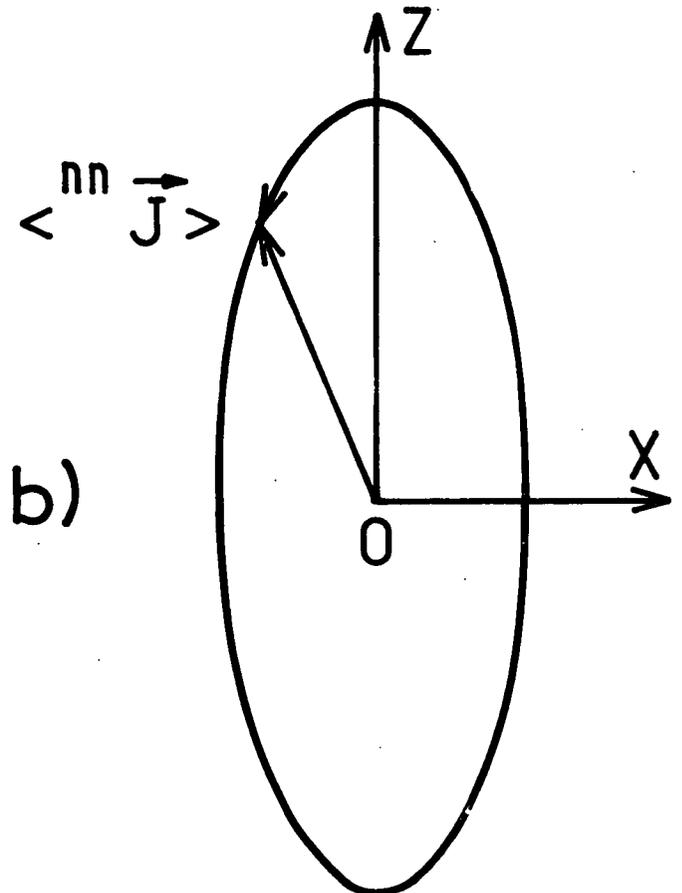
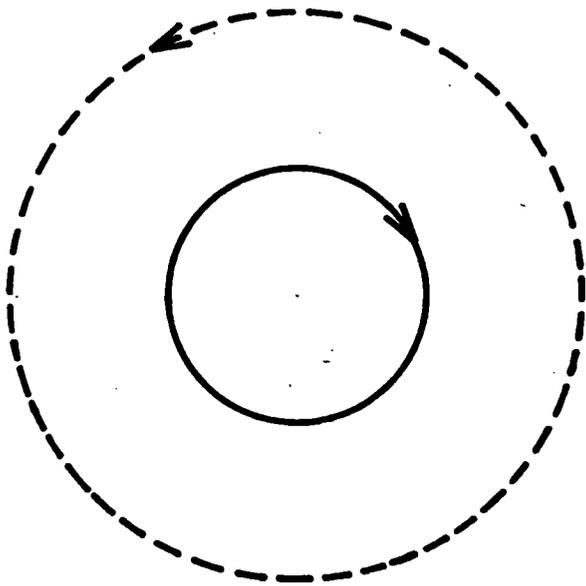
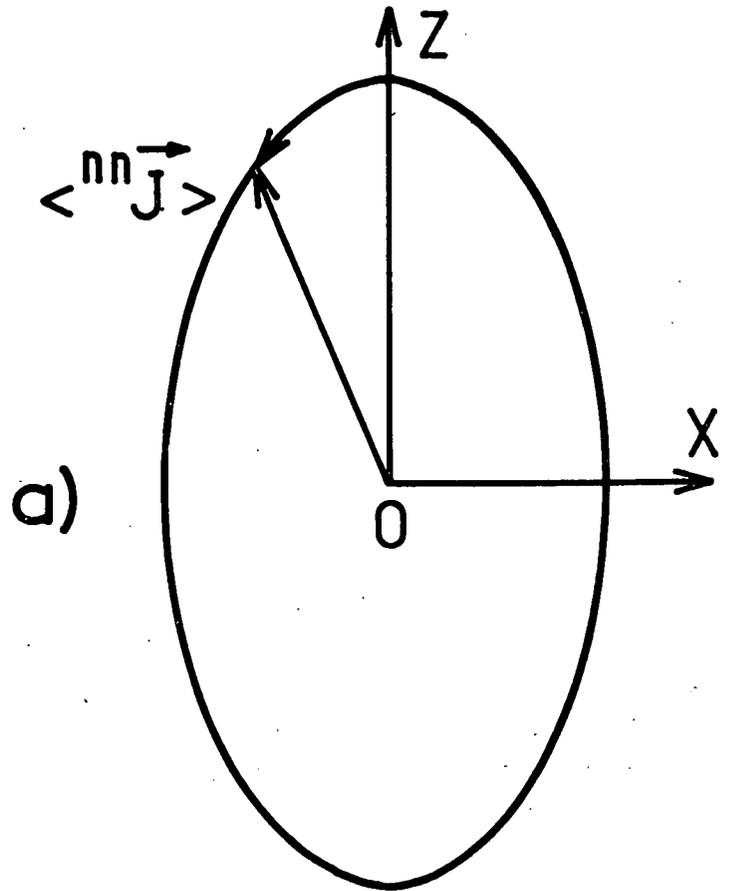
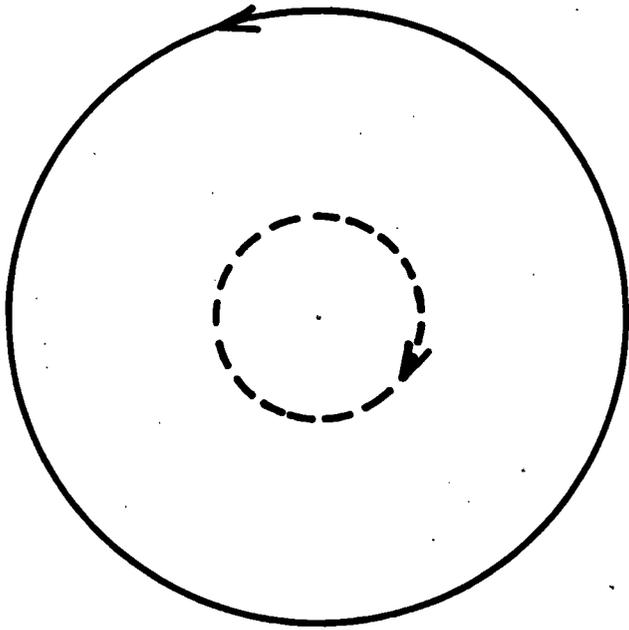


Fig. 22

les relations :

$$\langle {}^{nn}j_{\pm}(t) \rangle_y = \langle {}^{nn}j_z(t) \rangle \pm i \langle {}^{nn}j_x(t) \rangle = \langle {}^{nn}j_{\pm}(0) \rangle e^{\pm i\bar{\omega}_0 t} \quad (V,A,21)$$

(On notera dans cette expression l'indice y qui rappelle que la précession circulaire du moment fictif se fait autour de Oy).

Nous pouvons alors en déduire la composante transversale par rapport au champ \vec{H}_0 du moment réel qui s'écrira en notation complexe et compte tenu de l'affinité (V,A,3) :

$$\begin{aligned} \langle {}^{nn}j_+(t) \rangle_y &= \langle {}^{nn}j_z(t) \rangle + i \langle {}^{nn}j_x(t) \rangle \\ &= \frac{1}{2} \left[1 + J_0 \left(\frac{\omega_1}{\omega} \right) \right] \langle {}^{nn}j_+(t) \rangle_y + \frac{1}{2} \left[1 - J_0 \left(\frac{\omega_1}{\omega} \right) \right] \langle {}^{nn}j_-(t) \rangle_y \quad (V,A,22) \end{aligned}$$

On reconnaît dans cette expression la décomposition de la précession elliptique de l'extrémité de $\langle {}^{nn}\vec{j} \rangle$ en deux mouvements circulaires de sens opposés, associés respectivement aux deux composantes circulaires droite et gauche du moment fictif. L'amplitude de la première composante, $\frac{1}{2} \left[1 + J_0 \left(\frac{\omega_1}{\omega} \right) \right]$ tend vers l'unité à la limite où $\omega_1 = 0$, tandis que celle de la seconde, $\frac{1}{2} \left[1 - J_0 \left(\frac{\omega_1}{\omega} \right) \right]$ s'annule. Aussi les appelons-nous respectivement composantes "ordinaire" et "extraordinaire" de la précession des spins.

Nous avons symbolisé sur les figures 22-a et 22-b la décomposition du mouvement elliptique que nous venons de décrire pour deux valeurs du rapport ω_1/ω correspondant à des signes opposés du facteur de Landé de l'atome habillé, en représentant par un cercle en traits pleins la composante ordinaire et par un cercle en pointillés la composante extraordinaire de la précession :

Si $J_0 \left(\frac{\omega_1}{\omega} \right)$ est positif (figure 22-a), le sens de rotation de la composante ordinaire est le même que celui de la précession de l'atome libre (nous le supposons direct pour fixer les idées) et l'amplitude de cette composante est alors supérieure à celle de la composante extraordinaire ($1 + J_0 > 1 - J_0$). Ces conclusions sont inversées si $J_0 \left(\frac{\omega_1}{\omega} \right)$ est négatif (figure 22-b). C'est la composante extraordinaire qui tourne alors dans le sens direct (car $\bar{\omega}_0$ est dans ces conditions négatif) et qui a la plus grande amplitude ($1 - J_0 > 1 + J_0$). Ainsi, dans tous les cas, c'est la composante tournant dans le même sens que le spin libre qui est prépondérante et qui impose son sens à la précession elliptique : bien que le facteur de Landé puisse, pour cette polarisation de la radiofréquence, changer de signe,

l'ellipse décrite par l'extrémité du moment cinétique de l'atome habillé est toujours parcourue dans le même sens. Nous montrerons au chapitre IX comment on peut vérifier expérimentalement tous ces résultats.

4) Les équations de BLOCH de l'atome habillé en champ faible et leur application au calcul de quelques expériences

a) Equation pilote en champ faible pour le moment cinétique fictif de l'atome habillé

Supposons que le système atomique soit soumis à un processus de pompage et à un amortissement isotrope; l'équation pilote de son orientation s'écrira alors en absence de radiofréquence et en présence d'un champ statique \vec{H}_0 :

$$\frac{d}{dt} \langle \vec{J} \rangle = \Gamma [\langle \vec{J} \rangle_0 - \langle \vec{J} \rangle] + g_\alpha \mu_B \langle \vec{J} \rangle \wedge \vec{H}_0 \quad (V,A,23)$$

Dans cette équation, $\langle \vec{J} \rangle_0$ est un vecteur caractéristique du pompage déjà défini au chapitre III (équation (III,C,10)). En présence d'un champ de radiofréquence polarisé linéairement, l'équation pilote correspondante pour le moment fictif "réduit" $\langle\langle \vec{J} \rangle\rangle = \frac{1}{\mathcal{P}(n)} \langle {}^{nn} \vec{J} \rangle$ de l'atome habillé se déduit de l'équation générale (III,C,13) en y remplaçant les coefficients ${}^{(s)}A_{q,q}^1$ par leur expression (III,B,37) et en mettant le terme d'évolution propre sous la forme (V,A,18). On trouve alors sans difficultés :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{d}{dt} \langle\langle J_z \rangle\rangle = \Gamma \langle J_z \rangle_0 - \Gamma \langle\langle J_z \rangle\rangle + g_\alpha \mu_B [\langle\langle \vec{J} \rangle\rangle \wedge \vec{H}_0]_z \\ \frac{d}{dt} \langle\langle J_\pm \rangle\rangle = \Gamma \langle J_\pm \rangle_0 \sum_s J_s \left(\pm \frac{\omega_1}{\omega} \right) e^{-is\omega t} - \Gamma \langle\langle J_\pm \rangle\rangle + g_\alpha \mu_B [\langle\langle \vec{J} \rangle\rangle \wedge \vec{H}_0]_\pm \end{array} \right. \quad (V,A,24)$$

Le terme source dans la deuxième équation possède une partie statique ($s = 0$) et une partie modulée à toutes les fréquences $s\omega$ harmoniques de la radiofréquence. Ces termes modulés ont un effet très faible sur l'évolution du moment fictif car leur fréquence est très grande devant la fréquence d'évolution propre de $\langle\langle J_\pm \rangle\rangle$, voisine de $\omega_0 \ll \omega$. On peut donc, par approximation séculaire, négliger ces termes et ne garder que la partie statique du pompage, proportionnelle à $J_0 \left(\frac{\omega_1}{\omega} \right)$. On obtient

alors finalement :

$$\frac{d}{dt} \langle\langle \vec{j} \rangle\rangle = \Gamma [\langle\langle \vec{j} \rangle\rangle_0 - \langle\langle \vec{j} \rangle\rangle] + g_\alpha \mu_B \langle\langle \vec{j} \rangle\rangle \wedge \vec{H}_0 \quad (\text{V,A,25})$$

avec

$$\left\{ \begin{array}{l} \langle\langle j_z \rangle\rangle_0 = \langle J_z \rangle_0 \\ \langle\langle j_{x/y} \rangle\rangle_0 = \langle J_{x/y} \rangle_0 J_0 \left(\frac{\omega_1}{\omega} \right) \end{array} \right. \quad (\text{V,A,26-a})$$

soit, de façon plus condensée :

$$\langle\langle j_i \rangle\rangle_0 = \overline{g_{ij}} \langle J_j \rangle_0 \quad (\text{V,A,26-b})$$

Une fois l'évolution du moment fictif déterminée, on calcule le signal détecté sur le moment cinétique réel à partir des équations reliant les composantes de $\langle \vec{J} \rangle$ à celles de $\langle\langle \vec{j} \rangle\rangle$. Ces équations se déduisent simplement de l'équation générale (III,C,14) en y remplaçant le coefficient opératoriel par son expression (III,B,37). On obtient alors immédiatement :

$$\left\{ \begin{array}{l} \langle J_z \rangle = \langle\langle j_z \rangle\rangle \\ \langle J_\pm \rangle = \sum_r J_r \left(\pm \frac{\omega_1}{\omega} \right) \langle\langle j_\pm \rangle\rangle e^{ir\omega t} \end{array} \right. \quad (\text{V,A,27})$$

On vérifie à nouveau sur ces expressions que les composantes "lentes" ($r = 0$) du spin réel se déduisent par une affinité d'axe Oz et de rapport $J_0 \left(\frac{\omega_1}{\omega} \right)$ du moment fictif $\langle\langle \vec{j} \rangle\rangle$; on voit apparaître en plus, sur les composantes du spin transversales à la direction du champ de radiofréquence, les modulations "rapides" aux fréquences harmoniques $r\omega$ que nous avons déjà signalées (cf. § V-A-3).

En conclusion, l'équation pilote (V,A,25) décrivant l'évolution du moment fictif de l'atome habillé a la même forme que l'équation (V,A,23) relative à l'atome libre. On passe de l'une à l'autre en effectuant sur le vecteur de pompage $\langle \vec{J} \rangle_0$ et le champ magnétique \vec{H}_0 une même affinité d'axe Oz et de rapport $J_0 \left(\frac{\omega_1}{\omega} \right)$. L'évolution du moment cinétique réel se déduit de celle du spin fictif à l'aide des relations (V,A,27). Ces règles extrêmement simples permettent, sans aucun calcul, de décrire n'importe quelle expérience sur l'atome habillé, en la ramenant à une expérience classique correspondante effectuée sur l'atome libre, comme nous le mon-

trons à présent sur quelques exemples.

b) Effet Hanle de l'atome habillé observé en orientation

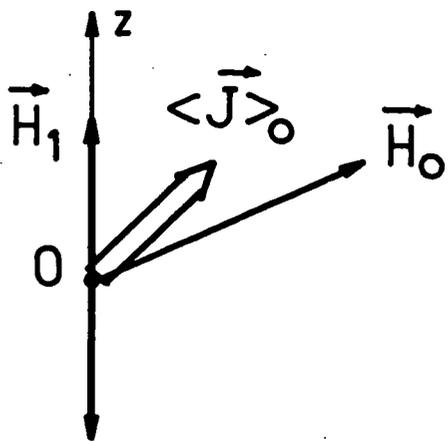
L'expérience de croisement de niveaux de l'atome habillé en champ nul peut, de façon générale, être décrite de la façon suivante : les atomes sont pompés dans une certaine direction définie par le vecteur de pompage $\langle \vec{J} \rangle_0$; ils sont soumis à l'action d'un champ de radiofréquence le long de Oz et on balaie un champ statique \vec{H}_0 dans une direction faisant un angle ψ donné avec Oz (figure 23-a). L'expérience équivalente sur le moment cinétique fictif est schématisée en regard sur la figure 23-b : le vecteur de pompage et le champ magnétique ont subi l'affinité d'axe Oz et de rapport $J_0(\frac{\omega_1}{\omega})$. Les spins fictifs introduits dans la direction $\langle \vec{J} \rangle_0$ subissent la précession de Larmor autour du champ \vec{H}'_0 et s'amortissent avec la constante de temps $1/\Gamma$. La valeur moyenne du moment cinétique fictif sur l'ensemble des atomes résultera de l'effet compétitif du pompage, de la précession et de la relaxation (cf. § I-A-3) : les composantes du spin fictif transversales par rapport à la direction du champ fictif \vec{H}'_0 subiront une variation résonnante autour de $H'_0 = 0$, c'est-à-dire encore autour de $H_0 = 0$.

Les composantes statiques ^{ou} modulées du moment cinétique réel (équation (V,A,27)) présenteront les mêmes variations résonnantes.

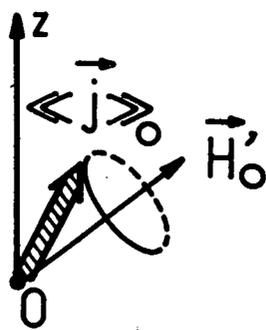
Pour que cet effet soit observable, il faut que le pompage du spin fictif soit transversal par rapport au champ fictif \vec{H}'_0 . $\langle \vec{J} \rangle_0$ et \vec{H}'_0 se déduisant de $\langle \vec{J} \rangle_0$ et \vec{H}_0 par une même affinité, il en résulte évidemment que $\langle \vec{J} \rangle_0$ doit également posséder une composante perpendiculaire à \vec{H}_0 et que le pompage atomique réellement effectué doit être transversal : nous retrouvons là une propriété générale -établie au chapitre IV (§ IV-B-1)- des résonances de croisement de niveaux de l'atome habillé observées en orientation et nous en donnons dans ce cas particulier une interprétation géométrique simple.

Envisageons deux dispositions de champs magnétiques, pour lesquelles la résonance que nous venons de décrire possède des propriétés intéressantes : (Q). Sur la figure 23-c, nous avons schématisé l'expérience dans le cas où \vec{H}_0 est parallèle au champ habillant et où le pompage s'effectue dans une direction perpendiculaire à ce champ (Ox par exemple). Dans ces conditions, \vec{H}'_0 reste identique à \vec{H}_0 , mais l'efficacité du pompage du moment fictif se trouve réduite par le facteur $J_0(\frac{\omega_1}{\omega})$ (formule (V,A,26)); l'expérience équivalente sur le spin fictif a été schématisée sur la figure 23-d. La valeur stationnaire $\langle \vec{J}_+ \rangle$ de la composante circulaire transversale du moment fictif est donnée simplement en fonction du champ magnétique par l'expression :

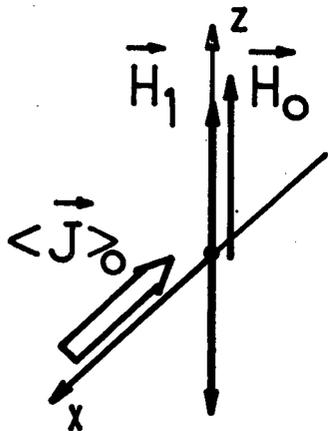
a)



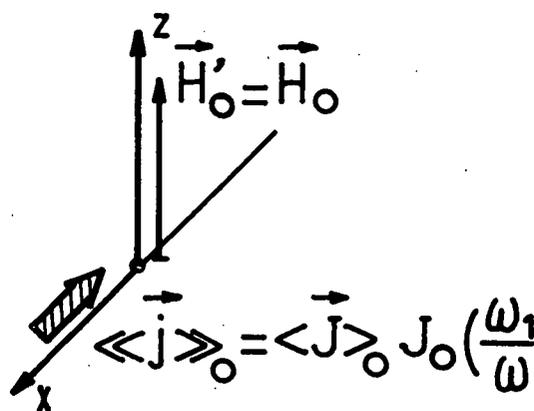
b)



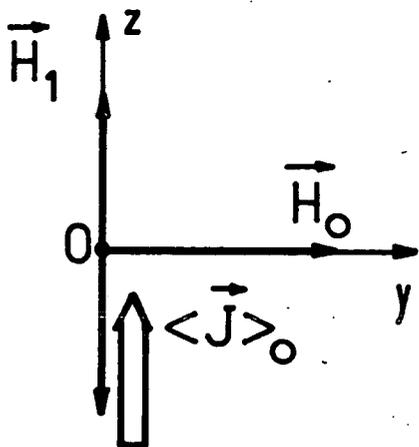
c)



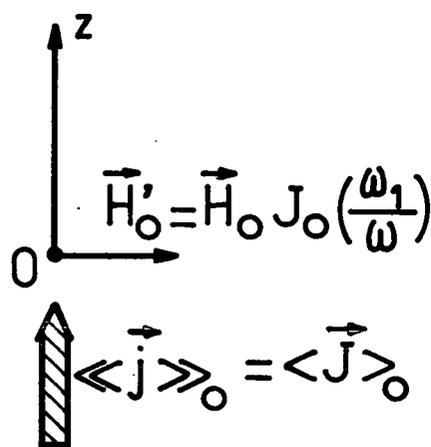
d)



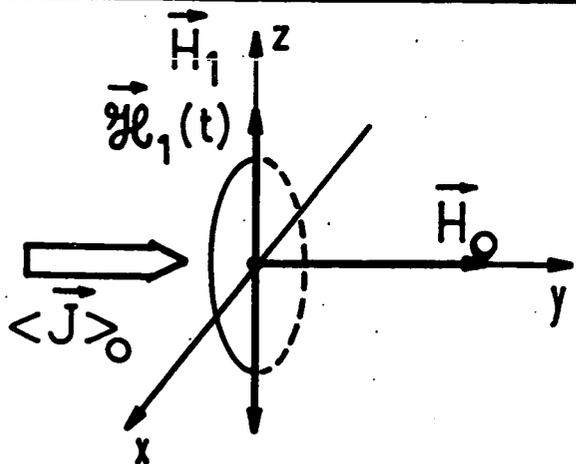
e)



f)



g)



h)

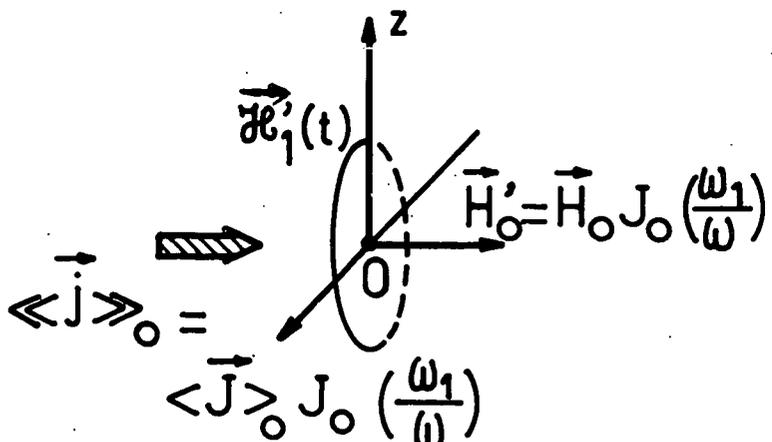


Fig - 23

$$\langle\langle \bar{J}_+ \rangle\rangle = J_0 \left(\frac{\omega_1}{\omega} \right) \frac{\Gamma \langle J_x \rangle_0}{\Gamma - i\omega_0} \quad (V,A,28)$$

La composante $\langle J_+ \rangle$ du spin réel se déduit de (V,A,28) à l'aide de (V,A,27) :

$$\langle \bar{J}_+ \rangle = \sum_r J_0 \left(\frac{\omega_1}{\omega} \right) J_r \left(\frac{\omega_1}{\omega} \right) e^{ir\omega t} \frac{\Gamma \langle J_x \rangle_0}{\Gamma - i\omega_0} \quad (V,A,29)$$

Enfin, le signal de croisements de niveaux en champ nul détecté sur la composante du spin parallèle au pompage s'écrira simplement :

$$S = \langle \bar{J}_x \rangle = \text{Re} \langle \bar{J}_+ \rangle = \langle J_x \rangle_0 \left\{ \sum_{r \geq 0} (J_0 J_r + J_0 J_{-r}) \frac{\Gamma^2 \cos r\omega t}{\Gamma^2 + \omega_0^2} - \sum_{r \geq 0} (J_0 J_r - J_0 J_{-r}) \frac{\Gamma \omega_0 \sin r\omega t}{\Gamma^2 + \omega_0^2} \right\} \quad (V,A,30)$$

Remarquons que le signal que nous avons ainsi obtenu ^(sur la modulation $r\omega$) est identique à celui de l'expression (IV,C, 7) dans lequel on fait $s = 0$ ^{et $s' = r$} : nous venons simplement de décrire, dans un point de vue différent, la résonance paramétrique de cohérence en champ statique nul que nous avons déjà étudié au § IV-C-2. Cette résonance apparaît ainsi comme liée à l'effet Hanle de l'atome habillé par des photons de radiofréquence de polarisation π . Cet effet Hanle possède la même largeur

$$\Delta H_0 = \frac{\Delta \omega_0}{\gamma_\alpha} = \frac{2\Gamma}{\gamma_\alpha} \quad (V,A,31)$$

que celui de l'atome libre, car le facteur de Landé n'est pas modifié dans ces conditions. Il présente cependant par rapport à l'effet Hanle ordinaire l'avantage de pouvoir s'observer sur des modulations dont la détection peut être rendue beaucoup plus sensible que celle de signaux statiques grâce aux techniques d'amplification sélective ou de détection synchrone. Nous avons donc pu, en utilisant cette résonance, pointer avec une grande précision le croisement de niveaux du système en champ nul et mettre au point un magnétomètre d'une très grande sensibilité (voir chapitre IX).

(β). Sur la figure 23-e, nous avons schématisé la même expérience dans le cas particulier où le champ \vec{H}_0 est balayé perpendiculairement au champ habillant et où le pompage est parallèle à la direction Oz de ce champ. Dans ces conditions, le champ fictif \vec{H}'_0 ne change pas de direction mais subit par contre une réduction par le facteur $J_0 \left(\frac{\omega_1}{\omega} \right)$; l'efficacité du pompage du moment fictif reste, quant à elle, la même que celle de l'atome libre (figure 23-f). La valeur stationnaire $\langle\langle \bar{J}_z \rangle\rangle$ du moment fictif le long de Oz, égale à celle du moment réel (voir équation (V,A,27)), est donnée simplement en fonction du champ magnétique par la relation :

$$\langle\langle \overline{J_z} \rangle\rangle = \langle \overline{J_z} \rangle = \frac{\Gamma^2 \langle J_z \rangle_0}{\Gamma^2 + (g\mu_B H'_0)^2} = \frac{\Gamma^2 \langle J_z \rangle_0}{\Gamma^2 + \omega_0^2 J_0^2\left(\frac{\omega_1}{\omega}\right)} \quad (V,A,32)$$

L'effet Hanle de l'atome habillé n'apparaît alors que sur un signal statique et possède la même intensité et la même forme Lorentzienne que celui de l'atome libre; il en diffère cependant par sa largeur :

$$\Delta H_0 = \frac{2\Gamma}{\gamma_\alpha J_0\left(\frac{\omega_1}{\omega}\right)} \quad (V,A,33)$$

qui est inversement proportionnelle au facteur de Landé de l'atome habillé et qui subit des variations importantes lorsque l'intensité du champ habillant augmente : elle devient notamment infinie pour toutes les valeurs de ω_1/ω qui annulent la fonction de Bessel $J_0\left(\frac{\omega_1}{\omega}\right)$.

La mesure de ΔH_0 fournit ainsi, comme nous le verrons en détail au chapitre IX, une détermination expérimentale du facteur de Landé de l'atome habillé.

c) Résonance magnétique de l'atome habillé

Nous avons montré au § V-A-3 que la précession de Larmor de l'atome habillé s'effectue en général suivant un mouvement elliptique pouvant se décomposer en deux mouvements circulaires de même fréquence, mais de sens opposés. Ainsi contrairement à l'atome nu qui dans un champ magnétique n'a qu'une seule fréquence propre (la fréquence de Larmor $\omega_0/2\pi$ définie en grandeur et en signe), un atome habillé dans le même champ possède deux fréquences propres de signes opposés (égales à $\frac{\omega_0}{2\pi} J_0\left(\frac{\omega_1}{\omega}\right)$ et $-\frac{\omega_0}{2\pi} J_0\left(\frac{\omega_1}{\omega}\right)$ si \vec{H}_0 est perpendiculaire à \vec{H}_1). La mise en évidence de ces deux fréquences propres peut se faire en étudiant le spectre de résonance magnétique de l'atome habillé obtenu avec un champ de radiofréquence tournant. On réalise l'expérience suivante : les atomes habillés par le champ $\vec{H}_1 \cos \omega t$ toujours orienté le long de Oz sont placés dans un champ magnétique \vec{H}_0 parallèle à Oy. Ils sont pompés le long de \vec{H}_0 et soumis à l'action d'un champ de radiofréquence circulaire droit $\vec{\mathcal{H}}_1(t)$ d'intensité \mathcal{H}_1 faible, tournant dans le plan xOz à la vitesse angulaire Ω (figure 23-g).

Nous introduisons donc ici un deuxième champ de radiofréquence qu'il faut bien distinguer du champ habillant (cf. § I-E). Rappelons que ce dernier est un champ intense, qui modifie les niveaux d'énergie de l'atome. Au contraire, le deuxième champ, d'intensité et de fréquence beaucoup plus faible ($\Omega \ll \omega$) sert en quelque sorte d'instrument de mesure, destiné à déterminer les fréquences propres du

système "atome + champ habillant"; il sera traité classiquement.

Pour un atome nu ($\omega_1 = 0$), nous savons qu'il y a résonance lorsque le champ \mathcal{H}_1 tourne à la même vitesse et dans le même sens que le moment magnétique de l'atome, c'est-à-dire lorsque $\omega_0 = \Omega$. Aucune résonance n'apparaît en $\omega_0 = -\Omega$.

Pour un spin habillé, il doit y avoir résonance lorsque Ω est égal à l'une ou l'autre des deux fréquences propres, donc pour $\Omega = \omega_0 J_0(\frac{\omega_1}{\omega})$ (le champ tourne en phase avec la composante ordinaire de la précession) et pour $\Omega = -\omega_0 J_0(\frac{\omega_1}{\omega})$ (le champ tourne en phase avec la composante extraordinaire). L'obtention avec un champ purement circulaire droit d'une résonance "extraordinaire" pour $\omega_0 J_0(\frac{\omega_1}{\omega}) = -\Omega$ est donc directement liée au caractère elliptique de la précession de Larmor de l'atome habillé.

Le calcul exact des signaux observés peut se faire en utilisant les concepts de champ et de moment cinétique fictifs précédemment introduits. L'expérience équivalente est représentée sur la figure 23-h : elle revient à étudier le spectre de résonance d'un atome libre dans un champ $\vec{H}'_0 = \vec{H}_0 J_0(\frac{\omega_1}{\omega})$, obtenu avec un champ de radiofréquence elliptique $\mathcal{H}'_1(t)$ de grand axe \mathcal{H}_1 parallèle à Oz et de petit axe $\mathcal{H}_1 J_0(\frac{\omega_1}{\omega})$ parallèle à Ox. Ce champ de radiofréquence elliptique se décompose en deux champs de radiofréquence circulaires droit et gauche d'amplitudes respectives $\mathcal{H}_1 [1 + J_0(\frac{\omega_1}{\omega})] / 2$ et $\mathcal{H}_1 [1 - J_0(\frac{\omega_1}{\omega})] / 2$. Ce sont ces deux composantes qui induisent respectivement les résonances $\Omega = \omega_0 J_0(\frac{\omega_1}{\omega})$ et $\Omega = -\omega_0 J_0(\frac{\omega_1}{\omega})$. Remarquons enfin que l'efficacité du pompage, perpendiculaire dans ce cas à la direction Oz du champ habillant se trouve réduite par un facteur $J_0(\frac{\omega_1}{\omega})$, ce qui affecte l'intensité des résonances observées. Nous décrirons dans la partie expérimentale de cette étude le résultat de cette expérience qui permet de mettre en évidence les modifications apparaissant à la fois sur la fréquence et sur la forme de la précession de l'atome habillé. (chapitre IX)

Remarques :

L'étude qualitative que nous venons de faire de la résonance magnétique de l'atome habillé doit être complétée par les remarques suivantes :

i) Les résonances ordinaire et extraordinaire n'apparaissent aux fréquences $\Omega = \pm \omega_0 J_0(\frac{\omega_1}{\omega})$ qu'à la limite où l'intensité du champ "sonde" est extrêmement faible. Dans le cas contraire, ces résonances présentent des déplacements radiatifs en \mathcal{H}_1^2 induits par le champ "sonde" lui-même : en effet, l'expérience

équivalente symbolisée sur la figure 23-h est réalisée à l'aide d'un champ elliptique et l'on sait que les résonances produites par un tel champ subissent l'effet BLOCH-SIEGERT. On peut dire, en d'autres termes, que le champ "sonde" perturbe, s'il est trop intense, les niveaux d'énergie de l'atome en interaction avec le champ habillant. Cet effet limite la précision de la mesure des niveaux d'énergie de l'atome habillé par la technique du champ "sonde". Il impose pour ces mesures l'utilisation de champs $\mathcal{H}_1(t)$ de très faible intensité et l'extrapolation des résultats à $\mathcal{H}_1 = 0$.

ii) Le champ elliptique fictif équivalent au champ "sonde" peut également induire des transitions à plusieurs quanta sur le spin fictif et faire apparaître un spectre impair de résonances $(2p+1)\Omega = \pm\omega_0 J_0\left(\frac{\omega_1}{\omega}\right)$. Il s'agit cependant d'un effet négligeable si \mathcal{H}_1 est suffisamment faible.

iii) Toutes les résonances que nous venons de décrire sont associées à des transitions produites par le champ "sonde" à l'intérieur d'une multiplicité \mathcal{E}_n de l'atome habillé et correspondent à des fréquences Ω petites devant ω . Si Ω devient de l'ordre de ω , d'autres effets résonnants peuvent être observés. Il n'est plus possible pour les décrire d'utiliser les équations de BLOCH (V,A,25). Celles-ci se déduisent en effet des équations (V,A,24) sous réserve que les fréquences d'évolution propre du spin fictif dans les champs appliqués soient toutes très inférieures à ω (approximation séculaire). En présence d'un champ $\mathcal{H}_1(t)$ de fréquence $\Omega \approx \omega$, cette condition n'est manifestement plus remplie et l'évolution du système doit être décrite par les équations complètes (V,A,24) dans lesquelles on remplace \vec{H}'_0 par $\vec{H}'_0 + \vec{\mathcal{H}}'_1(t)$. Le terme source des équations (V,A,24) (terme de pompage) étant modulé aux fréquences harmoniques de ω , on conçoit qu'il doit apparaître dans ces conditions des résonances lorsque la fréquence de modulation du pompage $s\omega$ est voisine de la fréquence Ω du champ $\mathcal{H}'_1(t)$. Ces résonances sont simplement associées à des transitions induites par le champ "sonde" entre multiplicités différentes de l'atome habillé. Nous reviendrons en détail sur leurs propriétés au chapitre VI.

d) Effet Hanle en alignement sur l'atome habillé

Les équations (V,A,24) et (V,A,25) décrivent l'évolution de l'orientation sur l'atome habillé. A partir de l'équation pilote générale (III,C,8), il est facile d'établir les équations analogues valables pour l'alignement. Le terme de pompage s'écrit notamment :

$$\frac{d^{(1)}}{dt} \ll \mathcal{L}_q^2 \gg = \lambda_q^2 J_0\left(q \frac{\omega_1}{\omega}\right) \quad (V,A,34)$$

Cette relation montre que l'efficacité du pompage des composantes tensorielles fictives de l'alignement est réduite par un facteur qui dépend de l'ordre de la composante considérée. Il est facile de montrer, à partir de cette expression, qu'un alignement longitudinal par rapport au champ \vec{H}_0 se traduit en général par un alignement fictif transversal par rapport au champ \vec{H}'_0 . Supposons en effet \vec{H}_0 orienté le long de Oy, perpendiculairement à Oz et un pompage en alignement longitudinal par rapport à \vec{H}_0 : les composantes tensorielles étant rapportées à l'axe de quantification Oz, et non à Oy, il est facile de voir que l'on a alors λ_0^2 et $\lambda_{\pm 2}^2 \neq 0$; $\lambda_{\pm 1}^2 = 0$. Le pompage des composantes tensorielles fictives \mathcal{C}_0^2 et $\mathcal{C}_{\pm 2}^2$ fait intervenir des facteurs d'atténuation différents pour les composantes $q = 0$ et $q = \pm 2$ (respectivement $J_0(0) = 1$ et $J_0(\frac{2\omega_1}{\omega})$). Il en résulte que le tenseur fictif introduit dans le système ne peut plus être longitudinal par rapport à Oy (en particulier si $J_0(\frac{2\omega_1}{\omega}) = 0$, l'alignement fictif introduit est longitudinal par rapport à Oz et par suite manifestement transversal par rapport à Oy). Par contre le champ \vec{H}'_0 reste dans ce cas parallèle à Oy (il est simplement réduit en intensité par rapport à \vec{H}_0). Ainsi, le pompage longitudinal sur l'atome libre devient un pompage transversal pour l'atome habillé (ce qui n'était pas possible pour l'orientation : voir § V-A-4-b). En d'autres termes, la résonance de croisement de niveaux de l'atome habillé en champ nul peut être, en général, observée en alignement longitudinal : on justifie ainsi géométriquement pour cette résonance particulière un résultat important concernant les croisements de niveaux de 2e espèce de l'atome habillé établi au chapitre IV (cf. § IV-B-2).

V-B. TRANSFERT RESONNANT DE COHERENCE ENTRE NIVEAUX ATOMIQUES DIFFERENTS HABILLES PAR UN CHAMP DE RADIOFREQUENCE POLARISE LINEAIREMENT

Il arrive souvent, dans des expériences de physique atomique, que des processus de collision en phase gazeuse s'accompagnent d'un échange de moment cinétique entre deux niveaux atomiques ($\alpha_1 J_1$) et ($\alpha_2 J_2$) appartenant ou non à un même atome : on peut citer par exemple les collisions d'échange de spin (⁶⁰) ou de métastabilité (⁷³), différents types de transfert d'excitation au cours de collisions résonnantes (⁷⁴) ou non résonnantes (⁷⁵), etc.

En présence d'un champ magnétique statique \vec{H}_0 , l'efficacité de l'échange entre les deux niveaux devient très différente pour les composantes de l'orien-

tation parallèles et perpendiculaires au champ : le champ magnétique ne joue aucun rôle pendant la collision d'échange elle-même qui dure un temps τ_c trop court pour que la précession de Larmor des différents spins dans \vec{H}_0 puisse être appréciable; cependant, entre deux collisions consécutives, séparées l'une de l'autre par un temps d'échange $T_{\alpha_1\alpha_2}$ relativement long ($T_{\alpha_1\alpha_2} \gg \tau_c$), les composantes transversales du spin dans les deux niveaux, c'est-à-dire encore les cohérences Zeeman de ces niveaux, précessent autour de \vec{H}_0 à leur propre fréquence de Larmor $\omega_{\alpha_1} = -g_{\alpha_1} \mu_B H_0$ et $\omega_{\alpha_2} = -g_{\alpha_2} \mu_B H_0$. Si le niveau ($\alpha_2 J_2$) possède initialement une orientation transversale et si la condition de résonance :

$$|\omega_{\alpha_1} - \omega_{\alpha_2}| T_{\alpha_1\alpha_2} \lesssim 1 \quad (V,B,1)$$

n'est pas remplie, les composantes transversales du moment angulaire transférées du niveau ($\alpha_2 J_2$) à ($\alpha_1 J_1$) au cours des collisions successives ne sont pas en phase, si bien que l'orientation globale échangée entre les deux systèmes se trouve réduite par un facteur d'autant plus grand que le désaccord de fréquence $|\omega_{\alpha_1} - \omega_{\alpha_2}|$ est plus important. Ainsi, en champ statique non nul, l'échange de moment transversal entre deux systèmes de facteurs de Landé g_{α_1} et g_{α_2} différents se trouve bien moins efficace que le transfert d'orientation longitudinale; cette orientation reste en effet immobile entre deux collisions et peut donc se transférer aisément d'un niveau à l'autre. Cet effet est bien connu et la variation du transfert de cohérence en fonction du champ magnétique appliqué aux atomes a été étudiée en détail (⁷⁶).

Nous nous proposons ici de montrer que la cohérence Zeeman peut s'échanger de façon résonnante entre deux niveaux atomiques en champ statique non nul et même si leurs facteurs de Landé sont différents, pourvu qu'ils soient soumis à l'action d'un champ de radiofréquence linéaire et non résonnant qui modifie de façon convenable leurs moments magnétiques respectifs : si la direction de ce champ habillant est perpendiculaire à celle du champ statique \vec{H}_0 , nous avons montré en effet, au paragraphe précédent, que le facteur de Landé de chacun des niveaux devient :

$$\begin{aligned} \bar{g}_{\alpha_1} &= g_{\alpha_1} J_0 \left[\frac{g_{\alpha_1} \mu_B H_1}{\omega} \right] \\ \bar{g}_{\alpha_2} &= g_{\alpha_2} J_0 \left[\frac{g_{\alpha_2} \mu_B H_1}{\omega} \right] \end{aligned} \quad (V,B,2)$$

Nous avons représenté en traits pleins sur la figure 24 les fréquences de Larmor correspondantes $\overline{\omega}_{\alpha\alpha_1} = -\overline{g}_{\alpha_1} \mu_B H_0$ et $\overline{\omega}_{\alpha\alpha_2} = -\overline{g}_{\alpha_2} \mu_B H_0$ des deux niveaux habillés dans le champ H_0 en fonction de l'amplitude H_1 du champ de radiofréquence. La figure correspond au cas particulier $g_{\alpha_1} = 2g_{\alpha_2}$. On voit que pour plusieurs valeurs de H_1 (points A,B,C, etc.), il doit apparaître des composantes à la même fréquence dans l'orientation transversale des deux niveaux habillés. La condition (V,B,1) est alors remplie pour ces niveaux et un échange de moment transversal doit devenir possible entre eux.

Le couplage des deux niveaux à un même champ de radiofréquence constitue dans une telle expérience un moyen commode de balayer continûment les fréquences propres de Larmor des deux niveaux dans un champ statique donné. Afin de comprendre les principales caractéristiques du transfert résonnant de cohérence observable entre les atomes habillés, nous allons donc commencer par étudier, à l'aide d'un modèle très simple, le problème de l'échange de moment transversal entre deux niveaux atomiques libres de fréquences de Larmor variables (§ V-B-1). Nous montrerons ensuite comment les équations obtenues doivent être modifiées pour décrire l'échange du moment cinétique fictif entre deux niveaux habillés (§ V-B-2). Nous étendrons enfin la théorie à l'étude du transfert d'orientation par collisions d'échange de spin entre deux atomes alcalins différents (§ V-B-3). L'existence de deux niveaux hyperfins dans l'état fondamental de chacun de ces atomes conduit à considérer dans ce cas le couplage entre quatre niveaux atomiques différents (deux par atome), ce qui introduit quelques complications par rapport à la théorie exposée au § V-B-2.

1) Etude quantitative simple de la circulation de cohérence entre deux niveaux atomiques libres

a) équations générales décrivant la circulation de cohérence entre les deux niveaux

Nous appellerons $\langle \overset{\rightarrow}{\alpha_1} \rangle_J$ et $\langle \overset{\rightarrow}{\alpha_2} \rangle_J$ les orientations moyennes des deux niveaux $(\alpha_1 J_1)$ et $(\alpha_2 J_2)$. Nous supposerons que les atomes sont soumis à des collisions au cours desquelles ces orientations se trouvent échangées : lorsqu'un atome donné dans le niveau $(\alpha_1 J_1)$ subit une collision avec un atome "cible" quelconque dans le niveau $(\alpha_2 J_2)$, son orientation moyenne passe de la valeur $\langle \overset{\rightarrow}{\alpha_1} \rangle_J$ à la valeur $\langle \overset{\rightarrow}{\alpha_2} \rangle_J$. La probabilité par unité de temps pour qu'une telle collision $1 \rightarrow 2$ ait lieu, que nous noterons

$$\Gamma_{\alpha_1\alpha_2} = \frac{1}{T_{\alpha_1\alpha_2}},$$

est proportionnelle à la section efficace de collision entre les deux espèces atomiques σ_e , à la vitesse relative moyenne des atomes \bar{v} et au nombre total N_{α_2} d'atomes "cibles" dans le niveau (α_2J_2) :

$$\Gamma_{\alpha_1\alpha_2} = N_{\alpha_2} \sigma_e \bar{v} \quad (V,B,3-a)$$

Sous l'effet de ce processus, le taux de variation de l'orientation atomique dans le niveau (α_1J_1) est simplement donné par l'équation :

$$\frac{d^{(1)}}{dt} \langle (\alpha_1)_{\vec{j}} \rangle = -\Gamma_{\alpha_1\alpha_2} \left[\langle (\alpha_1)_{\vec{j}} \rangle - \langle (\alpha_2)_{\vec{j}} \rangle \right] \quad (V,B,4-a)$$

De même, les collisions d'échange des atomes dans le niveau (α_2J_2) avec les atomes dans (α_1J_1) font évoluer l'orientation moyenne $\langle (\alpha_2)_{\vec{j}} \rangle$ suivant l'équation symétrique :

$$\frac{d^{(1)}}{dt} \langle (\alpha_2)_{\vec{j}} \rangle = -\Gamma_{\alpha_2\alpha_1} \left[\langle (\alpha_2)_{\vec{j}} \rangle - \langle (\alpha_1)_{\vec{j}} \rangle \right] \quad (V,B,4-b)$$

dans laquelle la probabilité de collision $2 \rightarrow 1$ est définie par la relation :

$$\Gamma_{\alpha_2\alpha_1} = N_{\alpha_1} \sigma_e \bar{v} \quad (V,B,3-b)$$

N_{α_1} étant le nombre total d'atomes dans le niveau (α_1J_1) .

Il ressort clairement des équations (V,B,3) que l'on a :

$$\frac{\Gamma_{\alpha_1\alpha_2}}{\Gamma_{\alpha_2\alpha_1}} = \frac{N_{\alpha_2}}{N_{\alpha_1}} \quad (V,B,5)$$

Ainsi, si le niveau (α_2J_2) est beaucoup plus peuplé que le niveau (α_1J_1) , on a l'inégalité :

$$\Gamma_{\alpha_1\alpha_2} \gg \Gamma_{\alpha_2\alpha_1} \quad (V,B,6)$$

et le transfert d'orientation par collision d'échange s'effectue essentiellement de (α_2J_2) vers (α_1J_1) et peut être négligé en sens inverse.

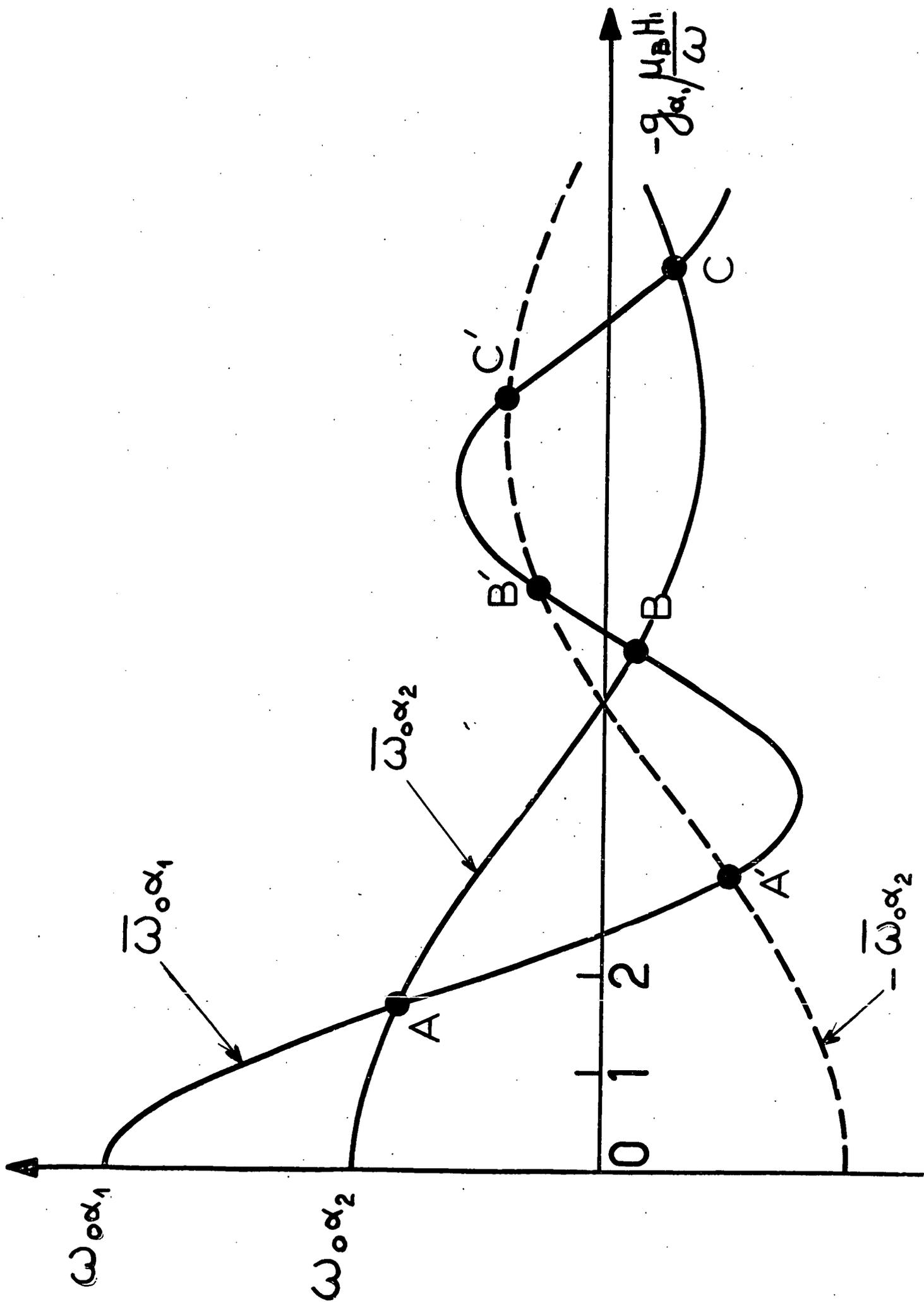


Fig 24

Au processus d'échange proprement dit doivent être ajoutés tous les autres mécanismes responsables de l'amortissement de l'orientation dans les deux niveaux. Nous supposons que cet amortissement est isotrope et s'effectue avec une constante de temps unique pour chaque niveau :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{d^{(2)}}{dt} \langle (\alpha_1)_{\vec{j}} \rangle = -\frac{1}{T_{\alpha_1}} \langle (\alpha_1)_{\vec{j}} \rangle \\ \frac{d^{(2)}}{dt} \langle (\alpha_2)_{\vec{j}} \rangle = -\frac{1}{T_{\alpha_2}} \langle (\alpha_2)_{\vec{j}} \rangle \end{array} \right. \quad (V,B,7)$$

Pour que le processus d'échange soit efficace, sa "vitesse" doit être plus grande que celle de l'amortissement, ou au moins comparable à celle-ci. Nous supposons cette condition remplie et nous écrirons :

$$\Gamma_{\alpha_1\alpha_2} \gtrsim \frac{1}{T_{\alpha_1}}, \frac{1}{T_{\alpha_2}} \quad (V,B,8)$$

(en appelant $\Gamma_{\alpha_1\alpha_2}$ le plus grand des deux coefficients de transfert).

(V,B,8) exprime simplement qu'un échange appréciable a le temps de s'effectuer, au moins dans un sens, avant que l'orientation ne soit détruite dans les deux niveaux.

Le processus global de relaxation des orientations couplées s'obtient en ajoutant les termes d'évolution liés à l'échange (V,B,4) et à l'amortissement (V,B,7) :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{d^{(rel)}}{dt} \langle (\alpha_1)_{\vec{j}} \rangle = -\Gamma_{\alpha_1} \langle (\alpha_1)_{\vec{j}} \rangle + \Gamma_{\alpha_1\alpha_2} \langle (\alpha_2)_{\vec{j}} \rangle \\ \frac{d^{(rel)}}{dt} \langle (\alpha_2)_{\vec{j}} \rangle = \Gamma_{\alpha_2\alpha_1} \langle (\alpha_1)_{\vec{j}} \rangle - \Gamma_{\alpha_2} \langle (\alpha_2)_{\vec{j}} \rangle \end{array} \right. \quad (V,B,9)$$

avec

$$\left\{ \begin{array}{l} \Gamma_{\alpha_1} = \frac{1}{T_{\alpha_1}} + \Gamma_{\alpha_1\alpha_2} \\ \Gamma_{\alpha_2} = \frac{1}{T_{\alpha_2}} + \Gamma_{\alpha_2\alpha_1} \end{array} \right. \quad (V,B,10)$$

Dans les équations (V,B,9), les termes "diagonaux" $-\Gamma_{\alpha_1} \langle (\alpha_1)_{\vec{j}} \rangle$ et $-\Gamma_{\alpha_2} \langle (\alpha_2)_{\vec{j}} \rangle$ décrivent la décroissance de l'orientation de chacun des niveaux sous l'effet des divers processus de relaxation, y compris les collisions responsables de l'échange; les termes "non diagonaux" $\Gamma_{\alpha_1\alpha_2} \langle (\alpha_2)_{\vec{j}} \rangle$ et $\Gamma_{\alpha_2\alpha_1} \langle (\alpha_1)_{\vec{j}} \rangle$ décrivent le transfert d'orientation entre les deux niveaux. Remarquons que ces équations, qui ont une forme vectorielle, représentent des processus de relaxation isotropes qui affectent de façon identique toutes les composantes de l'orientation et ne couplent pas entre elles des composantes de directions différentes.

En présence d'un champ \vec{H}_0 , la forme des équations précédentes n'est pas modifiée, tant que la condition de rétrécissement extrême (II,A,7)

$$\omega_0 \tau_c \ll 1$$

est remplie, ce qui est toujours le cas, étant donnée la durée très courte de collisions d'échange (collisions élastiques de l'ordre de 10^{-11} à 10^{-12} sec.)

L'évolution globale des orientations couplées s'obtiendra donc en ajoutant aux équations (V,B,9) le terme décrivant la précession de Larmor des deux spins. La direction Oz étant réservée pour le champ de radiofréquence qui sera introduit plus loin, nous supposerons \vec{H}_0 aligné le long de Oy et nous définirons à nouveau (cf. § V-A-3) les composantes circulaires droite et gauche de l'orientation par rapport à la direction Oy du champ \vec{H}_0 par les relations :

$$\langle \begin{matrix} (\alpha_1) \\ \alpha_2 \\ J_{\pm} \end{matrix} \rangle_y = \langle \begin{matrix} \alpha_1 \\ \alpha_2 \\ J_z \end{matrix} \rangle \pm i \langle \begin{matrix} \alpha_1 \\ \alpha_2 \\ J_x \end{matrix} \rangle$$

Avec ces définitions, l'évolution propre des orientations transversales autour du champ \vec{H}_0 est décrite simplement par les équations :

$$\frac{d}{dt} \langle \begin{matrix} (3) \\ \alpha_2 \\ J_+ \end{matrix} \rangle_y = i\omega_{\alpha_1} \langle \begin{matrix} (\alpha_1) \\ \alpha_2 \\ J_+ \end{matrix} \rangle_y \quad (V,B,11)$$

et l'évolution globale des cohérences Zeeman dans les deux niveaux s'obtient finalement en ajoutant (V,B,9) et (V,B,11) :

$$\Omega_0 = \frac{\omega_{\alpha_1} + \omega_{\alpha_2}}{2} \quad (\text{V,B,16-a})$$

$$\Gamma_0 = \frac{\Gamma_{\alpha_1} + \Gamma_{\alpha_2}}{2} \quad (\text{V,B,16-b})$$

$$\text{tg } \phi = \frac{\Omega}{\Gamma_1} \quad (\text{V,B,17})$$

On trouve alors pour le transfert d'orientation l'expression :

$$\begin{aligned} \langle (\alpha_1)_{J_z}(t) \rangle &= \frac{\Gamma_{\alpha_1\alpha_2} \langle (\alpha_2)_{J_z}(0) \rangle}{\sqrt{\Gamma_1^2 + \Omega^2}} e^{-\Gamma_0 t} \\ &\times \left[\cos \Omega t \cos (\Omega_0 t - \phi) \text{sh} \Gamma_1 t - \sin \Omega t \sin (\Omega_0 t - \phi) \text{ch} \Gamma_1 t \right] \quad (\text{V,B,18}) \end{aligned}$$

Le signal de transfert est proportionnel à la constante de couplage $\Gamma_{\alpha_1\alpha_2}$ entre les deux niveaux. Il se compose d'une "porteuse" à la fréquence de Larmor moyenne des deux niveaux Ω_0 , modulée en amplitude à la fréquence Ω et amortie avec les constantes de temps $\frac{1}{\Gamma_0 \pm \Gamma_1}$. Ω étant, comme nous le montrons plus bas, toujours très inférieur à Ω_0 , il est possible de définir une amplitude "instantanée" de la porteuse représentant l'enveloppe du signal. Cette enveloppe, que nous appelons $\langle (\alpha_1)_{J_z}(t) \rangle_{\text{env}}$, se met immédiatement sous la forme :

$$\langle (\alpha_1)_{J_z}(t) \rangle_{\text{env}} = \frac{\Gamma_{\alpha_1\alpha_2} \langle (\alpha_2)_{J_z}(0) \rangle}{\sqrt{\Gamma_1^2 + \Omega^2}} e^{-\Gamma_0 t} \sqrt{\text{sh}^2 \Gamma_1 t + \sin^2 \Omega t} \quad (\text{V,B,19})$$

Dans cette formule, les coefficients Γ_1 et Ω dépendent (par l'intermédiaire des quantités a et b) des constantes Γ_{α_1} , Γ_{α_2} , $\Gamma_{\alpha_1\alpha_2}$ et $\Gamma_{\alpha_2\alpha_1}$ ainsi que de la différence des fréquences de Larmor $\omega_{\alpha_1} - \omega_{\alpha_2}$. Leur variation en fonction de cette différence a été représentée sur les figures 25-a et 25-b : Ω est une fonction croissante du désaccord de fréquence des deux niveaux qui s'annule pour $\omega_{\alpha_1} = \omega_{\alpha_2}$ et qui diffère finalement peu de la quantité $(\omega_{\alpha_1} - \omega_{\alpha_2}) / 2$. 2Ω peut donc être considéré comme la fréquence de battement des deux précessions de Larmor et Ω est toujours très petit devant Ω_0 . La quantité Γ_1 est, quant à elle, une fonction décroissante de $|\omega_{\alpha_1} - \omega_{\alpha_2}|$ dont la valeur, comprise entre

$$\frac{|\Gamma_{\alpha_1} - \Gamma_{\alpha_2}|}{2} \quad \text{et} \quad \Gamma_{\alpha_1\alpha_2} \Gamma_{\alpha_2\alpha_1} + \frac{|\Gamma_{\alpha_1} - \Gamma_{\alpha_2}|}{2} \quad \text{est toujours inférieure}$$

à $\Gamma_0 = \frac{\Gamma_{\alpha_1} + \Gamma_{\alpha_2}}{2}$ comme on peut s'en assurer en explicitant Γ_{α_1} et Γ_{α_2} à l'aide de (V,B,10). On peut également montrer simplement, compte tenu des équations (V,B,8) et (V,B,10) que Γ_1 (comme Γ_0) est typiquement de même ordre de grandeur que la constante de couplage $\Gamma_{\alpha_1\alpha_2}$. Enfin, si l'on envisage une situation où le nombre d'atomes N_{α_2} est bien supérieur à N_{α_1} , la condition (V,B,6) est satisfaite et il est facile de voir que les formules (V,B,15) deviennent simplement :

$$\Omega = \frac{\omega_{0\alpha_1} - \omega_{0\alpha_2}}{2} \quad (V,B,20-a)$$

$$\Gamma_2 = \frac{|\Gamma_{\alpha_1} - \Gamma_{\alpha_2}|}{2} \quad (V,B,20-b)$$

Les courbes des figures 25-a et 25-b se réduisent dans ces conditions à leurs asymptotes. 2Ω est alors précisément égal au désaccord des deux fréquences de Larmor et Γ_1 devient indépendant de ce désaccord.

c) Etude du transfert à résonance ($\Omega = 0$)

Lorsque les fréquences de Larmor sont égales dans les deux niveaux, l'expression (V,B,19) s'écrit :

$$\langle \alpha_1 \rangle_{J_z} (t) \rangle_{\text{env}} = \frac{\Gamma_{\alpha_1\alpha_2}}{\Gamma_1} \langle \alpha_2 \rangle_{J_z} (0) \rangle e^{-\Gamma_0 t} \text{sh} \Gamma_1 t \quad (V,B,21)$$

Le signal de transfert se présente comme la somme de deux exponentielles amorties de constantes de temps $\frac{1}{\Gamma_0 \pm \Gamma_1}$ (comme Γ_0 est toujours supérieur à Γ_1 , il s'agit bien de deux exponentielles décroissantes). L'allure de la variation du signal est donnée sur la figure 26-a (correspondant au cas $\Gamma_0 = 3\Gamma_1$), l'orientation du niveau ($\alpha_1 J_1$) le long de Oz commence par croître à partir de zéro, passe par un maximum, puis décroît. Cette variation résulte de l'effet compétitif du transfert résonnant de cohérence qui tend à faire croître le moment transversal dans le niveau ($\alpha_1 J_1$) et des processus de relaxation qui sont la cause de la destruction des orientations atomiques dans les deux niveaux. Il ne faut pas oublier que $\langle \alpha_1 \rangle_{J_z} (t) \rangle_{\text{env}}$ représente l'enveloppe du signal qui est de plus modulé à la fréquence porteuse

$$\Omega_0 = \omega_{0\alpha_1} = \omega_{0\alpha_2} .$$

d) Etude des battements hors de la résonance ($\Omega \neq 0$)

Si les fréquences de Larmor deviennent différentes dans les deux niveaux, on peut réécrire (V,B,19) sous la forme :

$$\langle \alpha_1 \rangle_{J_z(t)} >_{\text{env}} = \frac{\Gamma_{\alpha_1 \alpha_2}}{\Gamma_1} \langle \alpha_2 \rangle_{J_z(0)} > e^{-\Gamma_0 t} \text{sh} \Gamma_1 t F(\Gamma_1, \omega, t) \quad (\text{V,B,22})$$

avec :

$$F(\Gamma_1, \Omega, t) = \frac{\Gamma_1}{\sqrt{\Gamma_1^2 + \Omega^2}} \sqrt{1 + \frac{\sin^2 \Omega t}{\text{sh}^2 \Gamma_1 t}} \quad (\text{V,B,23})$$

$\langle \alpha_1 \rangle_{J_z(t)} >_{\text{env}}$ se présente ainsi comme le produit de l'expression à résonance (V,B,21) par une fonction oscillante et décroissante du temps, $F(\Gamma_1, \Omega, t)$. Le signal de transfert va donc présenter des battements à une fréquence voisine de 2Ω . Cette fréquence correspond, lorsque $N_{\alpha_2} \gg N_{\alpha_1}$, à la différence des fréquences de Larmor des deux niveaux (équation (V,B,20-a)). Tous ces résultats sont bien classiques dans la théorie des circuits oscillants couplés. Nous avons représenté sur les figures 26-b,c et d l'allure du signal de transfert pour diverses valeurs croissantes du rapport Ω/Γ_0 : on constate que l'orientation maximale transférée vers le niveau $(\alpha_1 J_1)$ diminue lorsque Ω augmente et n'est finalement importante que si la condition

$$\Omega \lesssim \Gamma_0$$

est remplie. Ω étant de l'ordre de $\omega_{0\alpha_1} - \omega_{0\alpha_2}$ et Γ_0 de l'ordre de $\Gamma_{\alpha_1 \alpha_2} = \frac{1}{T_{\alpha_1 \alpha_2}}$, on retrouve bien ainsi la condition (V,B,1) nécessaire pour que l'échange transversal entre les deux niveaux soit appréciable. On remarque d'autre part que l'amortissement du signal est d'autant plus rapide que l'on s'éloigne davantage de la condition de résonance $\Omega = 0$; on comprend très bien ce résultat physiquement : à résonance, l'orientation transférée au cours d'une collision de $(\alpha_1 J_1)$ à $(\alpha_2 J_2)$ peut revenir en phase sur $(\alpha_1 J_1)$ à la collision suivante, ce qui justifie l'existence d'une constante de temps longue $\frac{1}{\Gamma_0 - \Gamma_1}$ dans l'expression (V,B,21) du signal. Ce retour en phase est de moins en moins bien assuré lorsqu'on s'éloigne de la résonance, ce qui explique le raccourcissement très sensible de la durée du signal (figures 26-b,c et d).

2) Transfert de cohérence entre deux niveaux atomiques habillés

a) Etude qualitative : apparition de deux familles de résonances

Supposons à présent que les deux niveaux atomiques étudiés au paragraphe précédent aient des fréquences de précession très différentes : le transfert d'orientation transversale est alors négligeable. Proposons-nous de rétablir ce transfert en couplant les deux niveaux à un champ de radiofréquence habillant orienté le long

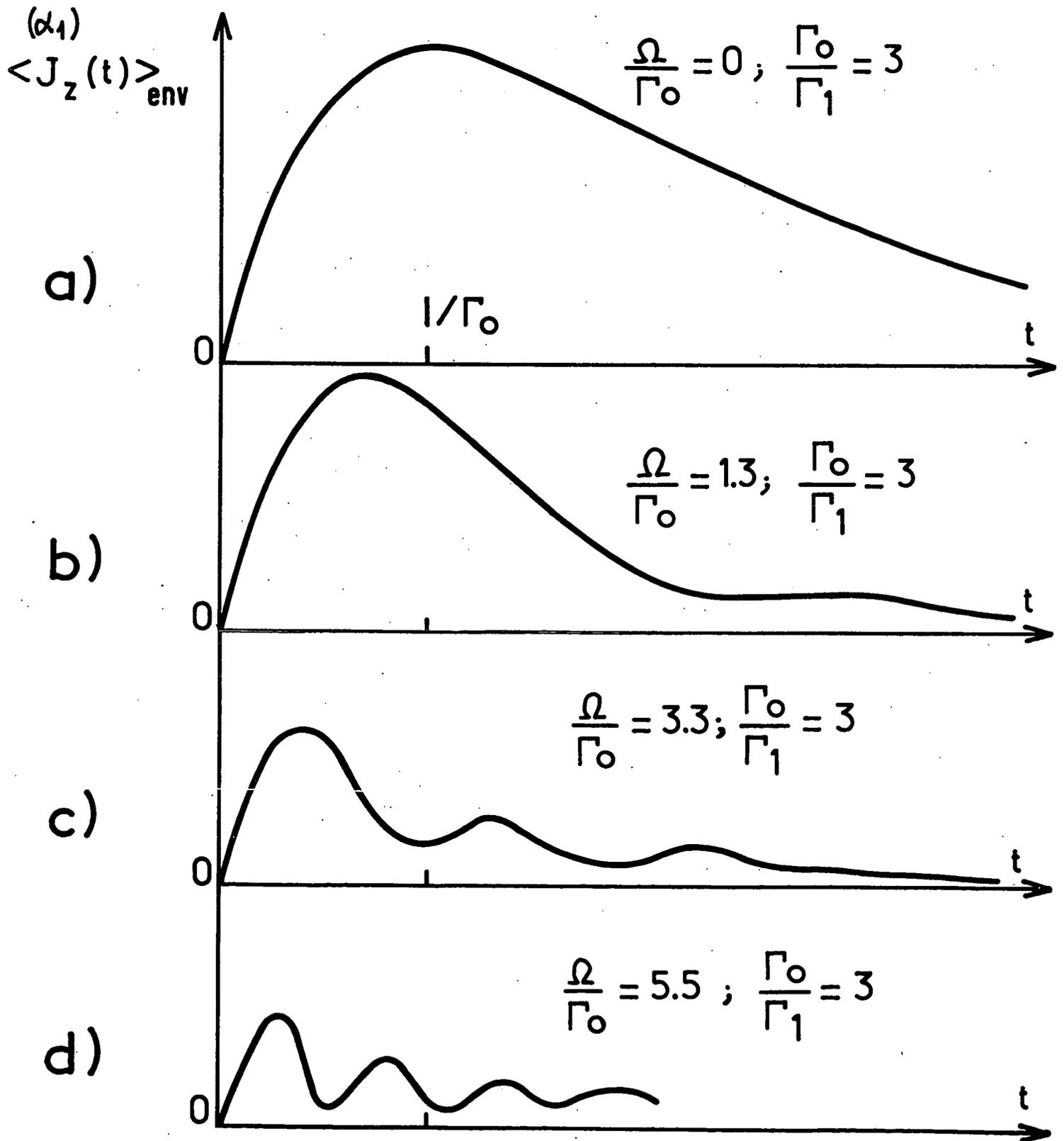
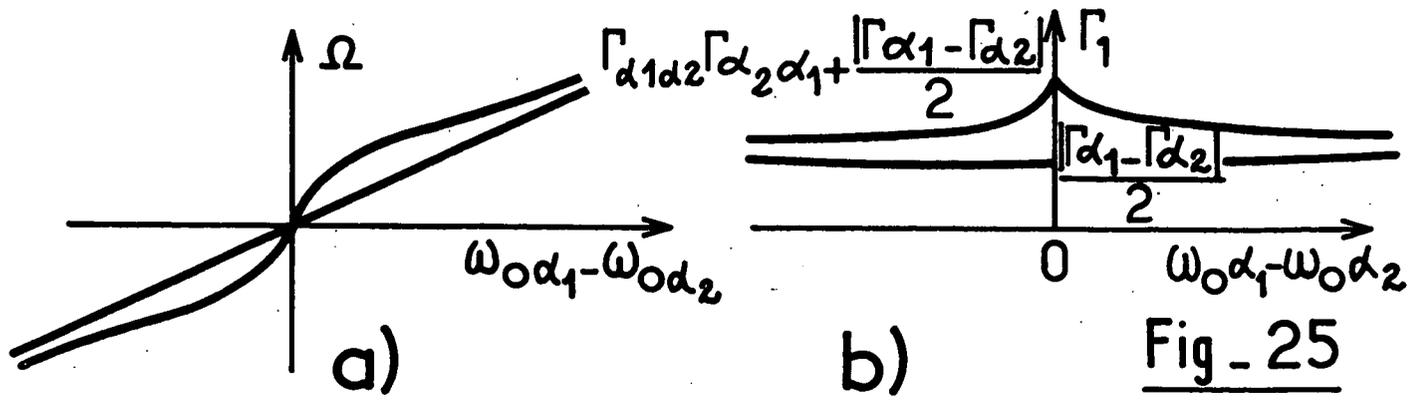


Fig. 26

de Oz, dont la fréquence est très supérieure à $\omega_{\alpha\alpha_1}$ et $\omega_{\alpha\alpha_2}$.

Les orientations transversales dans les deux niveaux vont, dans ces conditions, évoluer aux fréquences de Larmor $\overline{\omega_{\alpha\alpha_1}}$ et $\overline{\omega_{\alpha\alpha_2}}$ des atomes habillés. Leurs précessions vont s'effectuer suivant des mouvements elliptiques qui peuvent se décomposer en deux mouvements circulaires de signes opposés (cf. § V-A-3). Le transfert de cohérence entre les deux niveaux doit donc présenter des variations résonnantes lorsque l'une des composantes circulaires dans l'un des niveaux tourne en phase avec l'une des deux composantes circulaires de l'autre. Il apparaît ainsi deux familles de signaux résonnants bien distincts :

- si $\overline{\omega_{\alpha\alpha_1}} = \overline{\omega_{\alpha\alpha_2}}$ (points d'intersection A, B, C ... des deux courbes en traits pleins de la figure 24), ce sont les composantes ordinaires (ou extraordinaires) des deux niveaux qui évoluent à la même fréquence algébrique et qui peuvent donc s'échanger de façon appréciable; nous qualifierons les signaux de transfert correspondants de "résonances ordinaires"

- au contraire, si $\overline{\omega_{\alpha\alpha_1}} = -\overline{\omega_{\alpha\alpha_2}}$ (points d'intersection A', B', C', etc. de la courbe $\overline{\omega_{\alpha\alpha_1}}$ en traits pleins et de la courbe $-\overline{\omega_{\alpha\alpha_2}}$ en pointillés sur la figure 24), c'est la composante ordinaire de l'un des niveaux qui tourne en phase avec la composante extraordinaire de l'autre; la résonance qui apparaît alors dans le transfert sera qualifiée d' "extraordinaire". Ici, comme dans l'expérience de résonance magnétique, on voit apparaître sur l'atome habillé un effet spécifiquement lié au caractère elliptique de la précession des spins.

b) Problème équivalent : transfert de cohérence entre atomes fictifs

Le calcul exact des signaux de transfert observés dans ces conditions se fait très commodément en utilisant les concepts de champ et de moment cinétique fictifs introduits au paragraphe V-A. L'expérience équivalente correspond au couplage de deux orientations fictives $\langle\langle \alpha_1 \rangle\rangle \vec{j}'$ et $\langle\langle \alpha_2 \rangle\rangle \vec{j}'$ précessant suivant un mouvement circulaire aux fréquences de Larmor $\overline{\omega_{\alpha\alpha_1}}$ et $\overline{\omega_{\alpha\alpha_2}}$ autour d'un champ fictif $\vec{H}'_0 = \vec{H}_0 J_0(\frac{\omega_1}{\omega})$ parallèle à Oy.

On suppose que la direction le long de laquelle l'orientation se trouve introduite dans le niveau $(\alpha_2 J_2)$ à l'instant $t = 0$ et celle selon laquelle elle est détectée dans le niveau $(\alpha_1 J_1)$ à l'instant t est la direction Oz du champ habillant. Le spin réel étant égal au spin fictif dans cette direction (équation (V,A,27)), les conditions de préparation et de détection de l'orientation atomique sont identiques dans l'expérience réelle et dans l'expérience équivalente concernant les moments fictifs :

$$\begin{aligned} \langle\langle {}^{(\alpha_2)} \dot{j}_z(0) \rangle\rangle &= \langle {}^{(\alpha_2)} J_z(0) \rangle \neq 0; \quad \langle {}^{(\alpha_2)} \dot{j}_y(0) \rangle = 0 \\ \langle\langle {}^{(\alpha_1)} \dot{j}(0) \rangle\rangle &= 0 \\ \langle\langle {}^{(\alpha_1)} \dot{j}_z(t) \rangle\rangle &= \langle {}^{(\alpha_1)} J_z(t) \rangle \end{aligned}$$

Pour calculer le signal de transfert, il nous reste donc simplement à établir les équations de couplage entre les orientations fictives des deux niveaux. Ces équations sont différentes des équations (V,B,9) décrivant le transfert d'orientation entre niveaux atomiques libres : les niveaux $(\alpha_1 J_1)$ et $(\alpha_2 J_2)$ couplés entre eux par le processus d'échange ont des facteurs de Landé inégaux et sont donc habillés de façon différente par la radiofréquence; on peut montrer alors (cf. App. IV; §4) que l'efficacité du couplage entre ces niveaux dépend de l'intensité et de la fréquence du champ habillant. De façon plus précise, les équations de transfert (V,B,9) doivent être remplacées par les relations :

$$\left\{ \begin{aligned} \frac{d^{(rel)}}{dt} \langle\langle {}^{(\alpha_1)} \dot{j}_q \rangle\rangle &= -\Gamma_{\alpha_1} \langle\langle {}^{(\alpha_1)} \dot{j}_q \rangle\rangle + \Gamma_{\alpha_1 \alpha_2} J_0(qX_{\alpha_1 \alpha_2}) \langle\langle {}^{(\alpha_2)} \dot{j}_q \rangle\rangle \\ \frac{d^{(rel)}}{dt} \langle\langle {}^{(\alpha_2)} \dot{j}_q \rangle\rangle &= \Gamma_{\alpha_2 \alpha_1} J_0(qX_{\alpha_1 \alpha_2}) \langle\langle {}^{(\alpha_1)} \dot{j}_q \rangle\rangle - \Gamma_{\alpha_2} \langle\langle {}^{(\alpha_2)} \dot{j}_q \rangle\rangle \end{aligned} \right. \quad (V,B,24)$$

Dans ces équations, on a posé :

$$X_{\alpha_1 \alpha_2} = \frac{\mu_B H_1}{\omega} \left[g_{\alpha_1} - g_{\alpha_2} \right] \quad (V,B,25)$$

Les $\langle\langle \dot{j}_q \rangle\rangle$ représentent les composantes du moment fictif rapportées à la direction Oz du champ habillant ($q = \pm 1, 0$). On voit que les constantes non diagonales qui décrivent le transfert d'un niveau à l'autre des composantes transversales par rapport à la radiofréquence ($q = \pm 1$) sont affectées d'un coefficient de réduction numérique $J_0(qX_{\alpha_1 \alpha_2})$ dépendant de la différence des facteurs de Landé des deux niveaux et de l'amplitude du champ habillant. L'origine de cette réduction est la suivante : les composantes du spin fictif $\langle\langle \dot{j} \rangle\rangle$ dont on étudie ici l'évolution sont, d'après (V,A,27), proportionnelles aux composantes "basse fréquence" du spin réel $\langle \vec{J} \rangle$. Dans la direction perpendiculaire à \vec{H}_1 , ce spin réel possède également (équation (V,A,27)) des composantes "haute fréquence" évoluant aux fréquences harmoniques du

champ habillant. Lors de la collision d'échange, une cohérence basse fréquence de l'atome habillé dans l'un des niveaux a une certaine probabilité de se trouver transférée sur une cohérence haute fréquence (entre multiplicités différentes) dans l'autre niveau. Il en résulte un couplage entre grandeurs physiques évoluant à des fréquences très différentes, dont l'efficacité est par suite pratiquement nulle. On peut alors considérer que la cohérence ainsi transférée est perdue pour les atomes habillés et négliger complètement le couplage entre composantes haute et basse fréquence du moment transversal dans les deux niveaux (approximation séculaire). Le couplage résiduel entre les projections transversales basse fréquence du spin réel est donc plus faible que celui correspondant aux projections longitudinales de ce spin qui ne possèdent, quant à elles, pas de composantes haute fréquence (équation (V,A,27)). On comprend ainsi la forme générale des équations (V,B,24). La différence fondamentale entre ces équations et celles qui sont valables pour un atome libre (V,B,9) réside dans le fait que l'échange entre les spins fictifs n'est plus un processus isotrope. Nous allons montrer que c'est précisément l'anisotropie du transfert d'orientation dans l'expérience équivalente relative aux spins fictifs qui permet de justifier l'existence d'un couplage entre les composantes ordinaire et extraordinaire de la précession des spins réels dans les deux niveaux et l'apparition des résonances extraordinaires $\overline{\omega_{0\alpha_1}} = -\overline{\omega_{0\alpha_2}}$ signalées au paragraphe précédent.

Remarques :

(i) Il peut paraître à première vue étrange que les équations (V,B,24) dépendent du couplage avec la radiofréquence, alors que les processus d'échange n'agissent que sur le système atomique et que la condition $\omega_1 \tau_c \ll 1$ est satisfaite pour le champ. En fait, pendant le processus de collision lui-même, les niveaux atomiques peuvent être considérés comme "libres" si bien que globalement les équations d'échange entre les spins de ces niveaux ne dépendent évidemment pas du couplage avec la radiofréquence et sont toujours décrits par (V,B,9). Cependant, comme nous l'avons montré plus haut, nous n'étudions pas ici le transfert "global" de moment cinétique entre les deux niveaux, mais plutôt l'échange des composantes basse fréquence de ce moment cinétique à l'intérieur de chaque multiplicité des niveaux atomiques habillés. En d'autres termes, nous devons tenir compte du recouplage des atomes et de la radiofréquence entre deux collisions d'échange successives et étudier l'évolution couplée des composantes basse fréquence du moment cinétique qui apparaissent dans les deux niveaux sous l'effet de ce recouplage. Ainsi, ce n'est pas à proprement parler la relaxation qui dépend du couplage avec la radiofréquence, mais plutôt les observables

dont nous étudions l'évolution. Il n'est donc pas étonnant que leurs constantes de couplage varient avec l'amplitude du champ habillant.

Il y a d'ailleurs une grande analogie entre le problème traité ici et celui de la relaxation des atomes alcalins dans leur état fondamental (voir § V-B-3) : bien que les processus de relaxation n'affectent que les variables électroniques et que le couplage hyperfin avec le spin nucléaire n'ait souvent pas le temps de se manifester pendant la durée des collisions, les constantes de relaxation des projections de l'orientation électronique dans chacun des niveaux hyperfins de l'état fondamental dépendent, de façon très sensible, de la taille du spin nucléaire auquel le spin électronique est couplé (⁶¹)(⁷⁷).

(ii) Il ne faut pas confondre l'effet décrit ici avec ceux qui résultent des modifications apportées au processus de collision lui-même lorsque la radiofréquence est suffisamment intense pour que la condition $\omega_1 \tau_c \ll 1$ ne soit plus satisfaite. C'est alors le recouplage entre l'atome et le champ pendant le temps de collision et non pas entre deux collisions successives, qui intervient; la relaxation du spin atomique (et non pas seulement celle de ses projections à l'intérieur des multiplicités de l'atome habillé) est alors globalement affectée par le couplage avec la radiofréquence. Nous étudierons cet effet au chapitre VII.

(iii) On notera l'analogie entre les équations de transfert (V,B,24) et les équations de pompage (V,A,25) de l'atome habillé. Ces deux équations décrivent un processus d'échange d'orientation (entre deux niveaux atomiques dans un cas, entre un niveau atomique et le réseau dans l'autre). Dans les deux cas, le couplage avec la radiofréquence réduit l'efficacité du transfert dans les directions transversales (par rapport à \vec{H}_1). Cette réduction est décrite par la fonction de BESSEL J_0 prise pour un argument proportionnel à l'amplitude du champ habillant et à la différence des facteurs de Landé des deux systèmes entre lesquels l'orientation est échangée : dans le cas du pompage (équation (V,A,25)), on peut en effet considérer que le réseau, qui n'est pas affecté par la radiofréquence, a un facteur de Landé nul (s'il s'agit de pompage optique, les photons qui échangent leur moment angulaire avec le système atomique ont naturellement un moment magnétique égal à zéro).

c) Calcul des signaux de transfert

Pour introduire dans les équations (V,B,24) le terme d'évolution propre à la fréquence de Larmor des atomes habillés, nous devons réécrire ces équations non pour les composantes $\ll f_q \gg$ rapportées à l'axe Oz mais pour les composantes circulaires $\ll f_{\pm} \gg_y$ rapportées à la direction Oy du champ \vec{H}_0 . Après un

calcul immédiat, on trouve :

$$\left\{ \begin{aligned} \frac{d}{dt} \langle\langle \overset{(\alpha_1)}{f_+} \rangle\rangle_y &= (i\overline{\omega_{\alpha_1}} - \Gamma_{\alpha_1}) \langle\langle \overset{(\alpha_1)}{f_+} \rangle\rangle_y + \Gamma_{\alpha_1\alpha_2} \left[\frac{1+J_0(X_{\alpha_1\alpha_2})}{2} \right] \langle\langle \overset{(\alpha_2)}{f_+} \rangle\rangle_y \\ &\quad + \Gamma_{\alpha_1\alpha_2} \left[\frac{1-J_0(X_{\alpha_1\alpha_2})}{2} \right] \langle\langle \overset{(\alpha_2)}{f_-} \rangle\rangle_y \\ \frac{d}{dt} \langle\langle \overset{(\alpha_2)}{f_+} \rangle\rangle_y &= \Gamma_{\alpha_2\alpha_1} \left[\frac{1+J_0(X_{\alpha_1\alpha_2})}{2} \right] \langle\langle \overset{(\alpha_1)}{f_+} \rangle\rangle_y + \Gamma_{\alpha_2\alpha_1} \left[\frac{1-J_0(X_{\alpha_1\alpha_2})}{2} \right] \langle\langle \overset{(\alpha_1)}{f_-} \rangle\rangle_y \\ &\quad + (i\overline{\omega_{\alpha_2}} - \Gamma_{\alpha_2}) \langle\langle \overset{(\alpha_2)}{f_+} \rangle\rangle_y \end{aligned} \right. \quad (V,B,26)$$

Ainsi, l'anisotropie de l'échange de Oz et qui affecte différemment les composantes de l'orientation fictive le long de Ox est responsable du couplage entre les composantes circulaires droite et gauche de l'orientation fictive dans les deux niveaux, couplage qui n'existait pas sur l'atome libre. D'après (V,A,22), $\langle\langle \overset{(\alpha_1)}{f_+} \rangle\rangle_y$ et $\langle\langle \overset{(\alpha_2)}{f_-} \rangle\rangle_y$ sont respectivement proportionnels aux composantes ordinaire et extraordinaires de la précession elliptique du vrai moment cinétique dans les deux niveaux qui se trouvent ainsi, comme nous l'indiquons qualitativement au § V-B-2-b), mutuellement couplées entre elles.

Le système d'équations (V,B,26) doit être complété par les deux équations analogues décrivant l'évolution de $\langle\langle \overset{(\alpha_1)}{f_-} \rangle\rangle_y$ et $\langle\langle \overset{(\alpha_2)}{f_+} \rangle\rangle_y$. A première vue, la résolution du système linéaire obtenu qui fait intervenir quatre composantes (au lieu de deux sur l'atome libre) semble beaucoup plus compliquée que celle du système (V,B,12). En fait, il n'en est rien si l'on remarque que parmi ces quatre composantes dont les fréquences sont deux à deux opposées, au plus deux peuvent avoir des fréquences voisines; on peut donc dans ces conditions (approximation séculaire) négliger le couplage non résonnant avec les deux autres. Les deux familles de résonances "ordinaires" et "extraordinaires" apparaissent alors clairement :

a) Si la condition

$$|\overline{\omega_{\alpha_1}} - \overline{\omega_{\alpha_2}}| \lesssim \frac{1}{T_{\alpha_1\alpha_2}} \quad (V,B,27)$$

est remplie (au voisinage des points A,B,C, ... de la figure 24), seul le couplage entre les composantes $\langle\langle \overset{(\alpha_1)}{f_+} \rangle\rangle_y$ et $\langle\langle \overset{(\alpha_2)}{f_+} \rangle\rangle_y$ (ou ce qui revient au même

$\ll^{(\alpha_1)} j_- \gg_y$ et $\ll^{(\alpha_2)} j_- \gg_y$) est important. Les équations (V,B,26) se réduisent à :

$$\begin{cases} \frac{d}{dt} \ll^{(\alpha_1)} j_+ \gg_y = (i\overline{\omega_{\alpha_1}} - \Gamma_{\alpha_1}) \ll^{(\alpha_1)} j_+ \gg_y + \Gamma_{\alpha_1\alpha_2} \left[\frac{1+J_0(X_{\alpha_1\alpha_2})}{2} \right] \ll^{(\alpha_2)} j_+ \gg_y \\ \frac{d}{dt} \ll^{(\alpha_2)} j_+ \gg_y = \Gamma_{\alpha_2\alpha_1} \left[\frac{1+J_0(X_{\alpha_1\alpha_2})}{2} \right] \ll^{(\alpha_1)} j_+ \gg_y + (i\overline{\omega_{\alpha_2}} - \Gamma_{\alpha_2}) \ll^{(\alpha_2)} j_+ \gg_y \end{cases} \quad (V,B,28)$$

et nous sommes ramenés à un problème identique à celui des atomes libres : le signal de transfert se met sous la forme générale (V,B,19) dans laquelle les coefficients de transfert $\Gamma_{\alpha_1\alpha_2}$ et $\Gamma_{\alpha_2\alpha_1}$ sont simplement réduits par un facteur $\left[\frac{1+J_0(X_{\alpha_1\alpha_2})}{2} \right]$, $X_{\alpha_1\alpha_2}$ devant être pris pour la valeur de H_1 correspondant au point de croisement A,B,C ... considéré. Le signal présente donc toutes les caractéristiques décrites au § V-B-1 : variation résonnante lorsque la condition d'accord $\overline{\omega_{\alpha_1}} = \overline{\omega_{\alpha_2}}$ est réalisée, présence de battements à la fréquence différence $\overline{\omega_{\alpha_1}} - \overline{\omega_{\alpha_2}}$ dans le cas contraire, etc.

β) Si c'est par contre la condition

$$|\overline{\omega_{\alpha_1}} + \overline{\omega_{\alpha_2}}| \lesssim \frac{1}{T_{\alpha_1\alpha_2}} \quad (V,B,29)$$

qui est remplie (points A',B',C', ... de la figure 24). C'est le couplage entre les composantes $\ll^{(\alpha_1)} j_+ \gg_y$ et $\ll^{(\alpha_2)} j_- \gg_y$ (ou ce qui revient au même $\ll^{(\alpha_1)} j_- \gg_y$ et $\ll^{(\alpha_2)} j_+ \gg_y$) qui doit être considéré. Les équations de transfert (V,B,26) se réduisent alors à :

$$\begin{cases} \frac{d}{dt} \ll^{(\alpha_1)} j_+ \gg_y = (i\overline{\omega_{\alpha_1}} - \Gamma_{\alpha_1}) \ll^{(\alpha_1)} j_+ \gg_y + \Gamma_{\alpha_1\alpha_2} \left[\frac{1-J_0(X_{\alpha_1\alpha_2})}{2} \right] \ll^{(\alpha_2)} j_- \gg_y \\ \frac{d}{dt} \ll^{(\alpha_2)} j_- \gg_y = \Gamma_{\alpha_2\alpha_1} \left[\frac{1-J_0(X_{\alpha_1\alpha_2})}{2} \right] \ll^{(\alpha_1)} j_+ \gg_y - (i\overline{\omega_{\alpha_2}} + \Gamma_{\alpha_2}) \ll^{(\alpha_2)} j_- \gg_y \end{cases} \quad (V,B,30)$$

Le signal de transfert au voisinage des points A',B',C', etc. se met donc encore sous la forme générale (V,B,19) à condition de réduire $\Gamma_{\alpha_1\alpha_2}$ et $\Gamma_{\alpha_2\alpha_1}$ par le facteur

$$\left[\frac{1-J_0(X_{\alpha_1\alpha_2})}{2} \right] \text{ pris pour la valeur } X_{\alpha_1\alpha_2} \text{ correspondant au point de croisement A' B' C'..}$$

envisagé.

3) Transfert de cohérence entre deux atomes alcalins habillés

a) Rappels sur les collisions d'échange entre atomes alcalins libres

Nous avons été amenés à vérifier les résultats précédents dans des expériences de collision d'échange de spin électronique entre deux variétés différentes d'atomes alcalins (1) et (2) habillés par un champ de radiofréquence et orientés par pompage optique dans une cellule de résonance (⁷⁹) (voir chapitre X). La théorie établie au paragraphe précédent se complique alors du fait de l'existence de spins nucléaires I_1 et I_2 sur chacun des atomes : le couplage hyperfin à $\vec{I} \cdot \vec{S}$ fait en effet apparaître dans l'état fondamental de chacune des deux espèces deux niveaux hyperfins de moment cinétique total $F_1 = I_1 + \frac{1}{2}$ et $F'_1 = I_1 - \frac{1}{2}$ sur l'alcalin (1), $F_2 = I_2 + \frac{1}{2}$ et $F'_2 = I_2 - \frac{1}{2}$ sur l'alcalin (2).

Si l'on néglige le magnétisme nucléaire, les facteurs de Landé sont opposés dans les deux niveaux hyperfins d'un même atome et, à condition que leurs spins nucléaires ne soient pas égaux, différents en valeur absolue pour les deux espèces :

$$\left\{ \begin{array}{l} g_{F_1} = -g_{F'_1} = g_1 = \frac{2}{2I_1 + 1} \\ g_{F_2} = -g_{F'_2} = g_2 = \frac{2}{2I_2 + 1} \end{array} \right. \quad (V,B,31)$$

Le processus d'échange de spin n'agit que sur le spin électronique S de chacun des alcalins et n'affecte pas les noyaux car la collision responsable de l'échange est trop brève pour que le couplage hyperfin ait le temps de se manifester pendant sa durée : en conséquence, les équations d'échange pour les orientations électroniques globales de chacune des espèces (1) et (2) se mettent sous la forme simple (V,B,4) dans laquelle le spin des noyaux n'intervient pas. Après chaque collision cependant, l'interaction hyperfine recouple \vec{I} et \vec{S} sur chacun des atomes et il en résulte qu'en fin de compte l'échange de spin couple entre elles les quatre projections du spin électronique dans chacun des niveaux hyperfins F_1, F'_1, F_2, F'_2 , les constantes de couplage dépendant de la taille des spins nucléaires I_1 et I_2 (voir remarque page 180). L'étude de ce couplage a été effectuée en détail par ailleurs (⁶¹) et nous en rappelons les principales propriétés en Appendice V. Il nous suffit d'indiquer ici qu'à la limite des orientations

électroniques faibles, l'évolution des projections du spin électronique est décrite par un système de quatre équations différentielles linéaires couplées. Pour écrire ces équations simplement, on a intérêt à définir ces projections par les notations résumées dans le tableau suivant (qui rappelle également la fréquence de Larmor dans chacun des niveaux) :

	Niveau hyperfin supérieur de l'alcalin (1) F ₁	Niveau hyperfin supérieur de l'alcalin (2) F ₂	Niveau hyperfin inférieur de l'alcalin (1) F' ₁	Niveau hyperfin inférieur de l'alcalin (2) F' ₂
Projection du spin électronique	$\langle \alpha_1 \vec{S} \rangle$	$\langle \alpha_2 \vec{S} \rangle$	$\langle \alpha_3 \vec{S} \rangle$	$\langle \alpha_4 \vec{S} \rangle$
Fréquence de Larmor	$\omega_{0\alpha_1} = -g_1 \mu_B H_0$	$\omega_{0\alpha_2} = -g_2 \mu_B H_0$	$\omega_{0\alpha_3} = -\omega_{0\alpha_1}$	$\omega_{0\alpha_4} = -\omega_{0\alpha_2}$

On voit ainsi que les indices impairs (α_1 et α_3) sont relatifs aux deux niveaux de l'alcalin (1), les indices pairs (α_2 et α_4) à l'alcalin (2). A partir de ces notations, les équations d'échange s'écrivent :

$$\frac{d}{dt} \langle \alpha_i \vec{S} \rangle = \sum_j \Gamma_{\alpha_i \alpha_j} \langle \alpha_j \vec{S} \rangle \quad (V,B,32)$$

Les constantes $\Gamma_{\alpha_i \alpha_j}$ diagonales sont négatives et décrivent l'amortissement sous l'effet des processus d'échange des orientations dans chacun des niveaux. Les constantes $\Gamma_{\alpha_i \alpha_j}$ non diagonales décrivent le couplage entre les orientations de deux niveaux α_i et α_j situés soit sur le même alcalin, soit sur deux alcalins différents. Dans le premier cas, (i et j de même parité) le couplage est dû aussi bien aux collisions entre atomes de même espèce qu'aux collisions entre espèces différentes qui sont également responsables d'un transfert entre les deux niveaux hyperfins d'un même atome (⁶¹); dans le deuxième cas (i et j de parités opposées), le couplage est dû uniquement aux collisions d'échange entre espèces différentes. Les quantités $\Gamma_{\alpha_i \alpha_j}$ sont données en Appendice V. Elles dépendent de coefficients de couplage fonctions de la taille des spins nucléaires I₁ et I₂,

ainsi que des temps d'échange associés aux processus de collision 1-1, 1-2, 2-1, 2-2. Ces temps d'échange sont inversement proportionnels aux nombres d'atomes des espèces (1) et (2) présents dans la phase vapeur. Ces nombres d'atomes peuvent être modifiés à volonté dans une cellule contenant de la vapeur saturante en variant la température, donc la pression de la phase gazeuse. On dispose ainsi d'un moyen commode pour faire varier continûment l'efficacité du processus d'échange. Dans les conditions expérimentales où nous nous placerons (cf. chapitre X), ces processus dominent toutes les autres causes de relaxation transversale (collisions parois notamment), que nous pouvons donc négliger ici.

b) Transfert de cohérence entre deux atomes alcalins habillés.
Etude qualitative

En présence d'un champ habillant orienté le long de Oz, les fréquences de Larmor de chacun des niveaux dans un champ statique \vec{H}_0 parallèle à Oy deviennent :

$$\overline{\omega_{\alpha\alpha_i}} = -g_{\alpha_i} \mu_B H_0 J_0 \left(g_{\alpha_i} \mu_B \frac{H_1}{\omega} \right)$$

J_0 étant une fonction paire, on peut remplacer dans son argument les deux facteurs de Landé opposés g_{α_1} et g_{α_3} par g_1 , g_{α_2} et g_{α_4} par g_2 ; on en déduit que les fréquences de Larmor des atomes habillés restent opposées dans les deux niveaux hyperfins d'un même atome et s'écrivent :

$$\left\{ \begin{array}{l} \overline{\omega_{\alpha\alpha_1}} = -g_1 \mu_B H_0 J_0 \left(g_1 \mu_B \frac{H_1}{\omega} \right) = -\overline{\omega_{\alpha\alpha_3}} \\ \overline{\omega_{\alpha\alpha_2}} = -g_2 \mu_B H_0 J_0 \left(g_2 \mu_B \frac{H_1}{\omega} \right) = -\overline{\omega_{\alpha\alpha_4}} \end{array} \right. \quad (V,B,33)$$

D'autre part, la précession du spin dans chacun des niveaux devient elliptique et peut être décomposée en deux composantes circulaires de sens contraires; il est clair, d'après (V,B,33), que sur un même alcalin, la composante ordinaire de la précession dans un niveau hyperfin tourne toujours en phase avec la composante extraordinaire de la précession dans l'autre niveau. Nous allons voir que ce résultat complique l'étude du transfert de cohérence entre les deux espèces :

Commençons par négliger l'existence des deux niveaux hyperfins inférieur F'_1 et F'_2 sur les deux alcalins et considérons simplement le couplage des orientations $\langle \alpha_1 \rangle_{\vec{S}}$ et $\langle \alpha_2 \rangle_{\vec{S}}$ dans les deux niveaux supérieurs. Dans le cas où $I_1 = 3/2$ (alcalin (1) constitué par du ^{87}Rb par exemple) et $I_2 = 7/2$ (^{133}Cs par exemple),

on a, d'après (V,B,31), $g_1 = 2g_2$ et les variations des fréquences de Larmor $\overline{\omega_{0\alpha_1}}$ et $\overline{\omega_{0\alpha_2}}$ sont représentées par les courbes en traits pleins de la figure 24; nous sommes alors ramenés exactement au problème du paragraphe précédent : le transfert entre les deux niveaux habillés présente une variation résonnante ordinaire aux points A,B,C ... ($\overline{\omega_{0\alpha_1}} = \overline{\omega_{0\alpha_2}}$) et une variation résonnante "extraordinaire" aux points A',B',C' ... ($\overline{\omega_{0\alpha_1}} = -\overline{\omega_{0\alpha_2}}$).

Prenons à présent en considération l'existence des niveaux hyperfins inférieurs sur chaque atome : il apparaît clairement, d'après (V,B,33) que la condition $\overline{\omega_{0\alpha_1}} = \overline{\omega_{0\alpha_2}}$ peut également s'écrire $\overline{\omega_{0\alpha_1}} = -\overline{\omega_{0\alpha_4}}$; ainsi une résonance ordinaire correspondant au transfert entre les composantes ordinaires des niveaux hyperfins supérieurs F_1 et F_2 coïncide toujours avec une résonance extraordinaire décrivant un transfert entre la composante ordinaire du niveau supérieur F_1 sur l'alcalin (1) et la composante extraordinaire du niveau inférieur F'_2 sur l'alcalin (2). De même, la condition $\overline{\omega_{0\alpha_1}} = -\overline{\omega_{0\alpha_2}}$ s'écrit aussi $\overline{\omega_{0\alpha_1}} = \overline{\omega_{0\alpha_4}}$ si bien qu'une résonance "extraordinaire" dans le transfert entre les deux niveaux hyperfins supérieurs F_1 et F_2 est toujours associée à une résonance ordinaire dans le transfert entre les niveaux F_1 et F'_2 .

Pour nous résumer, il apparaît un signal résonnant en chacun des points A,B,C ..., A',B',C' ... d'intersection des courbes de la figure 24. Chacun de ces signaux est la somme de deux contributions correspondant à une résonance ordinaire et à une résonance extraordinaire, dont la coïncidence provient du fait que les facteurs de Landé sont opposés dans les deux niveaux hyperfins d'un même alcalin.

c) Transfert de cohérence entre deux atomes alcalins habillés.
Etude quantitative

Le calcul effectif du signal détecté se fera, comme au § V-B-2, en étudiant le problème équivalent du couplage des composantes du moment cinétique fictif défini dans chacun des niveaux. Nous appellerons $\langle\langle^{(\alpha_i)} \mathcal{J}_q \rangle\rangle$ la composante de rang q par rapport à la direction Oz du champ habillant de ce moment fictif dans le niveau α_i . L'équation de transfert pour les atomes habillés se met alors sous une forme analogue à (V,B,24) :

$$\frac{d}{dt} \langle\langle^{(\alpha_i)} \mathcal{J}_q \rangle\rangle = \sum_j \overline{\Gamma}_{\alpha_i \alpha_j}^{(q)} \langle\langle^{(\alpha_j)} \mathcal{J}_q \rangle\rangle \quad (V,B,34)$$

en définissant :

$$\overline{\Gamma}_{\alpha_i \alpha_j}^{(q)} = \Gamma_{\alpha_i \alpha_j} J_0 \left[q X_{\alpha_i \alpha_j} \right] \quad (V,B,35)$$

avec :

$$X_{\alpha_i \alpha_j} = (g_{\alpha_i} - g_{\alpha_j}) \mu_B \frac{H_1}{\omega} \quad (V,B,36)$$

Ainsi, comme dans le cas simple du § V-B-2, les constantes de couplage décrivant le transfert entre des composantes du moment fictif transversales par rapport à la direction du champ habillant sont réduites par un facteur dépendant de l'amplitude de la radiofréquence et de la différence des facteurs de Landé des niveaux; les constantes diagonales $\overline{\Gamma}_{\alpha_i \alpha_i}$ ne sont par contre pas modifiées par le couplage avec la radiofréquence ($X_{\alpha_i \alpha_i} = 0$).

Si l'on ajoute aux équations (V,B,34) le terme de précession de Larmor, on obtient des équations analogues à (V,B,26) :

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} \ll (\alpha_i) \mathcal{J}_+ \gg_y &= (i\overline{\omega}_{\alpha_i} + \overline{\Gamma}_{\alpha_i \alpha_i}) \ll (\alpha_i) \mathcal{J}_+ \gg_y \\ &+ \sum_{j \neq i} \frac{\overline{\Gamma}_{\alpha_i \alpha_j}}{2} [1 + J_0(X_{\alpha_i \alpha_j})] \ll (\alpha_j) \mathcal{J}_+ \gg_y \\ &+ \sum_{j \neq i} \frac{\overline{\Gamma}_{\alpha_i \alpha_j}}{2} [1 - J_0(X_{\alpha_i \alpha_j})] \ll (\alpha_j) \mathcal{J}_- \gg_y \end{aligned} \quad (V,B,37)$$

Ces équations décrivent a priori le couplage de 8 composantes différentes du moment fictif (deux par niveau hyperfin). Au voisinage de chacun des points A,B,C, ... A',B',C' ..., l'approximation séculaire permet de réduire à quatre le nombre de ces composantes :

Pour la première famille de résonance (points A,B,C ...), $\ll (\alpha_1) \mathcal{J}_+ \gg_y$ et $\ll (\alpha_3) \mathcal{J}_- \gg_y$ (fréquence $\overline{\omega}_{\alpha_1}$) sont couplés à $\ll (\alpha_2) \mathcal{J}_+ \gg_y$ et $\ll (\alpha_4) \mathcal{J}_- \gg_y$ (fréquence $\overline{\omega}_{\alpha_2}$) et on peut négliger le couplage non résonnant avec les autres composantes; pour la deuxième famille de résonances (points A',B',C', ...), $\ll (\alpha_1) \mathcal{J}_+ \gg_y$ et $\ll (\alpha_3) \mathcal{J}_- \gg_y$ sont couplés à $\ll (\alpha_2) \mathcal{J}_- \gg_y$ et $\ll (\alpha_4) \mathcal{J}_+ \gg_y$.

Ainsi, chaque signal s'obtient en résolvant un système de quatre équations différentielles linéaires décrivant le couplage résonnant ou quasi-résonnant de quatre "oscillateurs" dont les fréquences sont deux à deux égales. Les coefficients de couplage entre ces oscillateurs dépendent non seulement des constantes d'échange entre les deux alcalins, mais aussi de la valeur du champ habillant aux dif-

férents points de croisement de la figure 24 (par l'intermédiaire des coefficients $J_0(X_{\alpha_1 \alpha_j})$). Le calcul de l'orientation transférée dans chaque niveau de l'alcalin (1) à partir d'une orientation initiale présente dans les deux niveaux de l'alcalin (2) peut être effectuée simplement par une résolution numérique des équations (V,B,37) limitées à leurs termes séculaires. Nous analyserons en détail les résultats de ce calcul dans la partie expérimentale de ce travail (chapitre X). Indiquons simplement ici que l'orientation transférée vers le niveau inférieur de l'alcalin (1) reste, en général, très faible, l'échange s'effectuant principalement vers le niveau hyperfin supérieur de cet atome. L'évolution de l'orientation $\langle \alpha_1 \rangle S_z(t)$ dans ce niveau est très analogue à celle que donne la théorie simple du § V-B-1) : à résonance (points A,B,C, ..., A',B',C', ...), l'orientation transférée présente une variation semblable à celle de la figure 26-a, à ceci près que le signal transitoire s'interprète à présent à l'aide non plus de deux mais de quatre constantes de temps; au voisinage de chaque résonance, on observe une modulation du signal très analogue à celles que montrent les figures 26-b, c et d; cette modulation s'interprète à présent comme un battement non plus de deux, mais de quatre oscillateurs de fréquences deux à deux égales.

Enfin, le calcul permet d'obtenir les intensités relatives des signaux de transfert aux points A,B,C, ..., A',B',C' ... de la figure 24. Ces intensités dépendent directement des coefficients d'échange de l'équation (V,B,37) et, en particulier, des coefficients de réduction $1 \pm J_0(X_{\alpha_1 \alpha_j})$ liés à l'habillage. Leur détermination expérimentale permettra donc de tester la validité de la théorie de l'échange sur les alcalins habillés (voir chapitre X).

Nous concluerons ce paragraphe par la remarque suivante : le transfert de cohérence entre deux systèmes atomiques libres de facteurs de Landé différents présente une variation résonnante lorsqu'on balaie le champ statique autour du champ nul (qui est la seule valeur du champ pour laquelle les fréquences d'évolution des deux niveaux sont égales). Nous venons de décrire une situation très différente dans laquelle le couplage avec un champ de radiofréquence $\vec{H}_1 \cos \omega t$ non résonnant introduit, pour certaines valeurs de H_1 , et quel que soit le champ statique H_0 , des fréquences de Larmor égales dans l'évolution des deux systèmes : le transfert de cohérence devient alors indépendant de H_0 mais présente des variations résonnantes lorsqu'on balaie l'amplitude du champ de radiofréquence, ce qui est un effet assez inhabituel.

V-C. PROPRIETES MAGNETIQUES D'UN ATOME HABILLE EN CHAMP STATIQUE FAIBLE PAR DES PHOTONS DE RADIOFREQUENCE POLARISES CIRCULAIREMENT

Nous abordons à présent l'étude des propriétés d'un atome habillé en champ statique \vec{H}_0 faible, par un champ de radiofréquence tournant. L'effet de ce champ est, comme nous l'avons déjà indiqué, assimilable à celui que produirait sur le niveau atomique un champ statique "équivalent" \vec{H}_f , perpendiculaire au plan dans lequel tourne la radiofréquence : en particulier, en champ statique \vec{H}_0 nul, l'orientation atomique est soumise à la précession de Larmor autour de ce champ équivalent \vec{H}_f ; en présence d'un petit champ statique ($\omega_0 \ll \omega$), le champ \vec{H}_f s'ajoute au champ nul et tout se passe comme si le spin atomique précessait autour du champ total $\vec{H}_0 + \vec{H}_f$.

Remarquons tout de suite la différence fondamentale qui existe entre le champ équivalent \vec{H}_f associé au champ tournant et les champs fictifs \vec{H}'_0 que nous avons définis plus haut (§ V-A-2) pour décrire les propriétés d'un atome habillé par un champ de polarisation linéaire : dans ce dernier cas, le champ fictif \vec{H}'_0 se déduit du champ réel \vec{H}_0 par une affinité et s'annule en même temps que ce dernier ; en présence du champ tournant au contraire, un champ équivalent \vec{H}_f non nul subsiste même si $\vec{H}_0 = 0$, ce qui traduit simplement le fait que la dégénérescence des niveaux d'énergie de l'atome habillé est levée en champ nul.

Nous décrivons en détail au § V-C-1 tous les effets physiques qui s'interprètent simplement à l'aide de la notion du champ statique équivalent. Une caractéristique intéressante de ce champ est d'être proportionnel au facteur de Landé du niveau auquel la radiofréquence est couplée. Il s'ensuit que deux niveaux atomiques (pouvant appartenir à un même atome) de facteurs de Landé différents se voient soumis à des champs statiques équivalents distincts. Cette particularité, naturellement impossible à réaliser avec un champ magnétique réel, peut conduire à des effets physiques nouveaux et intéressants. En particulier, les deux niveaux hyperfins de l'état fondamental d'un même atome alcalin, pour lesquels $g_{F_1} = -g_{F_2}$, sont couplés à des champs statiques équivalents opposés : la relaxation de l'orientation transversale sous l'effet des collisions d'échange de spin s'en trouve, comme nous le montrons au § V-C-2, profondément modifiée par rapport à celle qu'on observe lorsque l'atome est plongé dans un vrai champ statique.

1) Champ statique équivalent associé à un champ de radiofréquence tournant

a) L'atome habillé par un champ tournant en champ statique nul

Nous adopterons dans ce paragraphe, comme axe de quantification du système, la direction Oz perpendiculaire au plan du champ tournant. L'hamiltonien de l'atome habillé en champ H_0 nul s'écrit (cf. équation (I,C,4)) :

$$\mathcal{H}'_0 = \omega a^\dagger a + \lambda (J_+ a + J_- a^\dagger) \quad (\text{V,C,1})$$

Ses états propres s'obtiennent à partir de ceux de l'atome habillé en polarisation σ_+ en faisant $\omega_0 = 0$ dans les expressions (III,A,11) et (III,A,13). Ils se groupent en multiplicités \mathcal{E}_n de $(2J+1)$ niveaux chacune, les niveaux $E_{m,n}$ dans chaque multiplicité ayant une énergie $n\omega + m\bar{\omega}_0$ avec :

$$\bar{\omega}_0 = \omega - \sqrt{\omega^2 + \omega_1^2} < 0. \quad (\text{V,C,2})$$

Nous nous limiterons ici au cas où les différentes multiplicités se trouvent bien séparées les unes des autres. Il faut alors que soit remplie la condition :

$$|\bar{\omega}_0| = \sqrt{\omega^2 + \omega_1^2} - \omega \ll \omega$$

ce qui nous restreint à un domaine de couplage faible entre l'atome et la radiofréquence :

$$\omega_1 \ll \omega \quad (\text{V,C,3})$$

Dans ce domaine, l'énergie $\bar{\omega}_0$ peut être assimilée au premier terme de son développement limité en puissances de ω_0/ω :

$$\bar{\omega}_0 \approx -\frac{\omega_1^2}{2\omega} = -\frac{(g_\alpha \mu_B H_1)^2}{2\omega} \quad (\text{V,C,4})$$

Tout se passe alors dans la multiplicité \mathcal{E}_n comme si l'atome habillé était soumis à un hamiltonien Zeeman :

$${}^{nn} \mathcal{H}'_0 = -g_\alpha \mu_B \vec{H}_f \cdot \vec{J} \quad (\text{V,C,5})$$

induit par le champ statique équivalent \vec{H}_f orienté le long de la perpendiculaire Oz au plan du champ tournant et défini par l'équation (cf. équation (I,D,16)) :

$$\left(\vec{H}_f = \frac{g_\alpha \mu_B H_1^2}{2\omega} \vec{e}_z \right) \quad (V,C,6)$$

Il nous sera également utile, pour la suite, de définir les projections du moment cinétique atomique dans les multiplicités de l'atome habillé. Compte tenu de (III,B,35), on obtient :

$${}^{nn}J_q = R_{qq}^{(1)}(\theta) {}^{nn}j_q \quad (V,C,7)$$

Dans cette équation, θ est définie par la relation (I,C,6) prise pour $\omega_0 = 0$:

$$\text{tg } \theta = - \frac{\omega_1}{\omega} \quad (-\pi < \theta < 0)$$

A la limite des couplages faibles qui nous intéresse ici, le paramètre θ est petit et les éléments de matrice de rotation $R_{qq}^{(1)}(\theta)$ sont très voisins de l'unité : on pourra alors assimiler la projection du spin réel dans la multiplicité au spin fictif et écrire :

$${}^{nn}J_q \approx {}^{nn}j_q \quad (V,C,8)$$

b) L'atome habillé en champ statique faible

En présence d'un vrai champ magnétique \vec{H}_0 , l'hamiltonien Zeeman du niveau atomique s'écrit :

$$\mathcal{H}_{at} = -g_\alpha \mu_B \vec{J} \cdot \vec{H}_0$$

Si H_0 est suffisamment faible ($\omega_0 \ll \omega$), on peut considérer ce terme comme une perturbation de l'hamiltonien \mathcal{H}'_0 défini en champ nul.

Les différentes multiplicités \mathcal{E}_n de \mathcal{H}'_0 étant bien séparées les unes des autres (d'où l'importance de l'hypothèse de couplage faible (V,C,3)), cette perturbation sera au premier ordre décrite par sa projection \mathcal{H}_{at} dans chacune de ces multiplicités. Compte tenu de (V,C,8), on pourra écrire :

$${}^{nn}\mathcal{H}_{at} = -g_\alpha \mu_B \vec{H}_0 \cdot {}^{nn}\vec{J} \approx -g_\alpha \mu_B \vec{H}_0 \cdot {}^{nn}\vec{j} \quad (V,C,9)$$

Finalement, les niveaux d'énergie dans chacune des multiplicités sont les états propres de la projection ${}^{nn}\mathcal{H}$ de l'hamiltonien \mathcal{H} de l'atome habillé dans cette multiplicité, qui s'écrit, d'après (V,C,5) et (V,C,9) :

$${}^{nn}\mathcal{H} = {}^{nn}\mathcal{H}_0 + {}^{nn}\mathcal{H}_{at} = -g_\alpha \mu_B [\vec{H}_0 + \vec{H}_f] \cdot {}^{nn}\vec{J} \quad (V,C,10)$$

Tout se passe donc comme si ces états propres appartenait à un niveau atomique libre de spin ${}^{nn}\vec{J}$ soumis à un champ statique total $\vec{H}_0 + \vec{H}_f$, somme géométrique du champ réel et du champ équivalent : si \vec{H}_0 est parallèle à Oz (voir figure 11-a pour $J = 1/2$), le croisement de niveaux de l'atome habillé en champ nul est déplacé et apparaît dans un champ réel égal à $-\vec{H}_f$. Si par contre \vec{H}_0 se trouve dans le plan du champ tournant (c'est-à-dire perpendiculaire à Oz), le champ total prend une valeur minimale égale à H_f lorsque H_0 s'annule et les niveaux de l'atome habillé constituent un anticroisement en champ nul, de "force" $|g_\alpha \mu_B H_f| = \frac{\omega_1^2}{2\omega}$ (voir figure 11-b). Si enfin \vec{H}_0 et \vec{Oz} font un angle quelconque (différent de 0 et $\pi/2$), le champ total passe par une valeur minimale non nulle pour une certaine valeur de H_0 voisine de zéro et on obtient alors un anticroisement de niveaux, déplacé par rapport au champ nul, dont la force dépend de l'angle entre \vec{H}_0 et \vec{H}_f .

c) Précession de Larmor dans le champ équivalent

L'évolution du moment cinétique fictif ${}^{nn}\vec{J}$ de l'atome habillé est donnée par une équation de Heisenberg qui s'écrit en négligeant les termes non séculaires (cf. § V-A-3) :

$$i \frac{d}{dt} {}^{nn}\vec{J} = [{}^{nn}\vec{J}, {}^{nn}\mathcal{H}] \quad (V,C,11)$$

c'est-à-dire encore, compte tenu de (V,C,10) :

$$i \frac{d}{dt} {}^{nn}\vec{J} = [{}^{nn}\vec{J}, -g_\alpha \mu_B (\vec{H}_0 + \vec{H}_f) \cdot {}^{nn}\vec{J}]$$

Cette équation se met, pour les valeurs moyennes, sous la forme :

$$\frac{d}{dt} \langle {}^{nn}\vec{J} \rangle = g_\alpha \mu_B \langle {}^{nn}\vec{J} \rangle \wedge (\vec{H}_0 + \vec{H}_f) \quad (V,C,12)$$

Le spin fictif décrit donc une précession de Larmor sur un cône de révolution autour du champ total $\vec{H}_0 + \vec{H}_f$, à la fréquence $g_\alpha \mu_B |\vec{H}_0 + \vec{H}_f|$. La composante basse fréquence ${}^{nn}\vec{J}$ du spin réel, égale à la limite des couplages faibles au spin fictif ${}^{nn}\vec{J}$ (équation (V,C,8)), subit la même évolution. En particulier, si le champ statique réel \vec{H}_0 est nul, le moment atomique précesse autour de la direction Oz du champ équivalent, perpendiculaire au plan du champ tournant. La fréquence de précession, $-\frac{\omega_1^2}{2\omega}$, est proportionnelle au carré de l'amplitude de ce champ et inversement proportionnelle

à sa pulsation ω . Elle change notamment de signe lorsque le sens de rotation de la radio-fréquence est inversé. Tous ces résultats ont fait l'objet d'une vérification expérimentale détaillée (chapitre IX).

d) Equations de Bloch de l'atome habillé en champ faible

Nous reprenons ici les notations du § V-A-4. Nous supposons que l'équation pilote de l'atome libre est donnée par l'équation (V,A,23) et nous cherchons à établir l'équation correspondante pour le moment fictif $\langle\langle \vec{j} \rangle\rangle = \frac{1}{\mathcal{P}_{(n)}} \langle n n \vec{j} \rangle$ de l'atome habillé. Cette équation se déduit simplement de l'équation pilote générale (III,C,13) en y remplaçant les coefficients ${}^{(s)}A_{q,q}^1$ par leur expression (III,B,38) et en mettant le terme d'évolution propre sous la forme (V,C,12). On obtient alors :

$$\frac{d}{dt} \langle\langle \vec{j}_q \rangle\rangle = \Gamma \sum_s \langle J_{q+s} \rangle_0 R_{q+s,q}^{(1)}(\theta) e^{-is\omega t} - \Gamma \langle\langle \vec{j}_q \rangle\rangle + g_\alpha \mu_B [\langle\langle \vec{j} \rangle\rangle \wedge (\vec{H}_0 + \vec{H}_f)]_q \quad (V,C,13)$$

Le terme source de cette équation présente, comme celui de l'équation (V,A,24), une partie statique et une partie modulée à certaines fréquences $s\omega$ harmoniques de la radio-fréquence. On peut, comme au § V-A-4, faire l'approximation séculaire qui consiste à négliger ces termes modulés dont l'effet sur l'évolution de $\langle\langle \vec{j} \rangle\rangle$ est très faible (la fréquence propre du moment fictif est de l'ordre de $g_\alpha \mu_B H_0 = \omega_0$ et $g_\alpha \mu_B H_f = -\frac{\omega_1^2}{2\omega}$, c'est-à-dire toujours très petite devant ω). On ne gardera donc que le terme source $s = 0$ dans (V,C,13). Ce terme est proportionnel à l'élément de matrice $R_{qq}^{(1)}(\theta)$ qui pourra, à la limite $\frac{\omega_1}{\omega} \ll 1$, être remplacé par l'unité. Finalement, l'équation pilote du moment fictif s'écrit simplement :

$$\frac{d}{dt} \langle\langle \vec{j} \rangle\rangle = \Gamma [\langle \vec{J} \rangle_0 - \langle\langle \vec{j} \rangle\rangle] + g_\alpha \mu_B [\langle\langle \vec{j} \rangle\rangle \wedge (\vec{H}_0 + \vec{H}_f)] \quad (V,C,14)$$

Cette équation a la même forme que l'équation (V,A,23) décrivant l'évolution de l'atome libre : l'évolution du moment fictif est identique à celle du spin d'un atome libre, pompé dans les mêmes conditions que l'atome envisagé dans l'expérience réelle et plongé dans un champ statique $\vec{H}_0 + \vec{H}_f$. L'évolution de la composante "basse fréquence"

du moment cinétique réel s'effectue suivant un mouvement identique (*) (voir équation (V,C,8)). On peut donc, comme dans le cas d'un champ de radiofréquence polarisé linéairement, décrire sans aucun calcul n'importe quelle expérience sur l'atome habillé en champ statique faible, en la ramenant à l'expérience classique correspondante effectuée sur un atome libre en présence du champ équivalent \vec{H}_f . On justifie ainsi de façon précise l'interprétation qualitative que nous avons donnée au § I-D-3-c des résonances de croisement et d'anticroisement de niveaux apparaissant au voisinage du champ statique nul en présence d'un champ de radiofréquence tournant.

2) Circulation de cohérence entre les deux niveaux hyperfins de l'état fondamental d'un atome alcalin habillé par un champ de radiofréquence tournant

Les deux niveaux hyperfins F_1 et F'_1 de l'état fondamental d'un atome alcalin, pour lesquels $g_{F_1} = -g_{F'_1}$ (cf. équation (V,B,31)), sont soumis, en présence d'un champ de radiofréquence tournant, à des champs équivalents opposés $\vec{H}_f = g_{F_1} \frac{\mu_B H_1^2}{2\omega} \vec{e}_z$ et $\vec{H}'_f = g_{F'_1} \frac{\mu_B H_1^2}{2\omega} \vec{e}_z$. Les fréquences de Larmor définies dans ces deux niveaux, $\bar{\omega}_0(F_1) = -g_{F_1} \mu_B H_f$ et $\bar{\omega}_0(F'_1) = -g_{F'_1} \mu_B H'_f$ sont donc égales en présence des champs \vec{H}_f et \vec{H}'_f alors qu'elles sont opposées lorsque l'atome se trouve plongé dans un champ réel. Supposons à présent que les atomes étudiés subissent entre eux des collisions d'échange de spin (collisions entre atomes de même espèce) qui ont pour effet de coupler les orientations dans les deux niveaux hyperfins : la cohérence Zeeman qui ne peut se transférer d'un niveau à l'autre dans un vrai champ \vec{H}_0 (en raison du désaccord de fréquence) pourra par contre circuler de façon résonnante entre les deux niveaux habillés dont les fréquences de Larmor sont égales en grandeur et en signe. Le moment transversal passant d'un niveau à l'autre au cours d'une collision aura dans ces conditions la possibilité de revenir en phase dans le niveau initial à la collision suivante, ce qui se traduira globalement par un allongement très net du temps de vie de la cohérence Zeeman dans la vapeur atomique par rapport à celui que l'on observe en présence d'un vrai champ statique. Nous allons étudier cet effet en comparant de façon détaillée

(*) Il apparaît également dans le mouvement du spin atomique des modulations "rapides" aux fréquences harmoniques de ω , analogues à celles que nous avons signalées dans le cas d'un champ de radiofréquence linéaire. Il est possible de les calculer à partir de la formule générale (III,C,14) reliant les composantes de $\langle \vec{J} \rangle$ à celles de $\langle\langle \vec{j} \rangle\rangle$

l'échange de spin dans un champ réel \vec{H}_0 (§ V-C-2-a) et celui que l'on observe en présence des champs \vec{H}_f et \vec{H}'_f (§ V-C-2-b).

a) Rappels sur les collisions d'échange entre atomes alcalins libres identiques

Nous étudions ici les collisions d'échange entre alcalins de même espèce, et non plus entre deux alcalins différents comme au § V-B. On peut obtenir simplement les équations décrivant l'échange entre les deux niveaux hyperfins F_1 et F'_1 en remplaçant formellement l'alcalin (2) par l'alcalin (1) dans les équations (V,B,32). En explicitant les coefficients de couplage $\Gamma_{\alpha_i \alpha_j}$ (voir Appendice V), on peut écrire ces équations pour les orientations $\langle F_1 \vec{S} \rangle$ et $\langle F'_1 \vec{S} \rangle$ des deux niveaux hyperfins sous la forme :

$$\begin{cases} \frac{d}{dt} \langle F_1 \vec{S} \rangle = -\frac{\nu_1}{T_{11}} \langle F_1 \vec{S} \rangle - \frac{\nu'_1}{T_{11}} \langle F'_1 \vec{S} \rangle \\ \frac{d}{dt} \langle F'_1 \vec{S} \rangle = -\frac{\nu_1}{T_{11}} \langle F_1 \vec{S} \rangle - \frac{\nu'_1}{T_{11}} \langle F'_1 \vec{S} \rangle \end{cases} \quad (V,C,15)$$

Dans (V,C,15), T_{11} représente le temps moyen d'échange, proportionnel au nombre N_1 d'atomes présents dans la cellule; ν_1 et ν'_1 sont des coefficients numériques, calculés en Appendice V, dépendant de la taille du spin nucléaire de l'alcalin.

Dans un champ \vec{H}_0 orienté le long de Oz, il faut compléter (V,C,15) par le terme d'évolution propre de chaque niveau. On obtient pour les composantes $\langle F_1 S_q \rangle$ et $\langle F'_1 S_q \rangle$ du moment cinétique les équations :

$$\begin{cases} \frac{d}{dt} \langle F_1 S_q \rangle = -\frac{\nu_1}{T_{11}} \langle F_1 S_q \rangle - \frac{\nu'_1}{T_{11}} \langle F'_1 S_q \rangle + iq\omega_0(F_1) \langle F_1 S_q \rangle \\ \frac{d}{dt} \langle F'_1 S_q \rangle = -\frac{\nu_1}{T_{11}} \langle F_1 S_q \rangle - \frac{\nu'_1}{T_{11}} \langle F'_1 S_q \rangle + iq\omega_0(F'_1) \langle F'_1 S_q \rangle \end{cases} \quad (V,C,16)$$

avec $\omega_0(F_1) = -\omega_0(F'_1)$.

La résolution de ces équations conduit à des résultats très différents suivant que l'on s'intéresse aux composantes longitudinales ($q = 0$) ou transversales ($q = \pm 1$) de l'orientation.

Dans le premier cas, $\langle F_1 S_z \rangle$ et $\langle F'_1 S_z \rangle$ subissent une évolution couplée décrite par les équations (V,C,16) dans lesquelles on fait $q = 0$. Cette évolution s'effectue avec deux constantes d'amortissement, obtenues comme valeurs propres de

la matrice de relaxation :

$$\begin{pmatrix} -\frac{\nu_1}{T_{11}} & -\frac{\nu'_1}{T_{11}} \\ -\frac{\nu_1}{T_{11}} & -\frac{\nu'_1}{T_{11}} \end{pmatrix}$$

Ces deux valeurs propres sont manifestement zéro et $-\frac{(\nu_1 + \nu'_1)}{T_{11}}$: il apparaît ainsi une constante de temps infinie dans l'évolution des orientations longitudinales couplées par les collisions d'échange. Ce résultat peut d'ailleurs s'établir d'une autre façon si l'on remarque, en retranchant les deux équations (V,C,15) l'une de l'autre, que la différence des orientations longitudinales dans les deux niveaux est une constante du mouvement : en d'autres termes, cette différence évolue sous l'effet de l'échange de spin avec une constante de temps infinie. Cette propriété est d'ailleurs bien connue ⁽⁶¹⁾ (*): elle signifie que les collisions d'échange à elles seules ne peuvent détruire complètement une orientation électronique longitudinale introduite initialement dans le système. Ce résultat traduit simplement le fait que le moment longitudinal, qui reste immobile dans chaque niveau entre deux collisions, peut circuler facilement entre les deux niveaux et ne se perd pas complètement au cours des collisions successives.

Il n'en est pas de même pour le moment transversal ($q \neq 0$) qui est, quant à lui, définitivement perdu pour le système atomique lorsqu'il passe d'un niveau à l'autre et qui subit donc un amortissement très efficace sous l'effet des collisions d'échange : il suffit, pour s'en rendre compte, de considérer à nouveau les équations (V,C,16) pour $q \neq 0$. Ces équations décrivent à présent le couplage entre deux "oscillateurs" de fréquences propres opposées. L'approximation séculaire permet alors de les découpler et d'écrire pour chacun d'eux une équation d'évolution séparée :

(*) On peut retrouver simplement ce résultat si l'on remarque que l'on a $\langle F_1 S_z \rangle = g_{F_1} \langle F_1 \rangle_z$ et $\langle F'_1 S_z \rangle = g_{F'_1} \langle F'_1 \rangle_z = -g_{F_1} \langle F_1 \rangle_z$ (théorème de WIGNER-ECKART). La différence des orientations électroniques longitudinales dans les deux niveaux est donc proportionnelle à la composante sur Oz du moment cinétique total. F_z est une constante du mouvement, ce qui explique pourquoi la constante de temps de relaxation correspondante est infinie.

$$\begin{cases} \frac{d}{dt} \langle F_1 S_q \rangle = (iq\omega_0(F_1) - \frac{\nu_1}{T_{11}}) \langle F_1 S_q \rangle \\ \frac{d}{dt} \langle F'_1 S_q \rangle = (iq\omega_0(F'_1) - \frac{\nu'_1}{T_{11}}) \langle F'_1 S_q \rangle \end{cases} \quad (V,C,17)$$

Ces équations décrivent l'amortissement du moment transversal dans chacun des niveaux avec une constante de temps unique $\frac{\nu_1}{T_{11}}$ ou $\frac{\nu'_1}{T_{11}}$ différente de zéro. Cette constante de temps est d'autant plus courte que le temps d'échange T_{11} est plus petit, c'est-à-dire encore que la pression de la vapeur atomique est plus importante.

b) Transfert d'orientation entre les deux niveaux hyperfins d'un atome alcalin habillé par un champ de radiofréquence tournant

Nous supposons dans tout ce qui suit le champ statique réel \vec{H}_0 nul. Nous appellerons $\langle\langle F_1 \mathcal{S}_q \rangle\rangle$ et $\langle\langle F'_1 \mathcal{S}_q \rangle\rangle$ les composantes réduites de l'orientation "fictive" dans les deux niveaux hyperfins. On montre alors (cf. Appendice IV) que les équations de transfert (V,C,16) deviennent, pour ces composantes :

$$\begin{cases} \frac{d}{dt} \langle\langle F_1 \mathcal{S}_q \rangle\rangle = -\frac{\nu_1}{T_{11}} \langle\langle F_1 \mathcal{S}_q \rangle\rangle - \frac{\nu'_1}{T_{11}} R_{qq}^{(1)}(\theta_1 - \theta'_1) \langle\langle F'_1 \mathcal{S}_q \rangle\rangle + iq\bar{\omega}_0(F_1) \langle\langle F_1 \mathcal{S}_q \rangle\rangle \\ \frac{d}{dt} \langle\langle F'_1 \mathcal{S}_q \rangle\rangle = -\frac{\nu_1}{T_{11}} R_{qq}^{(1)}(\theta_1 - \theta'_1) \langle\langle F_1 \mathcal{S}_q \rangle\rangle - \frac{\nu'_1}{T_{11}} \langle\langle F'_1 \mathcal{S}_q \rangle\rangle + iq\bar{\omega}_0(F'_1) \langle\langle F'_1 \mathcal{S}_q \rangle\rangle \end{cases} \quad (V,C,18)$$

avec $\bar{\omega}_0(F_1) = \bar{\omega}_0(F'_1) = -g_{F_1} \mu_B H_f = -g_{F'_1} \mu_B H'_f$

On note sur les équations (V,C,18) une première différence par rapport à (V,C,16) : les coefficients de transfert "non diagonaux" entre niveaux différents sont réduits par un facteur $R_{qq}^{(1)}(\theta_1 - \theta'_1)$. Ce facteur dépend de la différence des angles θ_1 et θ'_1 qui caractérisent le couplage entre l'atome et la radiofréquence dans les deux niveaux et qui sont définis par les relations :

$$\text{tg } \theta_1 = \frac{g_{F_1} \mu_B H_1}{\omega}, \quad \text{tg } \theta'_1 = \frac{g_{F'_1} \mu_B H_1}{\omega} = -\text{tg } \theta_1$$

(on notera l'analogie entre ce facteur et celui qui, dans le cas d'un champ de radiofréquence polarisé linéairement, réduit l'efficacité du transfert entre deux niveaux habillés de facteurs de Landé différents. Voir équation (V,B,24)).

A la limite des couplages faibles entre l'atome et la radiofréquence, on a d'ailleurs $\theta_1 \approx \theta'_1 \approx 0$ et on peut remplacer dans (V,C,18) ce facteur de réduction par l'unité. La seule différence qui subsiste alors entre (V,C,18) et (V,C,16) provient du fait que les fréquences propres des orientations transversales dans les deux niveaux sont à présent égales et non plus opposées. Pour étudier l'évolution des cohérences Zeeman, il n'est plus possible de faire une approximation séculaire pour découpler les deux orientations.

Afin d'étudier l'évolution couplée des deux cohérences ($q \neq 0$), nous avons intérêt à nous placer dans le "référentiel tournant" commun aux deux orientations transversales fictives en effectuant la transformation suivante :

$$\left\{ \begin{array}{l} \langle\langle F_1 \tilde{\mathcal{J}}_q \rangle\rangle = \langle\langle F_1 \mathcal{J}_q \rangle\rangle e^{-iq\bar{\omega}_0(F_1)t} \\ \langle\langle F'_1 \tilde{\mathcal{J}}_q \rangle\rangle = \langle\langle F'_1 \mathcal{J}_q \rangle\rangle e^{-iq\bar{\omega}_0(F'_1)t} \end{array} \right. \quad (V,C,19)$$

Dans ce référentiel, l'évolution propre dans les champs équivalents \vec{H}_f et \vec{H}'_f est éliminée des équations (V,C,18) et nous sommes ramenés à des équations couplées formellement identiques à celles de l'orientation longitudinale sur l'atome libre :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{d}{dt} \langle\langle F_1 \tilde{\mathcal{J}}_q \rangle\rangle = -\frac{\nu_1}{T_{11}} \langle\langle F_1 \tilde{\mathcal{J}}_q \rangle\rangle - \frac{\nu'_1}{T_{11}} \langle\langle F'_1 \tilde{\mathcal{J}}_q \rangle\rangle \\ \frac{d}{dt} \langle\langle F'_1 \tilde{\mathcal{J}}_q \rangle\rangle = -\frac{\nu_1}{T_{11}} \langle\langle F_1 \tilde{\mathcal{J}}_q \rangle\rangle - \frac{\nu'_1}{T_{11}} \langle\langle F'_1 \tilde{\mathcal{J}}_q \rangle\rangle \end{array} \right. \quad (V,C,20)$$

Il apparaît donc dans le mouvement des orientations transversales de l'atome habillé une constante de temps infinie qui traduit l'existence d'une circulation de cohérence importante entre les deux niveaux. Dans une expérience réelle, l'orientation atomique est soumise à d'autres processus de relaxation que les collisions d'échange (collisions sur les parois de la cellule contenant la vapeur atomique par exemple). Ces processus vont contribuer à détruire l'orientation dans le système, dont la constante de temps longue ne peut physiquement rester infinie. On peut rendre compte phénoménologiquement de ces processus en ajoutant aux équations (V,C,20) un terme de relaxation diagonal et isotrope introduisant dans chacun des niveaux une largeur supplémentaire $1/T_1$. Les deux nouvelles constantes d'amortissement de l'orientation atomique transversale deviennent alors $1/T_1$ et $\frac{\nu_1 + \nu'_1}{T_{11}} + \frac{1}{T_1}$. La constante de temps "longue" de la relaxation n'est

alors plus infinie, mais égale précisément à T_1 . Elle se trouve donc déterminée par tous les processus de relaxation, à l'exclusion de l'échange de spin et est donc en particulier indépendante de la pression de vapeur alcaline dans la cellule.

Supposons-nous placés dans des conditions expérimentales telles que le temps d'échange T_{11} soit très court devant T_1 et comparons la relaxation transversale de l'orientation atomique en présence d'un champ \vec{H}_0 réel et des champs équivalents \vec{H}_f et \vec{H}'_f : dans le premier cas, la relaxation transversale de l'atome libre est nettement dominée par les collisions d'échange (équation (V,C,17)); dans le second cas au contraire, nous venons de voir que l'échange n'intervient pas dans la relaxation (tout au moins après que la contribution de la constante de temps courte se soit amortie) et la constante de temps "longue" T_1 est beaucoup plus grande que T_{11} : on observera donc un allongement très net du temps moyen de relaxation transversale qui passe d'une valeur de l'ordre de T_{11} à T_1 . Nous avons vérifié cet effet en détail en étudiant la ^{précession} transitoire de l'orientation transversale sur une vapeur de ^{87}Rb (chapitre X).

On notera, pour finir, l'analogie de l'effet étudié ici avec celui que nous avons décrit au § V-B : dans les deux cas, une circulation de cohérence entre deux niveaux atomiques de facteur de Landé différents est obtenue grâce à l'interaction avec un champ de radiofréquence habillant. Dans le premier cas cependant (§ V-B), cette circulation de cohérence était mise en évidence par un transfert d'orientation d'un niveau à l'autre sur deux variétés atomiques différentes, alors qu'ici elle se manifeste expérimentalement par un allongement sensible de la durée de vie de la cohérence Zeeman dans une vapeur contenant une seule espèce d'atomes.

Indiquons, pour finir, que les propriétés magnétiques en champ statique faible d'un atome en interaction avec un champ de radiofréquence peuvent se manifester par d'autres effets que ceux que nous avons décrits dans ce chapitre. Nous aurons notamment l'occasion d'étudier, au cours des chapitres suivants, les modifications apportées par le couplage avec le champ habillant au spectre Zeeman (§ VI-B) et à la relaxation magnétique (chapitre VII) d'un système atomique.

C H A P I T R E VI

ABSORPTION ET DIFFUSION D'UN DEUXIEME CHAMP ELECTROMAGNETIQUE PAR L'ATOME HABILLE.

INTRODUCTION

Le couplage simultané d'un système atomique avec deux (ou plusieurs) champs électromagnétiques est un problème très général (par exemple en Optique non Linéaire), qui a fait l'objet de multiples études dans des formalismes variés, l'intérêt s'étant particulièrement porté sur ce domaine de la physique depuis l'avènement des lasers : c'est ainsi qu'ont été étudiées les transitions à plusieurs quanta impliquant plusieurs types de photons (⁷⁸), les différents effets Raman ordinaire, stimulé ou inverse (⁷⁹), la conversion de fréquence (⁸⁰), l'amplification paramétrique (^{80,81}). La plupart des théories qui rendent compte de ces phénomènes reposent sur le calcul des polarisabilités ou susceptibilités non linéaires effectué aux différents ordres des champs qui perturbent le système atomique. Lorsque l'intensité de ces champs devient très importante, il faut tenir compte de leur action à des ordres de plus en plus élevés et la théorie classique des perturbations devient très vite inadéquate.

Le formalisme de l'atome habillé nous conduit à aborder le problème d'une façon différente en considérant que le champ d'intensité la plus faible (champ "sonde" S) est absorbé ou diffusé par le système global constitué par l'atome en interaction avec les photons du champ le plus intense (*) (champ habillant). Ce point de vue nous permet de décrire d'emblée et à tous les ordres, de façon simple et synthétique grâce aux diagrammes d'énergie de l'atome habillé, tous les effets non linéaires induits par le champ intense. On supposera par contre ici que le champ sonde perturbe à lui seul très peu le système atomique et ses effets seront considérés uniquement à l'ordre le plus bas auquel ils se manifestent.

Nous commencerons par étudier de façon générale le spectre d'absorption de ce champ "sonde" par l'atome habillé (§ VI-A). Comme nous l'avons déjà signalé

(*) Le champ intense est dans cette étude un champ de radiofréquence. Cette restriction n'est cependant pas fondamentale et le formalisme développé ici s'applique aussi bien au cas où il s'agit par exemple du champ d'une onde laser monochromatique (voir référence (⁸²)).

(au § I-E- 1) les différentes transitions apparaissant dans ce spectre correspondent simplement aux fréquences de Bohr de l'hamiltonien \mathcal{H} . Ces transitions sont associées à différents effets bien connus (absorption simultanée de plusieurs quanta, effet Raman inverse, effet Autler-Townes, ...) dont nous donnerons une interprétation simple dans notre formalisme ainsi qu'un calcul valable quelle que soit l'amplitude du champ intense. Nous étudierons ensuite plus particulièrement le spectre d'absorption Zeeman de l'atome habillé en champ statique faible (§ VI-B). Cette étude nous permettra de mettre en évidence à l'aide du champ "sonde" la modification du facteur de Landé atomique (dans le cas du couplage avec un champ de radiofréquence polarisé linéairement) ou encore l'effet Zeeman atomique dans les champs statiques équivalents à un champ de radiofréquence tournant. Nous abordons enfin au § VI-C le problème important de la diffusion du champ sonde par l'atome habillé. Ici encore, le simple examen des niveaux d'énergie de \mathcal{H} permet de comprendre et de calculer un certain nombre d'effets importants dont certains ont déjà été signalés au chapitre I (double résonance, effet Franken de l'atome habillé, conversion de fréquence sur le champ sonde, etc.). Afin de bien dégager le lien qui existe entre l'approche perturbative signalée plus haut et le point de vue synthétique de l'atome habillé adopté ici, nous commencerons par décrire ces effets à l'aide de diagrammes de Feynman "visualisant" aux ordres les plus bas du couplage avec la radiofréquence les processus élémentaires d'absorption et d'émission des deux types de photons par le système atomique. Nous serons alors à même de donner, dans ce point de vue perturbatif, une nouvelle interprétation intéressante des diverses résonances de diffusion décrites au § I-E- 1. Nous montrerons pour finir comment, en resumant formellement les diagrammes aux différents ordres, on effectue le raccord entre la théorie perturbative et celle de l'atome habillé. Nous mettrons ainsi clairement en évidence les avantages de ce dernier formalisme qui résume sous une forme compacte tous les processus d'interaction avec le champ de radiofréquence.

VI-A. ETUDE GENERALE DU SPECTRE D'ABSORPTION DE L'ATOME HABILLE

1) Introduction. Position du problème

Nous nous proposons, dans ce paragraphe, d'étudier les caractéristiques des différentes raies d'absorption observables lorsqu'on envoie sur l'atome habillé par un champ de radiofréquence une onde sonde monochromatique. L'hamiltonien

d'interaction avec cette onde sera, pour l'instant, traité classiquement et décrit par une équation analogue à (I,A,21) :

$$\mathcal{H}_I(t) = -h_1 \vec{e} \cdot \vec{M} e^{-i\Omega t} + \text{c.c.} \quad (\text{VI,A,1})$$

dans laquelle h_1 représente l'amplitude de l'onde sonde de pulsation Ω , \vec{e} sa polarisation et \vec{M} l'opérateur dipolaire responsable de la transition (*).

Soient αJ et $\alpha' J'$ deux niveaux atomiques couplés entre eux par le champ "sonde". Nous appellerons $\Omega_0 = E_{\alpha} - E_{\alpha'}$, la fréquence de Bohr séparant en champ nul ces deux niveaux et nous supposerons (cf. § I-E-1) que seul le champ "sonde" peut les coupler entre eux, le champ de radiofréquence habillant agissant uniquement à l'intérieur de chacun des niveaux (sa fréquence ω est très petite devant Ω_0 si bien que l'on peut totalement négliger le couplage éventuel à plusieurs quanta induit par ce champ entre αJ et $\alpha' J'$). Nous appellerons, comme au chapitre V, $\bar{\omega}_{\alpha\alpha'}$ et $\bar{\omega}_{\alpha'\alpha}$, la séparation des sous-niveaux dans les différentes multiplicités des deux niveaux habillés en présence d'un champ statique H_0 donné. Ces quantités dépendent du rapport gyromagnétique de chacun des niveaux. Enfin, nous attribuerons à chacun des états propres de l'atome habillé une largeur Γ indépendante du niveau considéré et de l'intensité du champ habillant (nous avons vu au chapitre II qu'une telle situation correspond au cas où l'atome est soumis à un processus de relaxation isotrope avec une seule constante de temps $1/\Gamma$).

Supposons que, par un procédé de pompage quelconque, on soit capable de réaliser entre les deux niveaux $|\bar{a}\rangle = |\alpha' J', m', n'\rangle$ et $|\bar{b}\rangle = |\alpha J, m, n\rangle$ une différence de populations $\Delta P_{\bar{a}\bar{b}} = \rho_{\bar{a}\bar{a}}^{(h)} - \rho_{\bar{b}\bar{b}}^{(h)}$ et que l'on irradie le système avec un champ "sonde" (S) de fréquence Ω variable : la puissance absorbée sur ce champ présentera alors une variation résonnante à la fréquence de la transition entre les deux niveaux $|\bar{a}\rangle$ et $|\bar{b}\rangle$. A la limite où l'intensité du champ "sonde" est très faible, le signal d'absorption S_A détecté sur ce champ est donné par un calcul classique de la théorie des perturbations dépendant du temps :

(*) Nous adoptons, dans les paragraphes VI-A et VI-B, des notations (\vec{h}_1 et \vec{M}) généralement réservées aux transitions dipolaires magnétiques. En effet, les champs "sonde" que nous avons utilisés pour nos expériences sont des champs magnétiques d'hyperfréquence à l'aide desquels il est aisé d'effectuer une excitation monochromatique du système atomique (voir Note page 26) concernant la difficulté de réaliser une telle excitation dans le domaine optique).

$$S_A = \frac{\Delta P}{a b} \frac{h_1^2 |\langle \alpha' J', m', n' | \vec{e} \cdot \vec{M} | \alpha J, m, n \rangle|^2}{\Gamma^2 + [\Omega - \Omega_0 + (n' - n)\omega + m' \overline{\omega_{\alpha\alpha'}} - m \overline{\omega_{\alpha\alpha}}]^2} \quad (\text{VI,A,2})$$

La résonance observée a donc une intensité proportionnelle au carré de l'amplitude du champ "sonde", à la différence des populations induites entre les deux niveaux par le pompage et au carré de l'élément de matrice dipolaire magnétique entre ces niveaux. Quant à la largeur de la résonance, elle est déterminée uniquement par la largeur naturelle Γ et ne dépend en particulier pas du tout de l'amplitude du champ habillant.

La formule (VI,A,2) peut s'appliquer également au cas où les deux niveaux (αJ) et ($\alpha' J'$) sont confondus (on a alors simplement $\Omega_0 = 0$). L'étude d'une telle situation a d'ailleurs été abordée au chapitre précédent (§ V-A-4-c) où nous avons décrit la résonance magnétique en champ tournant d'un atome habillé par un champ de radiofréquence linéaire. Nous avons notamment montré que la perturbation apportée aux niveaux d'énergie atomiques par le champ de radiofréquence modifiait la position de la raie de résonance magnétique ordinaire observée sur le champ "sonde" et faisait apparaître une raie extraordinaire dans le champ magnétique statique opposé. Nous avons d'autre part signalé (remarque page 166) qu'il devait apparaître également d'autres raies d'absorption du champ "sonde" correspondant à des transitions entre multiplicités différentes de l'atome habillé. Tous ces résultats sont implicitement contenus dans la formule (VI,A,2) et des effets analogues (modification des caractéristiques des transitions observables en absence de radiofréquence et apparition de nouvelles transitions) se produisent lorsque les deux niveaux αJ et $\alpha' J'$ sont distincts. Nous allons à présent étudier ces effets de façon générale en les rattachant aux phénomènes bien connus d'optique non linéaire signalés plus haut qui impliquent l'absorption d'un photon du champ "sonde" et l'interaction simultanée de l'atome avec un ou plusieurs photons du champ habillant. Nous nous limiterons, pour fixer les idées, au cas où les transitions s'effectuent entre deux niveaux différents ($\Omega_0 \neq 0$); nous supposons également, comme nous l'avons déjà fait au § I-E-1, que le couplage avec le champ habillant est négligeable dans le niveau inférieur $\alpha' J'$ de la transition. Cette dernière hypothèse, tout en simplifiant notre étude, nous permettra de mettre en évidence clairement l'ensemble des phénomènes qui se retrouvent dans le cas général d'une transition entre deux niveaux atomiques quelconques (voir § VI-B).

Nous commencerons par envisager les différents types de transitions observables loin d'un anticroisement de niveaux de l'atome habillé (§ VI-A-2), ce qui nous permettra de bien comprendre le double rôle joué dans ces processus par les photons du champ habillant (§ VI-A-3). Nous aborderons ensuite l'étude du spectre

d'absorption au voisinage des anticroisements de niveaux de l'atome habillé et donnerons une interprétation et un calcul simples de la démultiplication des raies d'absorption (effet AUTLER-TOWNES) que l'on observe alors (§ VI-A-4). Nous établirons enfin une règle de somme générale satisfaite par les intensités des raies d'absorption sur le champ "sonde" (§ VI-A-5); cette règle nous permettra de montrer que l'absorption d'une raie large par l'atome habillé est la même que si l'atome était libre et ne dépend pas des caractéristiques de la radiofréquence; nous donnerons une justification physique de ce résultat.

2) Les différents types de transitions observables loin d'un anticroisement

Reprenons l'exemple d'un niveau excité de spin $J = 1/2$ (cf. § I-E-1). Nous avons vu que le niveau fondamental ($\alpha'J'$) ne peut avoir un spin nul (car la transition $0 \rightarrow 1/2$ est interdite; voir Note page 65); nous supposons qu'il a également un spin $J' = 1/2$, mais un rapport gyromagnétique beaucoup plus faible que celui de l'état excité. La figure 27-a rappelle, dans ces conditions, le diagramme Zeeman de l'atome libre dans un champ H_0 . Si le champ "sonde" (S) a une polarisation circulaire droite (que nous noterons $\sigma_+^{(S)}$ pour distinguer les notations relatives aux polarisations du champ "sonde" et du champ habillant), on observera une raie d'absorption (flèche en traits pleins sur la figure 27-a) à la fréquence $\Omega = \Omega_0 + \frac{\omega_{0\alpha}}{2}$, correspondant à une transition $\Delta m = +1$ entre les niveaux $|\alpha'J', - \rangle$ et $|\alpha J, + \rangle$. Au contraire, si (S) a une polarisation circulaire gauche ($\sigma_-^{(S)}$), la raie d'absorption (flèche en pointillé sur la figure 27-a; fréquence $\Omega = \Omega_0 - \frac{\omega_{0\alpha}}{2}$) correspond à une transition $\Delta m = -1$ entre les niveaux $|\alpha'J', + \rangle$ et $|\alpha J, - \rangle$. Supposons à présent que l'atome **soit** couplé à un champ de radiofréquence habillant, que nous envisageons pour l'instant polarisé en σ_+ . Les niveaux d'énergie de l'atome habillé (figure 27-b) se déterminent alors très aisément : dans l'état fondamental (où le couplage est nul), ce sont simplement les états $|\alpha'J', \pm, n \rangle$; dans l'état excité, ce sont des branches d'hyperboles correspondant aux anticroisements de niveaux dans le champ tel que $\omega_{0\alpha} = \omega$.

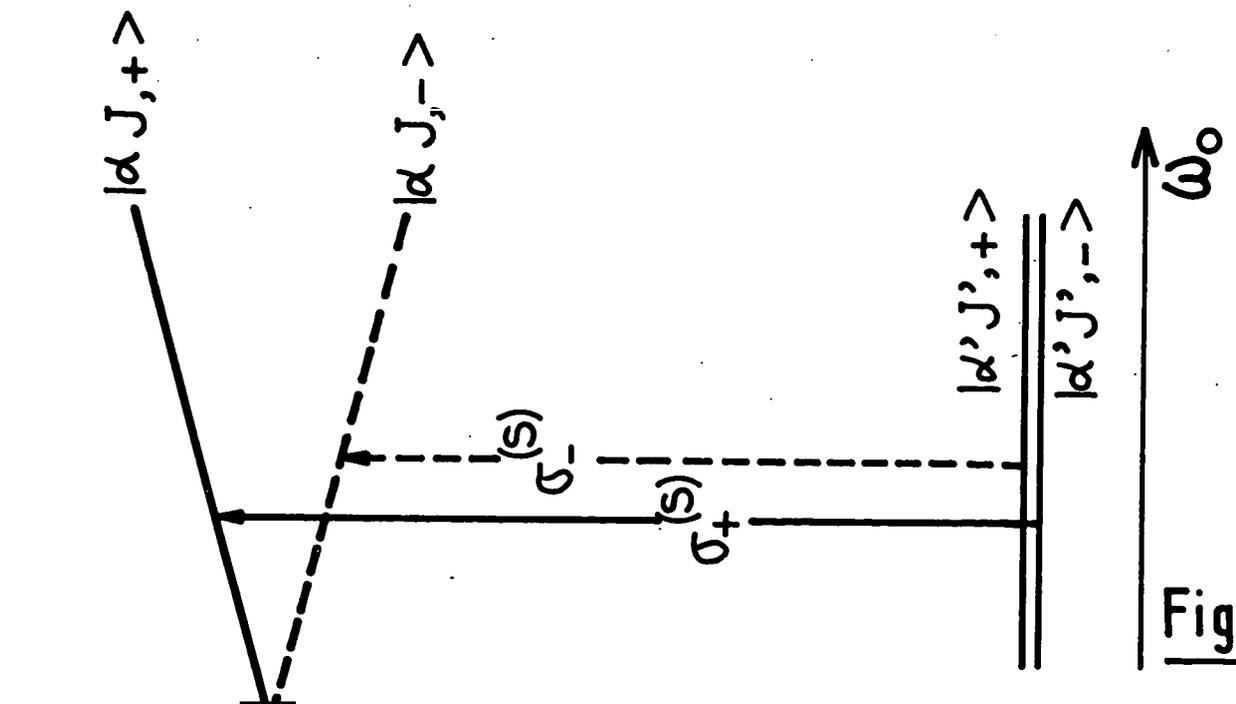
Reprenant les conventions commodes de la figure 10, nous représenterons en traits pleins les niveaux $|\overline{\alpha J, -, n+1} \rangle$ et $|\overline{\alpha J, +, n} \rangle$ issus de l'anticroisement auquel participe l'état non perturbé $|\alpha J, +, n \rangle$ et en traits pointillés les niveaux $|\overline{\alpha J, -, n} \rangle$ et $|\overline{\alpha J, +, n-1} \rangle$ qui correspondent à l'anticroisement où est impliqué l'état $|\alpha J, -, n \rangle$. Pour décrire le spectre d'absorption observé, il nous faut déterminer :

les éléments de matrice de \mathcal{H}_I entre les différents niveaux d'énergie de \mathcal{H} représentés sur la figure 27. \mathcal{H}_I étant un opérateur purement atomique, ne peut coupler entre eux dans la base "non perturbée" que des états contenant un même nombre n de photons de radiofréquence. Il s'ensuit qu'en polarisation $\sigma_+^{(S)}$, le niveau $|\alpha'J',-,n\rangle$ n'est couplé qu'aux deux niveaux en traits pleins (qui seuls contiennent l'état $|\alpha J,+,n\rangle$) tandis qu'en polarisation $\sigma_-^{(S)}$, $|\alpha'J',+,n\rangle$ n'est relié qu'aux deux niveaux en pointillé (qui seuls contiennent l'état $|\alpha J,-,n\rangle$). De façon plus précise, si l'on appelle I_+ et I_- les intensités des raies $\sigma_+^{(S)}$ et $\sigma_-^{(S)}$ de l'atome libre, il résulte clairement de l'expression (I,C,5) des états propres de \mathcal{H} que les deux raies de l'atome habillé en polarisation $\sigma_+^{(S)}$ auront des intensités $I_+ \cos^2 \frac{\theta_n}{2}$ (transition $|\alpha'J',-,n\rangle \rightarrow |\overline{\alpha J,+,n}\rangle$ représentée par la flèche n° 1 sur la figure 27-b) et $I_+ \sin^2 \frac{\theta_n}{2}$ (transition $|\alpha'J',-,n\rangle \rightarrow |\overline{\alpha J,-,n+1}\rangle$, flèche n° 2); par contre, les deux raies en polarisation $\sigma_-^{(S)}$ auront des intensités $I_- \cos^2 \frac{\theta_n}{2}$ (transition $|\alpha'J',+,n\rangle \rightarrow |\overline{\alpha J,-,n}\rangle$, flèche n° 3) et $I_- \sin^2 \frac{\theta_n}{2}$ (transition $|\alpha'J',+,n\rangle \rightarrow |\overline{\alpha J,+,n-1}\rangle$, flèche n° 4). Ainsi, chacune des raies $\sigma_+^{(S)}$ et $\sigma_-^{(S)}$ de l'atome libre se dédouble pour donner naissance à deux raies dont la somme des intensités reste constante ($\sin^2 \frac{\theta_n}{2} + \cos^2 \frac{\theta_n}{2} = 1$) et égale à celle de la raie observée sur l'atome libre dans les mêmes conditions.

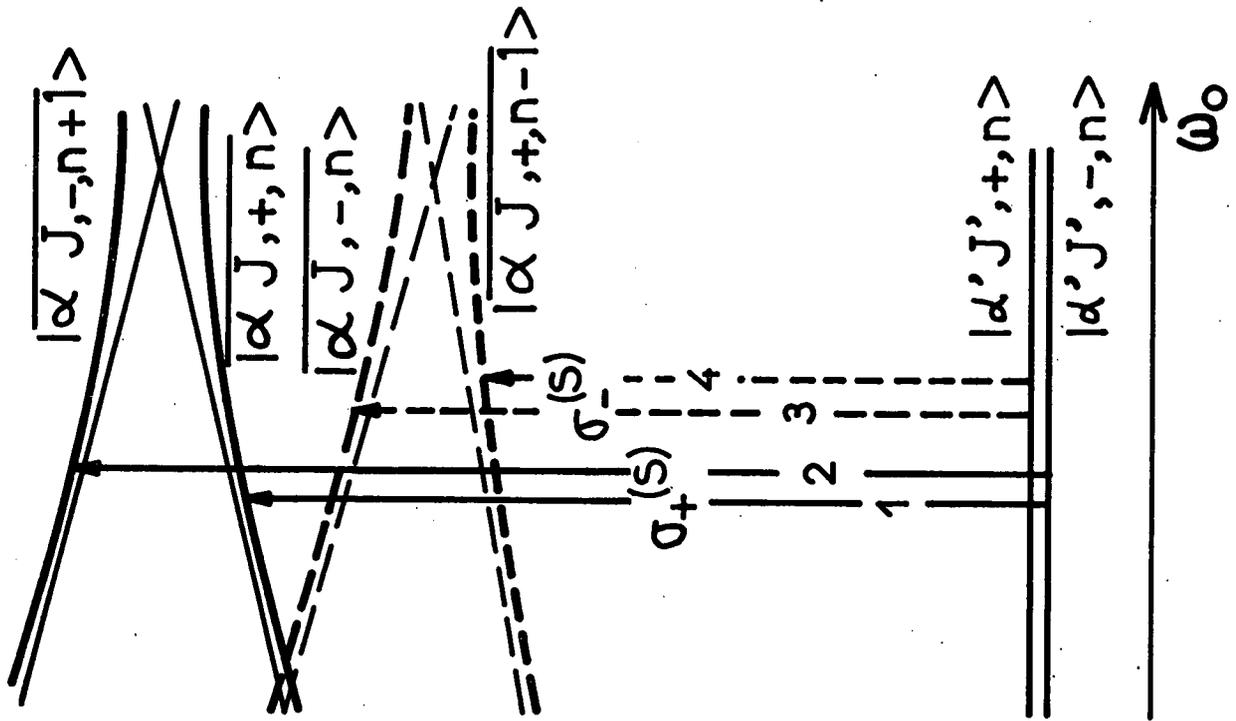
Nous allons décrire ces raies plus en détail en supposant, pour commencer, que ω (tout en restant petit devant Ω_0) est suffisamment grand devant $\omega_{0\alpha}$ pour qu'on soit loin de la condition de résonance magnétique dans l'état excité ($\omega_{0\alpha} \ll \omega$).

a) Absorption simple d'un photon du champ "sonde"

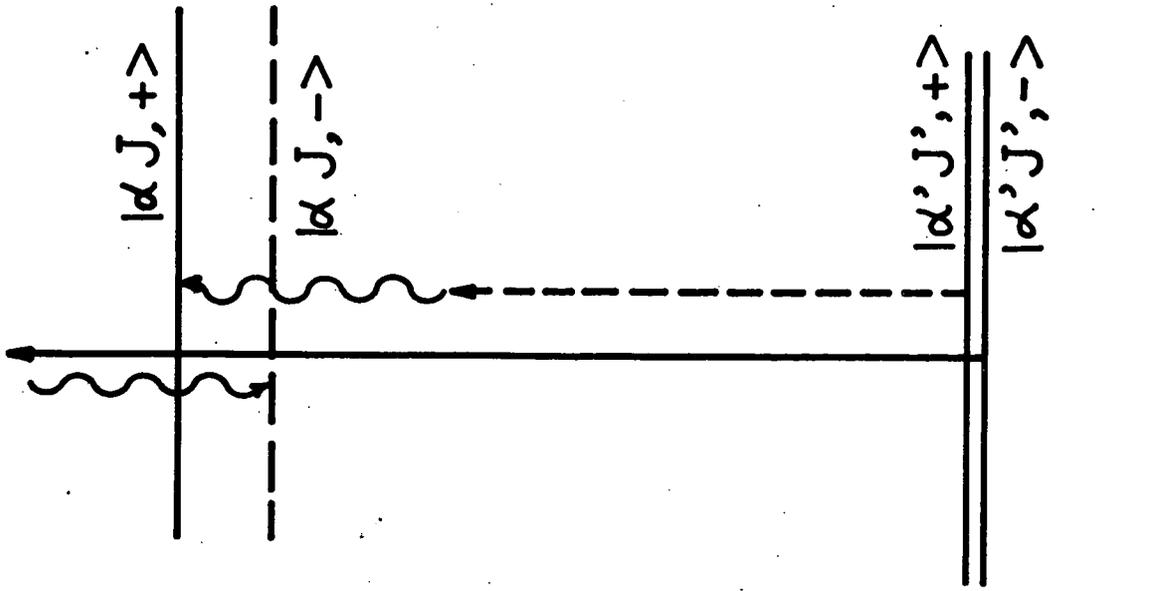
L'une des deux raies polarisées en $\sigma_+^{(S)}$ (flèche n° 1) est associée, lorsque ω_1 tend vers zéro, à une transition entre les niveaux non perturbés $|\alpha'J',-,n\rangle$ et $|\alpha J,+,n\rangle$ et s'identifie alors à la raie d'absorption normale de l'atome libre ($\theta_n \rightarrow 0$, $\cos^2 \frac{\theta_n}{2} \rightarrow 1$). Cette transition correspond donc à l'absorption simple d'un photon du champ "sonde", le nombre de photons de radiofréquence restant inchangé à l'issue du processus. Le couplage avec la radiofréquence a pour résultat de déplacer légèrement la fréquence d'absorption (de la quantité du second ordre en ω_1/ω qui sépare le niveau perturbé de son asymptote) et de diminuer légèrement (par un facteur $\cos^2 \frac{\theta_n}{2}$) l'intensité de la résonance. De même, l'une des deux raies $\sigma_-^{(S)}$ (flèche n° 3) correspond à l'absorption simple d'un photon "sonde" s'accompagnant d'une modification



a)



b)



c)

Fig - 27

radiative sous l'effet du champ habillant de l'intensité et de la position de la résonance. Plus nouvelles et plus intéressantes sont les deux autres raies du spectre que nous allons maintenant décrire.

b) Absorption simultanée d'un photon du champ "sonde" et d'un photon habillant

Considérons la deuxième raie $\sigma_{-}^{(S)}$ (flèche n° 4 sur la figure 27-b). La transition correspondante relie $|\alpha'J',+,n\rangle$ à un niveau qui, en couplage faible, est voisin de l'état non perturbé $|\alpha J,+,n-1\rangle$. Ainsi l'absorption du photon "sonde" s'accompagne de l'absorption simultanée par l'atome d'un photon de radiofréquence (dont le nombre passe de n à $n-1$). La transition atomique est alors induite par un champ "sonde" dont la fréquence Ω est voisine de la fréquence de Bohr atomique $\Omega_0 + \frac{\omega_{0\alpha}}{2}$ diminuée de ω :

$$\Omega \approx \Omega_0 + \frac{\omega_{0\alpha}}{2} - \omega \quad (\text{VI,A,3})$$

Le moment angulaire est conservé au cours du processus : l'atome absorbant un photon $\sigma_{-}^{(S)}$ du champ "sonde" et un photon σ_{+} du champ habillant, effectue une transition $\Delta m = 0$. Nous avons schématisé sur la figure 27-c cette transition dans le diagramme d'énergie de l'atome libre en symbolisant explicitement les processus d'absorption du photon "sonde" (en pointillés) et du photon radiofréquence (ligne ondulée).

Remarquons que la probabilité de cette transition (en $\sin^2 \frac{\theta}{2}$) est proportionnelle, à bas niveau de radiofréquence, à l'intensité ω_1^2 du champ habillant (tout comme elle est, d'après (VI,A,2), proportionnelle à l'intensité h_1^2 du champ "sonde") ce qui est bien caractéristique d'une transition à deux quanta appartenant à deux modes différents du champ électromagnétique. Enfin, la position de la raie est déplacée d'une quantité du deuxième ordre en ω_1/ω par rapport à la position extrapolée à intensité nulle de la radiofréquence qui est donnée par la relation (VI,A,3).

c) Absorption d'un photon du champ "sonde" et émission induite simultanée d'un photon habillant : effet Raman inverse

Considérons enfin la dernière raie $\sigma_{+}^{(S)}$ du spectre de la figure 27-b (flèche n° 2). La transition correspondante relie $|\alpha'J',-,n\rangle$ au niveau qui en couplage ω_1 faible est très peu différent de l'état non perturbé $|\alpha J,-,n+1\rangle$: l'absorption du photon sonde s'accompagne donc sur cette transition de l'émission induite simultanée d'un photon de radiofréquence habillant (dont le nombre passe de n à $n+1$). Nous avons représenté sur la figure 27-c la même transition dans le diagramme d'énergie de l'atome libre : le photon du champ "sonde" absorbé (traits pleins) a une fréquence voisine de

la somme de la fréquence de Bohr atomique $\Omega_0 - \frac{\omega_{00}}{2}$ et de la fréquence ω du photon de radiofréquence (ligne ondulée) :

$$\Omega \approx \Omega_0 - \frac{\omega_{00}}{2} + \omega \quad (\text{VI,A,4})$$

D'autre part, la transition correspond à $\Delta m = 0$ puisque l'atome a absorbé un photon "sonde" circulaire droit, puis réémis un photon radiofréquence également circulaire droit au cours de ce processus. L'absorption que l'on observe dans ces conditions sur le champ "sonde" s'apparente à un effet Raman inverse, dans lequel le champ habillant joue le rôle généralement imparti à une onde laser. On remarquera qu'ici encore, l'intensité de l'effet (en $\sin^2 \frac{\theta_n}{2}$) est pour ω_1 petit proportionnelle à l'intensité du champ de radiofréquence. On note également un déplacement de la transition du deuxième ordre en ω_1/ω , qui est analogue à ceux qu'a décrits JAVAN dans la théorie de l'effet Raman (83).

Remarque importante :

Les transitions que nous décrivons ici s'effectuent entre états propres de l'atome habillé pour lesquels m et n ne sont pas de bons nombres quantiques. Aussi, lorsque dans ce chapitre nous parlons de transitions de Δm ou de Δn donnés, nous voulons dire implicitement qu'il s'agit de transitions qui ne correspondent à des variations bien définies Δm du moment cinétique atomique ou Δn du nombre de photons qu'à la limite où l'intensité de la radiofréquence est très faible.

3) Le double rôle joué par les photons du champ habillant

Dans les processus que nous venons de décrire, les photons du champ de radiofréquence sont amenés à jouer deux rôles très différents : d'une part, ils peuvent être absorbés et réémis virtuellement par le système atomique, ce qui a pour effet d'en perturber les niveaux d'énergie et de modifier les fréquences d'absorption et les forces d'oscillateur des transitions induites sur le champ "sonde"; d'autre part, ils peuvent être absorbés ou émis réellement par l'atome en même temps que celui-ci absorbe un photon du champ "sonde", ce qui conduit à l'apparition de nouvelles raies dans le spectre d'absorption. La conservation de l'énergie et du moment angulaire du système global "atome + champ habillant + champ sonde" doit être assurée au cours de ces transitions. Dans l'exemple étudié plus haut, le nombre de nouvelles raies apparaissant

dans le spectre est limité en raison des règles de sélection très simples satisfaites par le couplage V lorsque la radiofréquence est polarisée en σ_+ (cf. § I-B-3-b); dans le cas d'un champ habillant de polarisation quelconque, les raies nouvelles apparaissant dans le spectre sont en général beaucoup plus nombreuses et correspondent à des processus d'absorption ou d'effet Raman pouvant impliquer plus d'un photon du champ habillant (cf. § VI-B).

La séparation que nous venons de faire entre les deux types d'effets produits par le champ habillant n'a de sens que tant que les niveaux d'énergie de l'atome habillé sont suffisamment proches des états propres non perturbés de \mathcal{H}_0 . Il faut donc en particulier que l'on soit loin d'un anticroisement de niveaux de \mathcal{H} . En un tel point, l'attribution d'un processus déterminé (absorption simple ou multiple, effet Raman inverse, ...) à chacune des transitions observables perd sa signification comme nous allons à présent le montrer en étudiant les caractéristiques de l'effet AUTLER-TOWNES.

4) Absorption du champ "sonde" au voisinage d'un anticroisement :
effet AUTLER-TOWNES ⁽¹³⁾

Etudions ce que devient le spectre décrit au § VI-A-2 lorsque le champ statique H_0 tend vers la valeur correspondant à la résonance magnétique dans le niveau αJ ($\omega_{\alpha\alpha} = \omega$). Intéressons-nous par exemple aux deux raies $\sigma_+^{(S)}$: loin de l'anticroisement (figure 28-a; $\omega_{\alpha\alpha} \ll \omega$) la raie d'absorption normale est la plus intense ($\cos^2 \frac{\theta_n}{2} \sim 1$) et la raie Raman inverse est très faible. La séparation des deux raies (voisine de $\omega - \omega_{\alpha\alpha}$ si $\omega_{\alpha\alpha} \ll \omega$) diminue au fur et à mesure que le champ magnétique se rapproche de la valeur correspondant à $\omega_{\alpha\alpha} = \omega$ tandis que l'intensité de la raie d'absorption normale décroît et que celle de la raie Raman augmente. Au point d'anticroisement ($\theta_n = -\pi/4$), les deux raies sont d'intensités égales et constituent un doublet centré autour de $\Omega = \Omega_0 + \omega/2$ dont la séparation est égale à la "force" ω_1 de l'anticroisement. ^(fig. 28-b) Nous retrouvons l'effet AUTLER-TOWNES bien connu : une transition entre deux niveaux atomiques se trouve dédoublée si l'un des deux niveaux de la transition est impliqué sous l'effet d'un deuxième champ (ici la radiofréquence) dans une autre transition avec un troisième niveau. Les deux raies du doublet sont résolues si la transition de radiofréquence est saturée ($\omega_1 \gtrsim \Gamma$) et elles sont d'autant plus écartées que ω_1 est plus grand. Les deux raies obtenues apparaissent clairement comme les

limites de l'absorption normale et de l'effet Raman inverse lorsque le champ de radiofréquence devient résonnant. Il n'est cependant plus possible de séparer ces deux processus l'un de l'autre, dans la mesure où les deux états propres de l'atome habillé dans le niveau αJ sont de superpositions linéaires en proportions égales de deux niveaux contenant n et $n+1$ photons. Si $\omega_{0\alpha}$ devient supérieur à ω , la séparation des deux processus redevient possible : c'est la raie associée à la plus grande fréquence qui correspond à présent à l'absorption normale et qui a la plus grande intensité (figure 28-c).

Dans le cas d'une polarisation quelconque de la radiofréquence, un effet AUTLER-TOWNES analogue peut être associé à tous les anticroisements d'ordre supérieur $\omega_{0\alpha} = p\omega$. Enfin, pour un spin $J > 1/2$, l'effet se manifeste non plus par un doublement, mais par une démultiplication des raies d'absorption sur le champ "sonde" (il peut y avoir jusqu'à $2J+1$ transitions équidistantes au point d'anticroisement). Le formalisme de l'atome habillé permet ainsi de décrire en termes extrêmement simples un effet dont l'interprétation dans le formalisme classique du champ de radiofréquence peut paraître moins évidente.

5) Règle de somme sur le spectre d'absorption de l'atome habillé

La règle de somme vérifiée par les probabilités de transitions induites par le champ sonde dans le cas particulier étudié aux paragraphes précédents ($\sin^2 \frac{\theta_n}{2} + \cos^2 \frac{\theta_n}{2} = 1$) se généralise aisément pour des polarisations quelconques des deux champs électromagnétiques. La somme $\Sigma(I)$ des intensités des diverses raies du spectre d'absorption s'écrit en effet d'après (VI,A,2) :

$$\Sigma(I) = C^{te} \sum_{\substack{mn \\ m'n'}} |\langle \alpha'J'm'n' | \vec{e} \cdot \vec{M} | \alpha Jmn \rangle|^2 \quad (VI,A,5)$$

Exprimons la relation de fermeture pour le niveau αJ dans les deux bases des états perturbés de \mathcal{H} et non perturbés de \mathcal{H}_0 . On obtient l'identité :

$$\sum_{mn} |\overline{\alpha Jmn} \rangle \langle \overline{\alpha Jmn}| = \sum_{mn} |\alpha Jmn \rangle \langle \alpha Jmn| \quad (VI,A,6)$$

A partir de (VI,A,6) et de la relation analogue valable pour le niveau $\alpha'J'$, on déduit aisément la règle de somme :

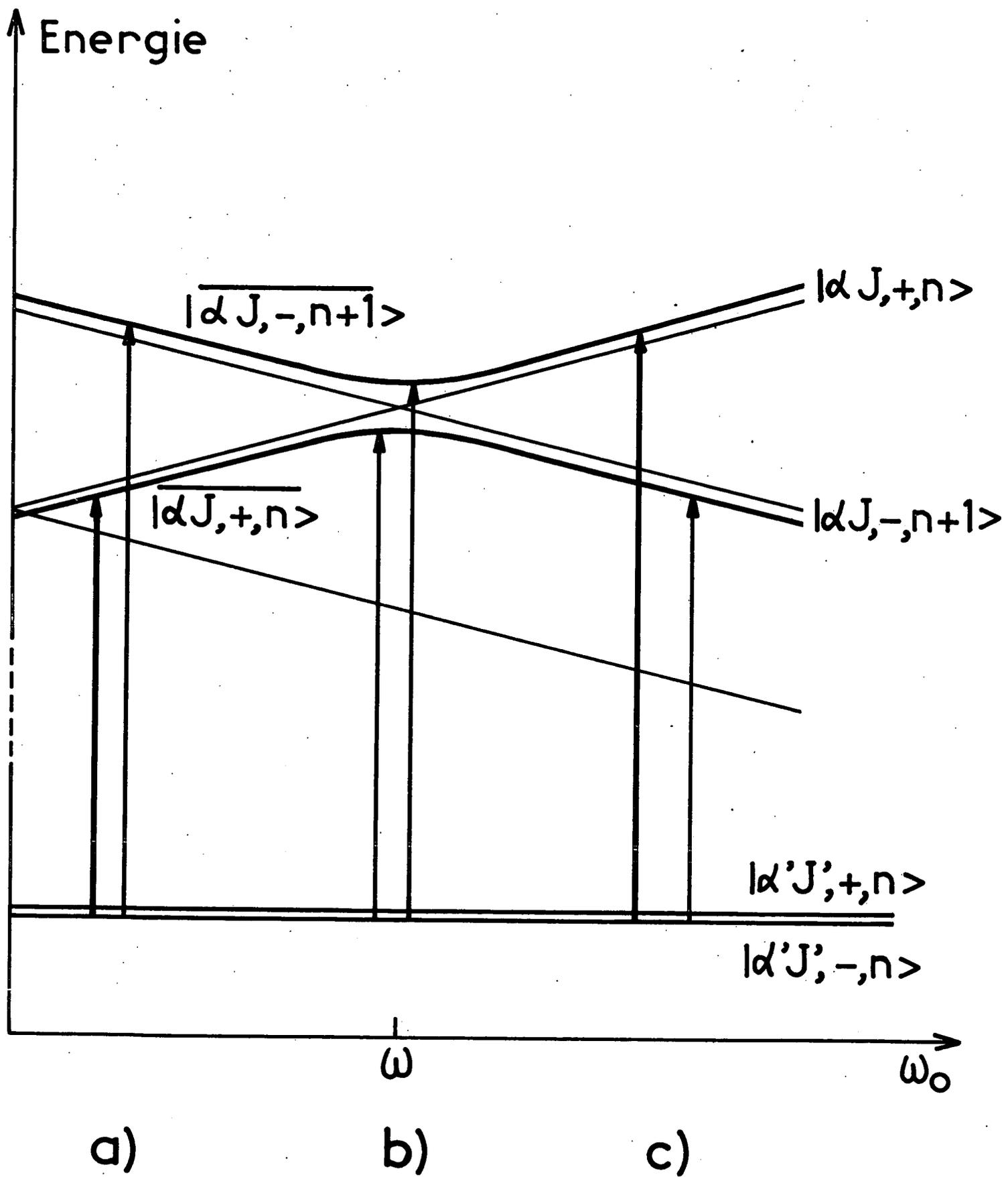


Fig. 28

$$\sum_{\substack{mn \\ m'n'}} |\langle \overline{\alpha'J',m',n'} | \vec{e}^* \vec{M} | \overline{\alpha J,m,n} \rangle|^2 = \sum_{m,m'} |\langle \alpha'J',m' | \vec{e}^* \vec{M} | \alpha J,m \rangle|^2 \quad (\text{VI,A,7})$$

qui montre que $\Sigma(I)$ est indépendante du niveau de radiofréquence et est identique à la somme des intensités des diverses raies du spectre d'absorption de l'atome libre pour la même polarisation du champ "sonde".

L'interprétation physique de ce résultat est très claire : supposons qu'au lieu d'exciter le spectre d'absorption monochromatique de l'atome habillé, on excite celui-ci avec un champ "sonde" de polarisation \vec{e} donnée et de largeur spectrale infinie (spectre blanc). L'absorption totale sur ce champ "sonde" est alors proportionnelle à la somme des intensités de toutes les raies d'absorption monochromatiques calculées plus haut : la relation (VI,A,7) exprime simplement que cette absorption est identique pour l'atome nu et pour l'atome habillé. Ce résultat n'est pas étonnant : les trains d'onde correspondant à une raie infiniment large passent en effet en un temps infiniment court sur l'atome, de sorte que celui-ci n'a pas le temps de se coupler à la radiofréquence. En fait, une analyse plus précise (³⁸) permet de montrer qu'il n'est pas indispensable que la raie excitatrice soit infiniment large et qu'il suffit que sa largeur Δ soit grande devant ω_1 pour que l'absorption sur le champ "sonde" soit insensible au couplage avec la radiofréquence.

Nous avons déjà montré (§ II-C-2-a) que la préparation d'un état atomique excité par un pompage optique en raie large ne dépend pas du couplage de l'atome avec la radiofréquence. Nous venons d'établir en quelque sorte une propriété réciproque qui montre que l'absorption totale du faisceau de pompage n'est, elle non plus, pas affectée par la présence du champ habillant.

VI-B. SPECTRE ZEEMAN D'UN ATOME HABILÉ EN CHAMP STATIQUE FAIBLE

Nous allons décrire dans ce paragraphe le spectre d'absorption d'un atome interagissant, en champ H_0 faible, avec un champ de radiofréquence polarisé linéairement (§ V-B-1, 2 et 3) ou circulairement (§ V-B-4). Le deuxième champ électromagnétique sert alors à explorer les diagrammes de niveaux d'énergie de l'atome habillé décrits en détail au chapitre précédent : dans le cas où la radiofréquence a une polarisation linéaire, le changement du facteur de Landé des niveaux se traduit par une modification du spectre Zeeman dont les différentes raies se rapprochent les

unes des autres; si le champ de radiofréquence est tournant, on observera en champ statique nul l'effet Zeeman produit par les champs statiques équivalents associés à la radiofréquence; cet effet se distinguera de l'effet Zeeman ordinaire observé dans un vrai champ statique du fait que les champs équivalents vus par les deux niveaux impliqués dans la transition peuvent être différents. Dans tous les cas, on observera également dans le spectre un ensemble de raies latérales, centrées autour des fréquences $\Omega = \Omega_0 + p\omega$, correspondant aux processus d'absorption à plusieurs quanta ou d'effet Raman inverses décrits au paragraphe précédent.

Nous avons choisi de décrire de façon détaillée le spectre des transitions induites par un champ hyperfréquence entre les deux niveaux hyperfins de l'état fondamental du ^{87}Rb habillé. C'est en effet par l'étude de ce spectre que la théorie a été vérifiée expérimentalement (cf. chapitre XI). Les transitions correspondantes ($F' = 2 \leftrightarrow F' = 1$) s'effectuent entre deux niveaux de rapports gyromagnétiques opposés simultanément couplés à la radiofréquence. Avant d'aborder cette étude, nous commencerons par la description qualitative d'une situation plus simple, correspondant à une transition $J = 0 \rightarrow J = 1$ (transitions hyperfines de l'état fondamental de l'hydrogène par exemple).

1) Effet Zeeman normal de l'atome habillé par un champ de radiofréquence linéaire (transition $J = 0 \rightarrow J = 1$)

Le spectre de raies obtenu dans le cas d'une transition $J = 0 \rightarrow J = 1$ a été calculé en détail par ailleurs (³⁸). Nous nous contenterons de le décrire ici sommairement en donnant une interprétation physique des différentes transitions observables.

Le spectre d'absorption de l'atome libre dans un champ H_0 est décomposé en trois raies dont l'écartement est égal à ω_0 (fréquence de Larmor du niveau $J = 1$) et la polarisation respectivement $\sigma_+^{(S)}$, $\pi^{(S)}$ et $\sigma_-^{(S)}$ par rapport à \vec{H}_0 : c'est le triplet Zeeman normal. En présence d'un champ de radiofréquence linéaire et perpendiculaire à \vec{H}_0 , la pente des sous-niveaux Zeeman au voisinage du champ nul diminue ainsi que la séparation des raies du triplet. En même temps, des bandes latérales apparaissent dans le spectre, associées aux transitions entre l'état $|J = 0, n\rangle$ et les niveaux habillés $|1, m; n'\rangle$ correspondant à des valeurs n' différentes de n dans le niveau excité. Envisageons successivement plusieurs cas de polarisation du champ "sonde"

a) pour un champ $\sigma_+^{(S)}$, la raie d'absorption située en $\Omega = \Omega_0 + \omega_0$ pour l'atome libre (figure 29-a) se rapproche de la fréquence centrale Ω_0 au

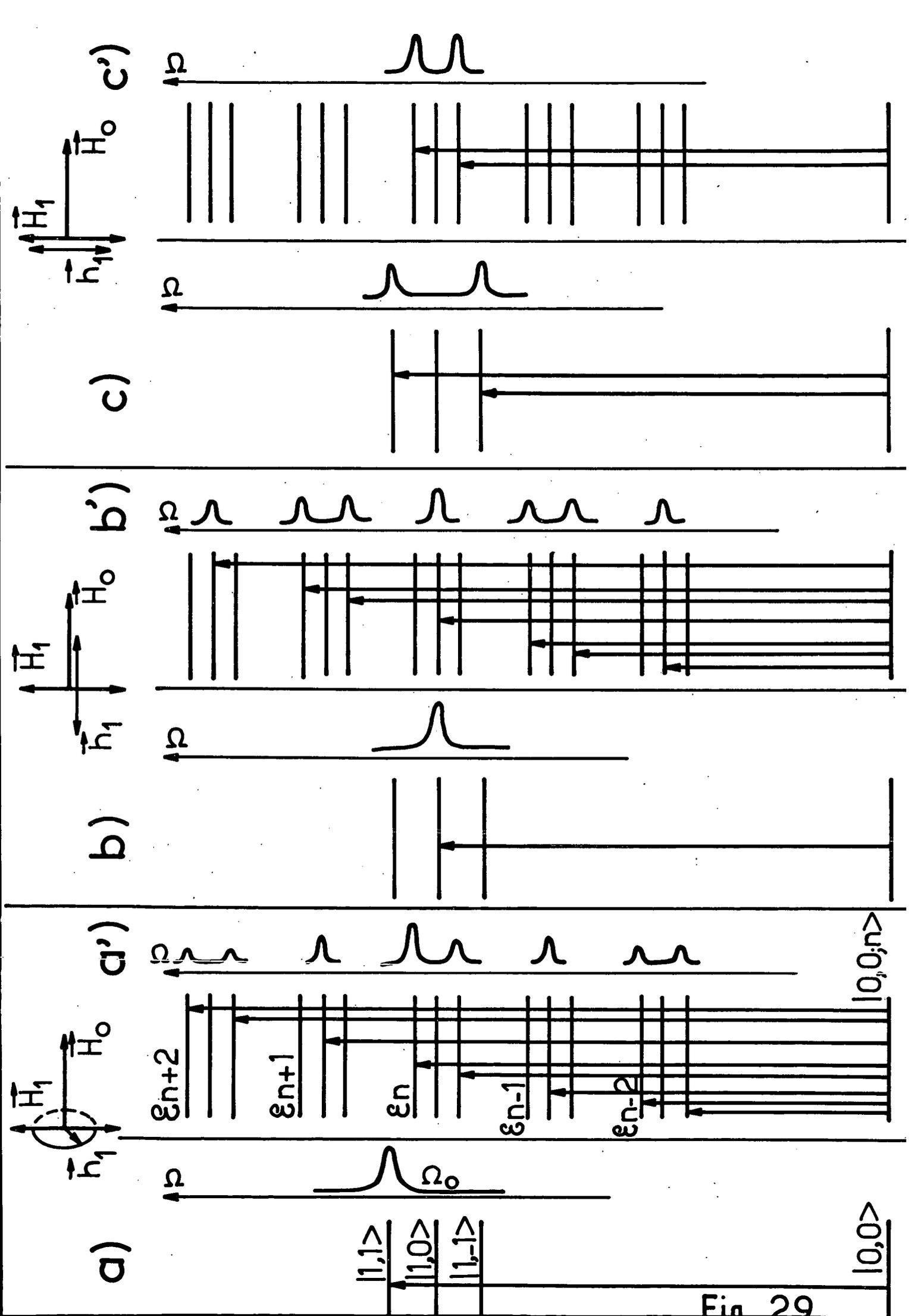


Fig. 29

fur et à mesure que la fréquence de Larmor $\bar{\omega}_0 = \omega_0 J_0(\frac{\omega_1}{\omega})$ de l'état excité diminue (figure 29-a'). En même temps, apparaît une nouvelle raie d'absorption à la fréquence symétrique $\Omega = \Omega_0 - \bar{\omega}_0$. La transition correspondante ($\Delta m = -1$; $\Delta n = 0$) peut en effet s'effectuer par absorption d'un photon $\sigma_+^{(S)}$ du champ "sonde" accompagnée de l'émission d'une composante σ_+ et de l'absorption d'une composante σ_- du champ de radiofréquence (la variation du moment angulaire du champ de radiofréquence est donc égale à -2 unités ^{lors} d'une telle transition). Nous retrouvons ici la possibilité de réaliser, à l'aide d'un champ "sonde" purement circulaire droit, une transition $\Delta m = -1$, la conservation du moment angulaire total étant assurée par les photons du champ habillant (cf. § V-A-4-c). Au doublet que nous venons de décrire vient s'ajouter une infinité de bandes latérales centrées autour des fréquences $\Omega_0 + p\omega$ ($p \geq 0$); voir figure 29-a'). Sur les bandes latérales de p impair, on observe une seule raie $\Delta m = 0$; sur les bandes latérales de p pair, deux raies $\Delta m = \pm 1$ d'égales intensités séparées de $2\bar{\omega}_0$. Cette alternance de singlets et de doublets symétriques par rapport à la fréquence centrale Ω_0 s'explique encore par la conservation du moment cinétique global : la transition sur une bande latérale paire peut être décrite comme un processus d'absorption d'un photon $\sigma_+^{(S)}$ du champ "sonde" suivie d'un nombre pair de processus d'absorption ou d'émission de photons de radiofréquence σ . Le moment cinétique de l'atome subit donc globalement un changement Δm impair qui ne peut être que $\Delta m = \pm 1$ (puisque $J = 1$ dans l'état excité). Au contraire, sur une bande latérale impaire, le nombre de processus d'absorption ou d'émission de photons de radiofréquence est impair et le moment globalement transféré à l'atome est nécessairement pair, c'est-à-dire dans le cas présent ($J = 1$) nul : $\Delta m = 0$.

b) pour un champ "sonde" $\pi^{(S)}$, toutes les conclusions précédentes sont inversées : la raie d'absorption $\Delta m = 0$ de l'atome libre (figure 29-b) est remplacée par une série de "singlets" $\Delta m = 0$ sur la bande centrale et les bandes latérales paires et une série de "doublets" $\Delta m = \pm 1$ sur les bandes latérales impaires (figure 29-b').

c) pour un champ "sonde" $\sigma_-^{(S)}$, on obtient un spectre analogue à celui qu'on observe en $\sigma_+^{(S)}$, à cela près que les intensités des deux raies de la bande centrale sont échangées. La figure 29-c' représente enfin le spectre observé dans le cas d'un champ "sonde" en polarisation linéaire $\sigma^{(S)}$ dont la direction est parallèle à celle du champ habillant. On montre alors que sur toutes les bandes latérales, les amplitudes de transition associées aux deux composantes $\sigma_+^{(S)}$ et $\sigma_-^{(S)}$ selon lesquelles on peut décomposer le champ $\sigma^{(S)}$ ont des facteurs de phase opposés si bien que les raies correspondantes disparaissent par interférence dans le spectre. Ce spectre présen-

te alors le même aspect qu'en absence de champ habillant (figure 29-c) et tout se passe finalement dans ce cas comme si le seul effet du champ de radiofréquence était de modifier le facteur de Landé de l'atome (remarquons que la disparition des bandes latérales observée ici est "accidentelle" dans la mesure où celles-ci réapparaissent à nouveau dans le spectre si la polarisation $\sigma^{(S)}$ perpendiculaire à \vec{H}_0 n'est plus parallèle à la direction du champ de radiofréquence).

Ayant ainsi décrit pour quelques cas particuliers de polarisation le spectre observé dans le cas simple d'une transition $J = 0 \leftrightarrow J = 1$, nous allons aborder maintenant l'étude d'une transition $J \rightarrow J'$ quelconque.

2) Calcul de l'intensité des raies Zeeman d'un atome habillé par un champ de radiofréquence linéaire dans le cas d'une transition $J \rightarrow J'$ quelconque

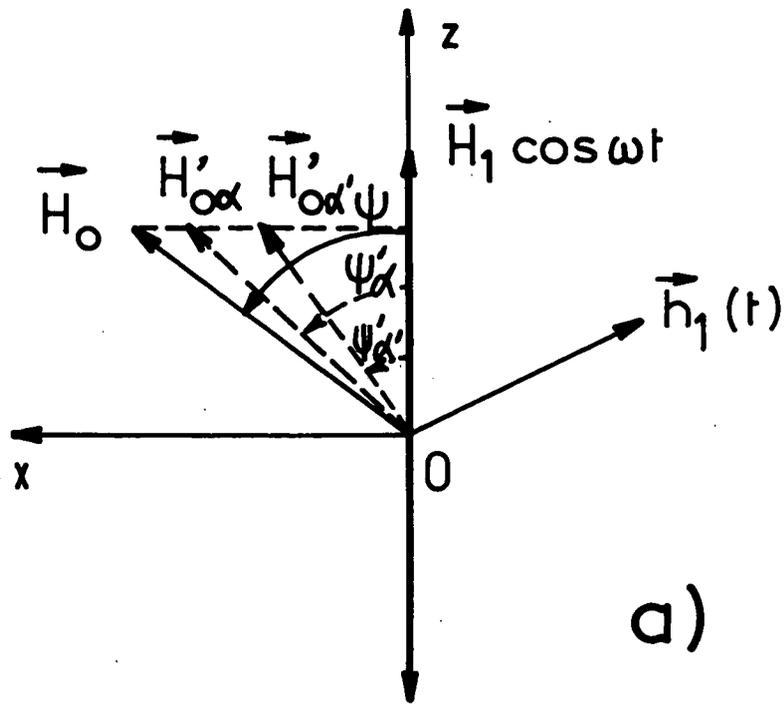
a) Notations. Dispositions relatives des champs

L'atome est à présent couplé au champ de radiofréquence dans les deux niveaux impliqués par la transition. Nous nous proposons de calculer dans ce cas les probabilités de transition observées pour n'importe quelles polarisations du champ habillant et du champ "sonde". Nous supposons toujours la radiofréquence le long de Oz; le champ statique, dans le plan xOz, est aligné dans une direction faisant un angle ψ ($0 \leq \psi \leq \frac{\pi}{2}$) avec Oz (figure 30-a). Aux niveaux αJ et $\alpha' J'$ sont associés deux champs fictifs $\vec{H}'_{\alpha\alpha}$ et $\vec{H}'_{\alpha'\alpha'}$, qui se déduisent de \vec{H}_0 par deux affinités d'axe Oz et de rapports respectivement égaux à $J_0 \left[\frac{g_\alpha \mu_B H_1}{\omega} \right]$ et $J_0 \left[\frac{g_{\alpha'} \mu_B H_1}{\omega} \right]$. Ces champs fictifs font donc avec Oz des angles ψ'_α et $\psi'_{\alpha'}$, (compris entre $-\frac{\pi}{2}$ et $\frac{\pi}{2}$) définis par les relations :

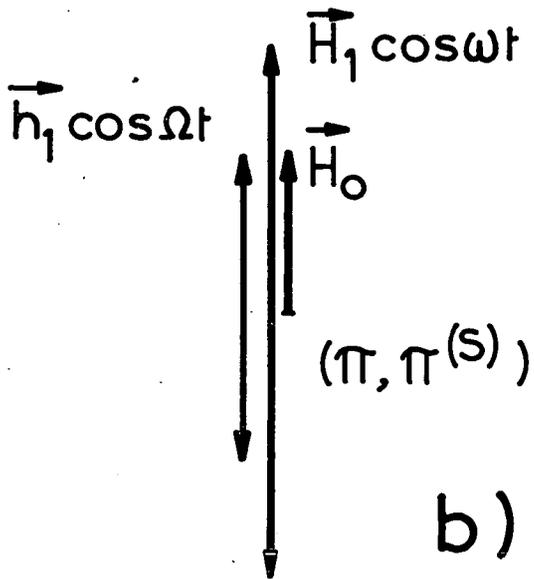
$$\text{tg } \psi'_\alpha = J_0 \left[g_\alpha \frac{\mu_B H_1}{\omega} \right] \text{tg } \psi ; \quad \text{tg } \psi'_{\alpha'} = J_0 \left[g_{\alpha'} \frac{\mu_B H_1}{\omega} \right] \text{tg } \psi \quad (\text{VI,B,1})$$

Enfin, le champ "sonde" a une polarisation \vec{e} que l'on peut décomposer suivant les trois polarisations principales rapportées à la direction Oz du champ habillant. On a donc :

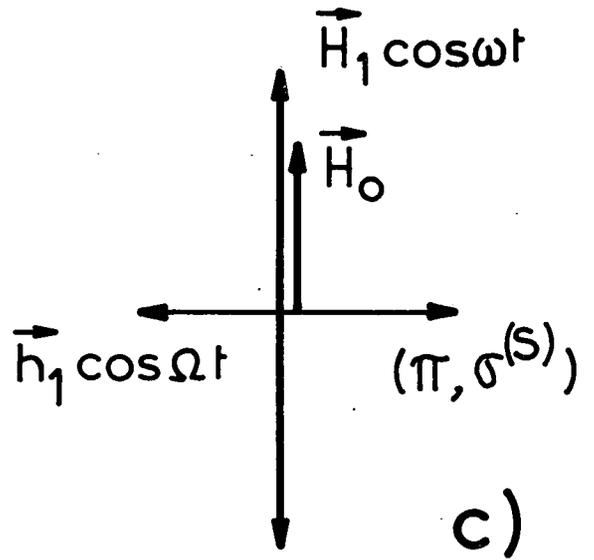
$$\left\{ \begin{aligned} \mathcal{H}_I &= -h_1 \vec{e} \cdot \vec{M} e^{-i\Omega t} + \text{c.c.} = -h_1 \sum_q \left(\frac{1}{2} \right)^{|q|} \left[e_q M_{-q} e^{-i\Omega t} + e_q^* M_q e^{i\Omega t} \right] \\ &\text{avec } M_{\pm 1} = M_x \pm iM_y ; M_0 = M_z \\ &e_{\pm 1} = e_x \pm ie_y ; e_0 = e_z \end{aligned} \right. \quad (\text{VI,B,2})$$



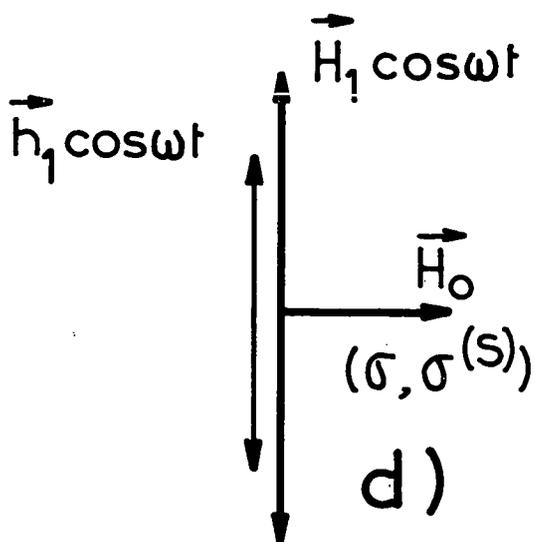
a)



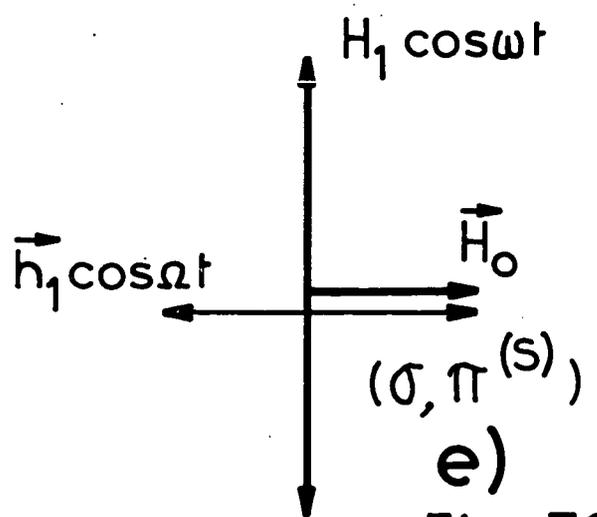
b)



c)



d)



e)

Fig. 30

Les polarisations des deux champs électromagnétiques sont ainsi entièrement définies par la donnée de l'angle ψ (qui définit la polarisation du champ habillant) et celle du vecteur \vec{e} (qui fixe la polarisation du champ "sonde" par rapport à celle du champ habillant). Nous repèrerons donc une disposition de champs donnés par le couple de paramètres (ψ, \vec{e}) . Nous envisagerons dans la suite quatre cas particuliers : la figure 30-b représente le cas où le champ habillant et le champ "sonde" sont parallèles au champ statique ($\psi = 0; \vec{e} = \vec{e}_z$); nous définirons la configuration correspondante par la notation $(\pi; \pi^{(S)})$. La figure 30-c correspond à une configuration ($\psi = 0; \vec{e} = \vec{e}_x$) qui sera notée $(\pi; \sigma^{(S)})$. La figure 30-d ($\psi = \frac{\pi}{2}; \vec{e} = \vec{e}_z$) représente la configuration $(\sigma; \sigma^{(S)})$ et enfin la figure 30-e ($\psi = \frac{\pi}{2}; \vec{e} = \vec{e}_x$) se rapporte à la disposition $(\sigma; \pi^{(S)})$.

Afin de calculer les amplitudes des transitions induites par le champ "sonde" dans chacune de ces situations, il nous faut commencer par déterminer l'expression des états propres de l'atome habillé dans les deux niveaux.

b) Calcul des états propres de l'atome habillé

Si \vec{H}_0 est parallèle à Oz (polarisation $\pi; \psi = 0$), les états propres de l'atome habillé s'écrivent simplement (cf. équations (III,A,6) et (III,A,7)) :

$$\begin{aligned} |\overline{\alpha J, m, n} >_0 &= e^{-\frac{\lambda m}{\omega} (a^\dagger - a)} |\alpha J, m, n > \\ |\overline{\alpha' J', m', n'} >_0 &= e^{-\frac{\lambda' m'}{\omega} (a'^\dagger - a')} |\alpha' J', m', n' > \end{aligned} \quad (\text{VI,B,3})$$

Dans ces expressions λ et λ' sont les facteurs de couplage de chacun des niveaux avec la radiofréquence, respectivement égaux à $-\gamma_{\alpha\mu} = -g_{\alpha} \mu_B \mu$ et $-\gamma_{\alpha'\mu} = -g_{\alpha'} \mu_B \mu$ (cf. § I-B-3-a).

Si \vec{H}_0 fait l'angle ψ avec Oz, les niveaux d'énergie s'obtiennent en diagonalisant l'hamiltonien Zeeman fictif de chacun des niveaux dans le champ $\vec{H}'_{\alpha\alpha}$ ou $\vec{H}'_{\alpha'\alpha'}$. Cette diagonalisation revient à effectuer sur les états propres définis par (VI,B,3) une "rotation fictive" d'axe Oy et d'angle ψ'_α ou $\psi'_{\alpha'}$. Les états propres s'écrivent donc :

$$\left\{ \begin{aligned} |\overline{\alpha J, m, n} >_\psi &= \sum_{m_1} R_{m_1 m}^{(J)}(\psi'_\alpha) |\overline{\alpha J, m_1, n} >_0 \\ |\overline{\alpha' J', m', n'} >_\psi &= \sum_{m'_1} R_{m'_1 m'}^{(J')}(\psi'_{\alpha'}) |\overline{\alpha' J', m'_1, n'} >_0 \end{aligned} \right. \quad (\text{VI,B,4})$$

c) Calcul des amplitudes de transition entre les deux niveaux

Si le champ habillant a une polarisation π ($\psi = 0$), les éléments de matrice de M_q se déduisent immédiatement des équations (VI,B,3) :

$$\begin{aligned} {}_0\langle \overline{\alpha' J', m'_1, n'} | M_q | \overline{\alpha J, m_1, n} \rangle_0 &= \langle \alpha' J', m'_1, n' | e^{\frac{\lambda' m'_1}{\omega} (a^\dagger - a)} M_q e^{-\frac{\lambda m_1}{\omega} (a^\dagger - a)} | \alpha J, m_1, n \rangle \\ &= \langle n' | e^{\frac{\lambda' m'_1 - \lambda m_1}{\omega} (a^\dagger - a)} | n \rangle \langle \alpha' J', m'_1 | M_q | \alpha J, m_1 \rangle \end{aligned} \quad (VI,B,5)$$

Le premier élément de matrice au second membre de (VI,B,5) est donné par une relation analogue à (III,A,8) (voir Appendice III, équation (App.III,8)) :

$$\langle n' | e^{\frac{\lambda' m'_1 - \lambda m_1}{\omega} (a^\dagger - a)} | n \rangle = J_{n', -n} \left[\left(\frac{2\lambda' m'_1 - 2\lambda m_1}{\omega} \right) \sqrt{n} \right] = J_{n', -n} \left[(g_{\alpha' m'_1} - g_{\alpha m_1}) \frac{\mu_B H_1}{\omega} \right]$$

(On a en effet, d'après l'équation (I,B,15) $2\lambda \sqrt{n} = -g_{\alpha} \mu_B H_1$ et $2\lambda' \sqrt{n} = -g_{\alpha'} \mu_B H_1$).

Quant à l'élément de matrice atomique de M_q , il obéit à la règle de sélection

$m_1 = m'_1 - q$. On a donc finalement :

$$\begin{aligned} {}_0\langle \overline{\alpha' J', m'_1, n'} | M_q | \overline{\alpha J, m_1, n} \rangle_0 &= J_{n', -n} \left[(g_{\alpha' m'_1} - g_{\alpha m_1}) \frac{\mu_B H_1}{\omega} \right] \\ &\langle \alpha' J', m'_1 | M_q | \alpha J, m_1 \rangle \delta_{m_1, m'_1 - q} \end{aligned} \quad (VI,B,6)$$

Pour un champ habillant de polarisation quelconque ($\psi \neq 0$), les éléments de matrice de M_q se déduisent immédiatement de l'expression précédente et des développements (VI,B,4) des états propres de l'atome habillé :

$${}_{\psi}\langle \overline{\alpha' J', m'_1, n'} | M_q | \overline{\alpha J, m_1, n} \rangle_{\psi} = \sum_{m_1, m'_1} R_{m'_1 m_1}^{(J')}(\psi', \alpha') R_{m_1 m}^{(J)}(\psi, \alpha) \quad (VI,B,7)$$

$$J_{n', -n} \left[(g_{\alpha' m'_1} - g_{\alpha m_1}) \frac{\mu_B H_1}{\omega} \right] \langle \alpha' J', m'_1 | M_q | \alpha J, m_1 \rangle \delta_{m_1, m'_1 - q}$$

(on rappelle que les éléments de matrice de R sont réels ce qui permet d'écrire $R_{m'_1 m_1}^{(J')*} = R_{m_1 m'_1}^{(J')}$).

A partir de cette expression, on calcule simplement l'élément de matrice de la transition induite par le champ "sonde" entre les états $|\overline{\alpha J, m_1, n}\rangle_{\psi}$ et $|\overline{\alpha' J', m'_1, n'}\rangle_{\psi}$; cet élément ne dépend pas séparément de n et de n' , mais n'est fonction que de la différence

$n'-n = r$. Nous l'appellerons $\bar{t}_{m',m}^{(r)}(\psi, \vec{e})$. Il s'obtient en sommant sur q les amplitudes de transition associées aux diverses composantes de la polarisation du champ "sonde" :

$$\bar{t}_{m',m}^{(r)}(\psi, \vec{e}) = -h_1 \sum_q \left(\frac{1}{2}\right)^{|q|} e_{\vec{q}}^* \psi \langle \alpha' J', m', n' | M_q | \alpha J, m, n \rangle \psi \quad (\text{VI,B,8})$$

Les expressions (VI,B,7) et (VI,B,8) permettent de calculer très simplement les intensités des différentes raies observées sur le spectre d'absorption de l'atome habillé pour n'importe quelle transition $J \rightarrow J'$ et des polarisations absolument quelconques de la radiofréquence et du champ "sonde". Nous allons maintenant étudier le cas particulier des transitions hyperfines des atomes alcalins.

3) Application aux alcalins : spectre Zeeman hyperfin d'atomes de ^{87}Rb habillés par un champ de radiofréquence linéaire

a) Rappel sur le spectre Zeeman hyperfin de l'atome de ^{87}Rb libre

Les transitions hyperfines entre les deux niveaux $F = 2$ et $F' = 1$ sont induites par un champ oscillant couplé au dipôle magnétique de l'atome. Le dipôle est proportionnel au spin électronique S de l'état fondamental (on néglige le magnétisme nucléaire) et est donné par la relation :

$$\vec{M} = 2\mu_B \vec{S} \quad (\text{VI,B,9})$$

(le facteur de Landé électronique de l'état fondamental est, comme celui de l'électron libre, égal à 2). Les éléments de matrice de \vec{S} entre les deux niveaux hyperfins sont rappelés sur la figure 31-a (éléments de matrice de S_z correspondant à une polarisation $\pi^{(S)}$ du champ "sonde") et sur la figure 31-b (éléments de matrice de S_x correspondant à une polarisation $\sigma^{(S)}$).

Les figures 31-a' et 31-b' représentent les transitions correspondant à ces deux types de polarisation. Les facteurs de Landé étant égaux en valeur absolue, mais de signes opposés dans les deux niveaux hyperfins, on observe dans le premier cas (figure 31-a') trois raies $\Delta m_F = 0$ équidistantes centrées respectivement en $\Omega = \Omega_0 - \omega_0$ (transition $m' = -1 \rightarrow m = -1$), $\Omega = \Omega_0$ (transition $0 \rightarrow 0$), $\Omega = \Omega_0 + \omega_0$ (transition $1 \rightarrow 1$). En polarisation $\sigma^{(S)}$ (figure 31-b'), on observe quatre raies $\Delta m_F = \pm 1$ équidistantes : les deux raies extrêmes (fréquence $\Omega = \Omega_0 \pm 3\omega$) sont simples et correspondent respectivement aux transitions $1 \rightarrow 2$ et $-1 \rightarrow -2$; les deux raies médianes ($\Omega = \Omega_0 \pm \omega$) sont doubles et correspondent l'une aux deux transitions confondues $0 \rightarrow 1$ et $1 \rightarrow 0$, l'autre aux deux transitions $0 \rightarrow -1$ et $-1 \rightarrow 0$. Du fait de l'existence d'une

structure Zeeman dans chacun des deux niveaux hyperfins, le spectre de ^{87}Rb est donc, comme celui de tous les alcalins en général, plus compliqué que celui de l'hydrogène.

Nous allons à présent décrire l'effet sur ce spectre du couplage de l'atome avec un champ de radiofréquence.

b) Calcul des probabilités de transition hyperfines pour ^{87}Rb habillé

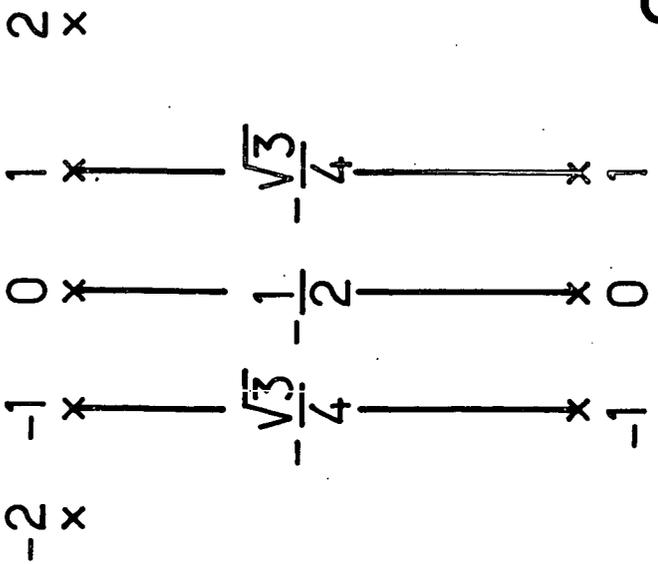
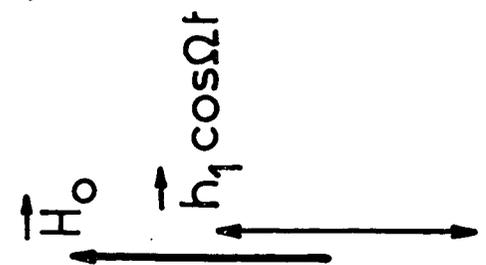
Pour effectuer ce calcul, il suffit d'utiliser les expressions (VI,B,7) et (VI,B,8) en y faisant $J = 2$, $J' = 1$ et en remarquant que l'on a $g_\alpha = -g_\alpha$. Il résulte alors des relations (VI,B,1) que l'on a $\psi'_\alpha = \psi_\alpha$, (J_0 est une fonction paire). On pose d'autre part $-g_\alpha \mu_B H_1 = \omega_1$ et l'on met finalement (VI,B,7) sous la forme :

$$\begin{aligned} \langle \overline{F', m', n'} | M_q | \overline{F, m, n} \rangle_\psi &= 2\mu_B \langle \overline{F', m', n'} | S_q | \overline{F, m, n} \rangle_\psi && \text{(VI,B,10)} \\ &= 2\mu_B \sum_{m_1 m'_1} R_{m'_1 m_1}^{(1)}(\psi'_\alpha) R_{m_1 m}^{(2)}(\psi'_\alpha) \\ &J_{n', -n} \left[(q-2m'_1) \frac{\omega_1}{\omega} \right] \langle F', m'_1 | S_q | F, m_1 \rangle \delta_{m_1, m'_1 - q} \end{aligned}$$

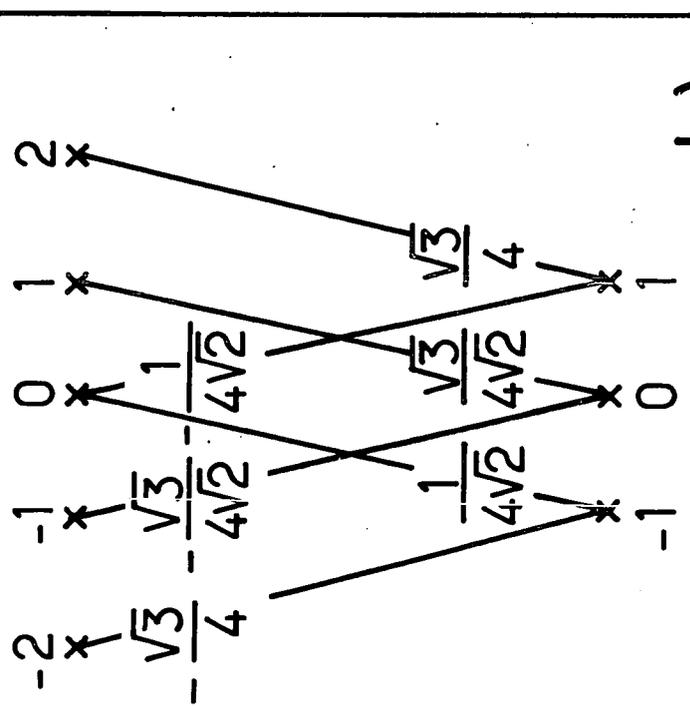
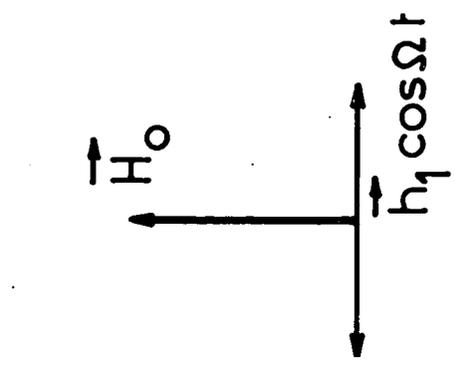
L'amplitude de la transition s'obtient en reportant cette expression dans (VI,B,8). Le calcul de cette amplitude ne présente aucune difficulté (les éléments de matrice $R^{(1)}$ et $R^{(2)}$ sont tabulés en Appendice III). Nous donnons en Appendice VI l'expression des éléments de matrice de transition $\overline{t}_{m', m}^{(r)}(\pi, \pi^{(S)})$, $\overline{t}_{m', m}^{(r)}(\pi, \sigma^{(S)})$, $\overline{t}_{m', m}^{(r)}(\sigma, \sigma^{(S)})$ et $\overline{t}_{m', m}^{(r)}(\sigma, \pi^{(S)})$, correspondant aux quatre cas de polarisation représentés sur les figures 30-b, c, d et e. Nous vérifions en détail, dans la partie expérimentale de ce travail (chapitre XI), la dépendance de ces amplitudes de transition en fonction de ω_1/ω . Nous nous limiterons ici à une description qualitative du spectre telle qu'elle résulte de ces calculs.

c) Description du spectre observé pour un champ habillant en polarisation σ

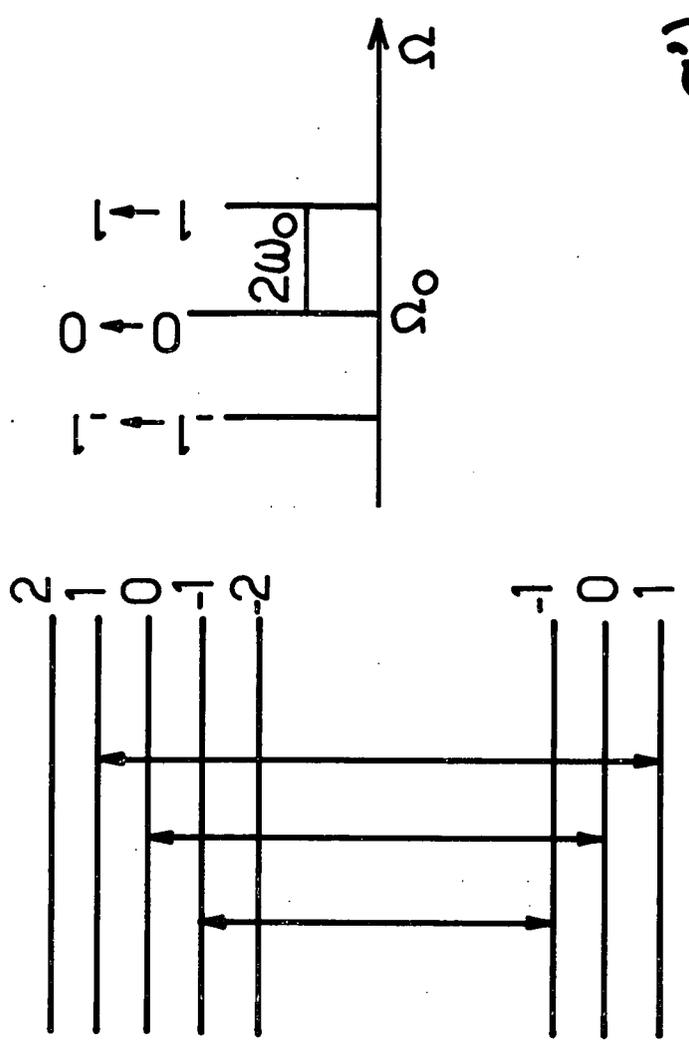
Si le champ habillant est perpendiculaire au champ statique ($\psi = \frac{\pi}{2}$), le facteur de Landé est modifié simultanément et de façon identique dans les deux niveaux hyperfins. Cette modification se traduit par une réduction de la séparation des diverses raies Zeeman qui se rapprochent les unes des autres sur la bande d'absorption centrale et viennent se confondre pour les diverses annulations des deux facteurs de Landé.



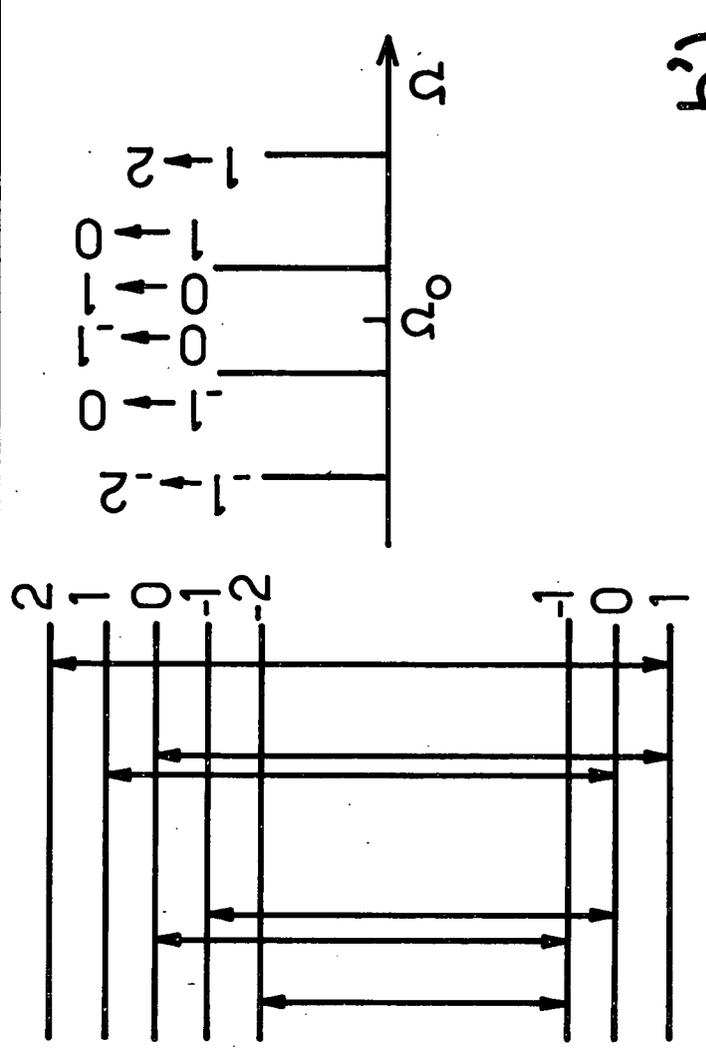
a)



b)



a')



b')

Fig. 31

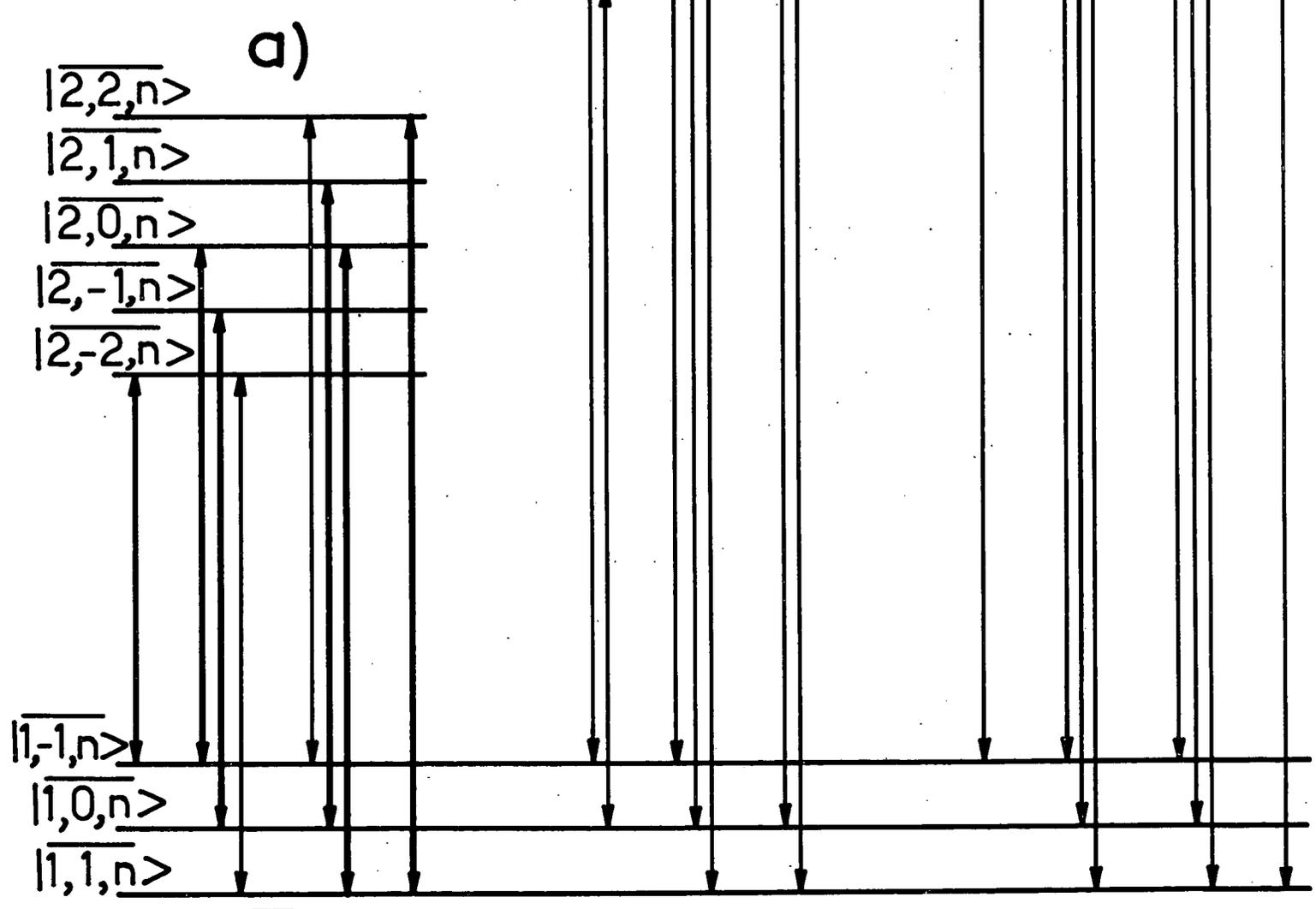
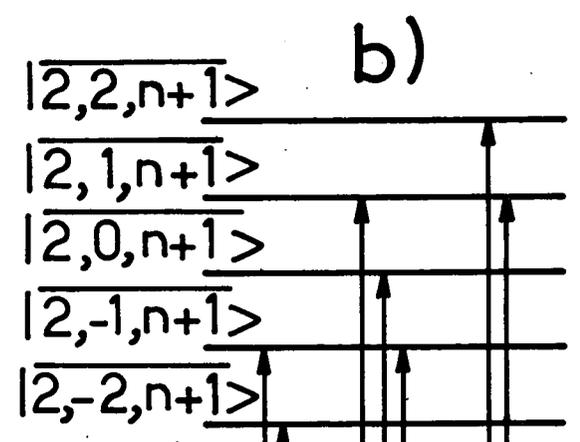
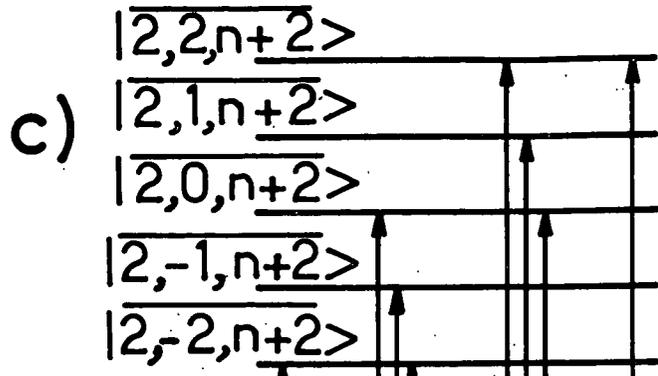
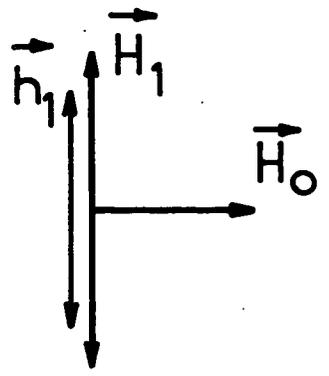
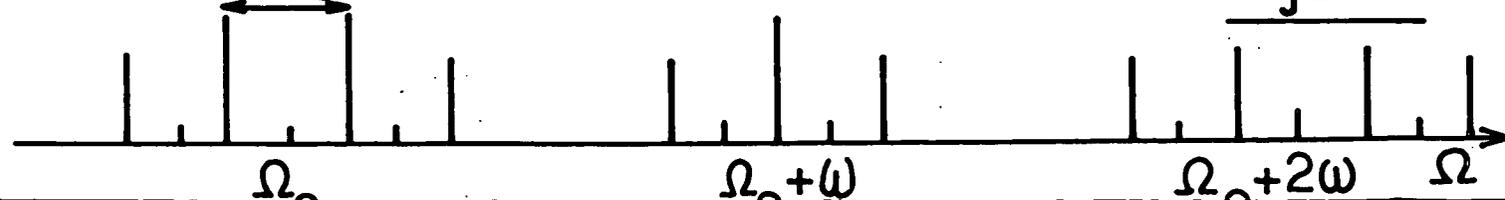


Fig. 32



La figure 32-a représente précisément les transitions observables sur cette bande centrale (transitions $F', n \leftrightarrow F, n$) pour un champ "sonde" parallèle au champ habillant (configuration $\sigma, \sigma^{(S)}$). Aux six transitions $\Delta m_F = \pm 1$ déjà observables sur l'atome libre (figure 31-b') et représentées en traits renforcés viennent s'ajouter deux transitions $\Delta m_F = \pm 3$ (en traits fins) qui sont interdites sur l'atome libre : l'atome peut par exemple gagner trois unités de moment angulaire sans changer le nombre total de photons de radiofréquence (transition $-1, n \rightarrow 2, n$) en absorbant d'abord un photon du champ "sonde" (qui a une amplitude de probabilité d'être $\sigma_+^{(S)}$), puis un photon du champ habillant (qui a également une certaine amplitude de probabilité d'être σ_+) et en réémettant enfin, par l'intermédiaire de sa composante σ_- , un second photon de radiofréquence. Les fréquences de ces nouvelles transitions $\Delta m_F = \pm 3$ sont confondues avec celles des raies médianes $\Delta m_F = \pm 1$, si bien que le spectre de l'atome habillé a, sur la bande centrale, le même aspect que celui de l'atome libre (figure 31-b') (à la réduction de l'écartement des raies près). L'étude de l'intensité des raies permet cependant, comme nous le montrerons au chapitre XI, de mettre expérimentalement en évidence dans le spectre la contribution des nouvelles transitions $\Delta m_F = \pm 3$.

La figure 32-b représente le spectre observable dans les mêmes conditions ($\sigma, \sigma^{(S)}$) sur la première bande latérale : le nombre total de photons absorbés ou émis par l'atome est alors pair (un photon du champ "sonde" et un nombre impair de photons radiofréquence), si bien que les transitions observables correspondent à un Δm_F pair, égal à 0 ou ± 2 . Le spectre, constitué alors de trois raies équidistantes, est analogue à celui qu'on observe sur l'atome libre en polarisation $\pi^{(S)}$ (figure 31-a'). La séparation des raies, égale à $2\overline{\omega_0}$, dépend toujours du facteur de Landé de l'atome habillé et s'annule notamment avec celui-ci. Un spectre analogue apparaît sur toutes les bandes latérales impaires.

Enfin, la figure 32-c montre les transitions observables sur la deuxième bande latérale (et en général sur toutes les bandes latérales paires) : le nombre total de photons impliqués est alors impair (un photon du champ "sonde" et un nombre pair de photons du champ habillant) et les transitions correspondent à $\Delta m_F = \pm 1$ ou ± 3 : on a, comme sur la bande centrale, un spectre de quatre raies équidistantes (remarquons que, contrairement au cas du spectre hyperfin de l'hydrogène décrit au § VI-B-1, on n'a pas pour cette configuration $\sigma, \sigma^{(S)}$ d'annulation des intensités des raies observées sur les bandes latérales).

Toutes les conclusions précédentes sont inversées si le champ "sonde" a une polarisation $\pi^{(S)}$ (configuration $\sigma, \pi^{(S)}$) : le spectre est constitué alter-

nativement d'un triplet sur la bande centrale et les bandes latérales paires et d'un quadruplet sur les bandes latérales impaires. La séparation des raies dans ces triplets et quadruplets est toujours proportionnelle à $J_0(\frac{\omega_1}{\omega})$.

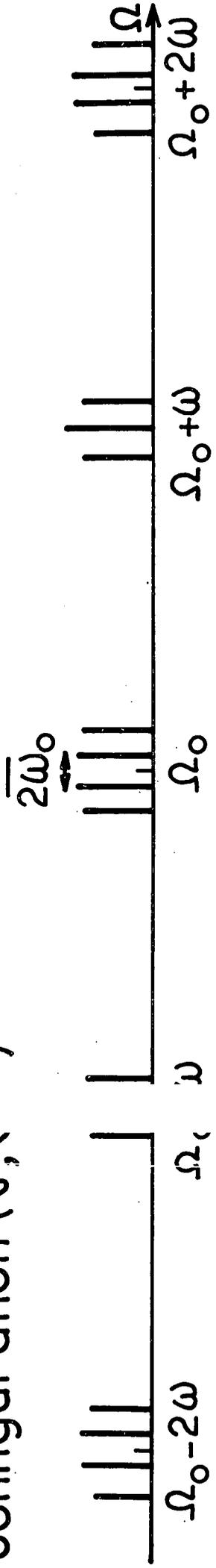
d) Description du spectre observé pour un champ habillant en polarisation π

Le facteur de Landé des deux niveaux hyperfins n'est pas modifié pour cette polarisation de la radiofréquence. En conséquence, la séparation des raies observables sur les bandes centrales et latérales est, à présent, indépendante de l'amplitude de la radiofréquence et correspond à la fréquence de Larmor ω_0 de l'atome libre. D'autre part, chaque photon de radiofréquence ayant un moment angulaire nul le long de H_0 , l'interaction avec le champ habillant ne peut changer m : dans le cas où le champ "sonde" a une polarisation $\pi^{(S)}$ (configuration $\pi, \pi^{(S)}$), les seules transitions observées, tant sur la bande centrale que sur les bandes latérales, correspondent à $\Delta m_F = 0$; si le champ "sonde" est polarisé en $\sigma^{(S)}$ (configuration $\pi, \sigma^{(S)}$), toutes les transitions ont au contraire un $\Delta m_F = \pm 1$.

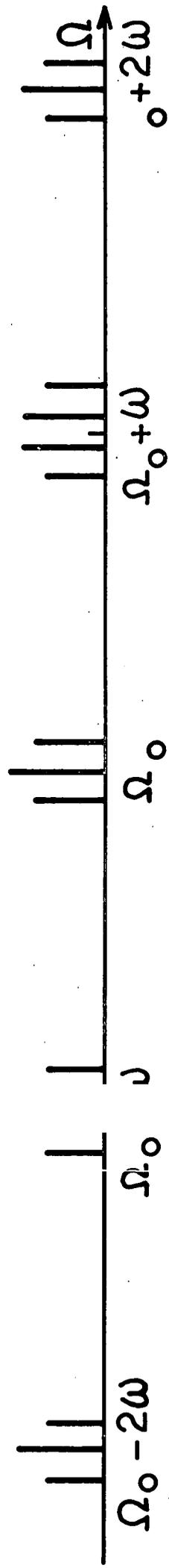
Il se trouve d'autre part que la probabilité de la transition $m = 0 \leftrightarrow m' = 0$, observée avec un champ "sonde" $\pi^{(S)}$, est nulle sur toutes les bandes latérales et est sur la bande centrale indépendante du niveau de la radiofréquence (voir en Appendice VI l'expression des amplitudes de transition $t_{00}^{(r)}(\pi, \pi^{(S)})$). Ce résultat se comprend aisément : les niveaux atomiques de $m_F = 0$ ont en effet un moment magnétique nul le long de Oz et ne sont en fait pas couplés au champ de radiofréquence en polarisation π (cf. équations (III,A,6) et (III,A,7) dans lesquelles on fait $m = 0$); il est normal, dans ces conditions, que la probabilité de la transition induite entre ces niveaux à la fréquence $\Omega = \Omega_0$ soit indépendante du couplage avec le champ habillant; d'autre part, l'atome ne pouvant ni absorber ni émettre de photon de radiofréquence dans l'un ou l'autre de ces niveaux, nous comprenons qu'aucune transition $0_n \leftrightarrow 0_{n'}$ ne puisse être observée pour n' différent de n .

On déduit aisément des considérations précédentes que l'on doit observer, pour une configuration de champs $(\pi, \pi^{(S)})$, un triplet sur la bande centrale et seulement des doublets constitués chacun de deux raies $+1, n \leftrightarrow +1, n'$ et $-1, n \leftrightarrow -1, n'$ sur chacune des bandes latérales (les deux raies de chaque doublet étant séparées de $4\omega_0$). Pour une configuration de champ $(\pi, \sigma^{(S)})$, on observera par contre une série de quadruplets $\Delta m_F = \pm 1$ sur la bande centrale et sur toutes les bandes latérales. Nous avons finalement résumé, sur la figure 33, l'aspect des spectres obtenus pour les quatre configurations du champ habillant et du champ "sonde" étudiées : tous les spectres pos-

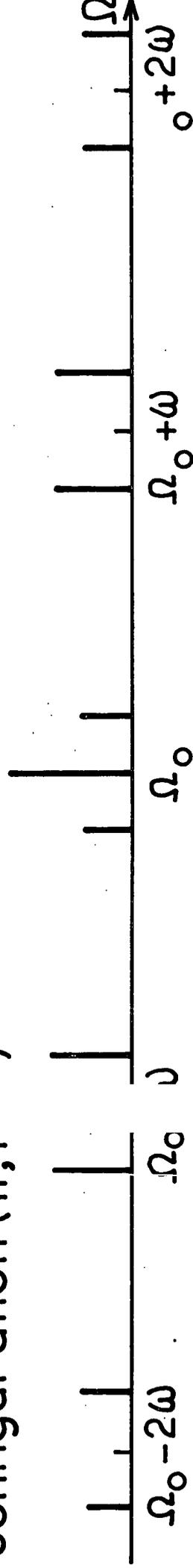
Configuration (σ, ϵ)



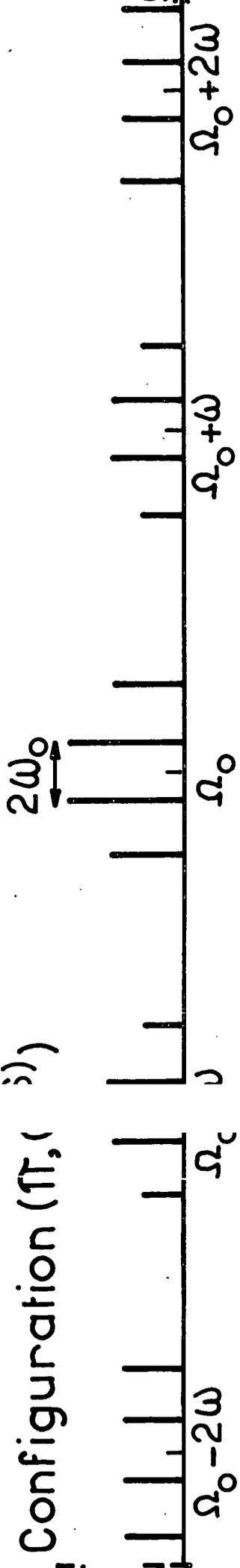
Configuration (σ, τ)



Configuration (π, τ)



Configuration (π, ϵ)



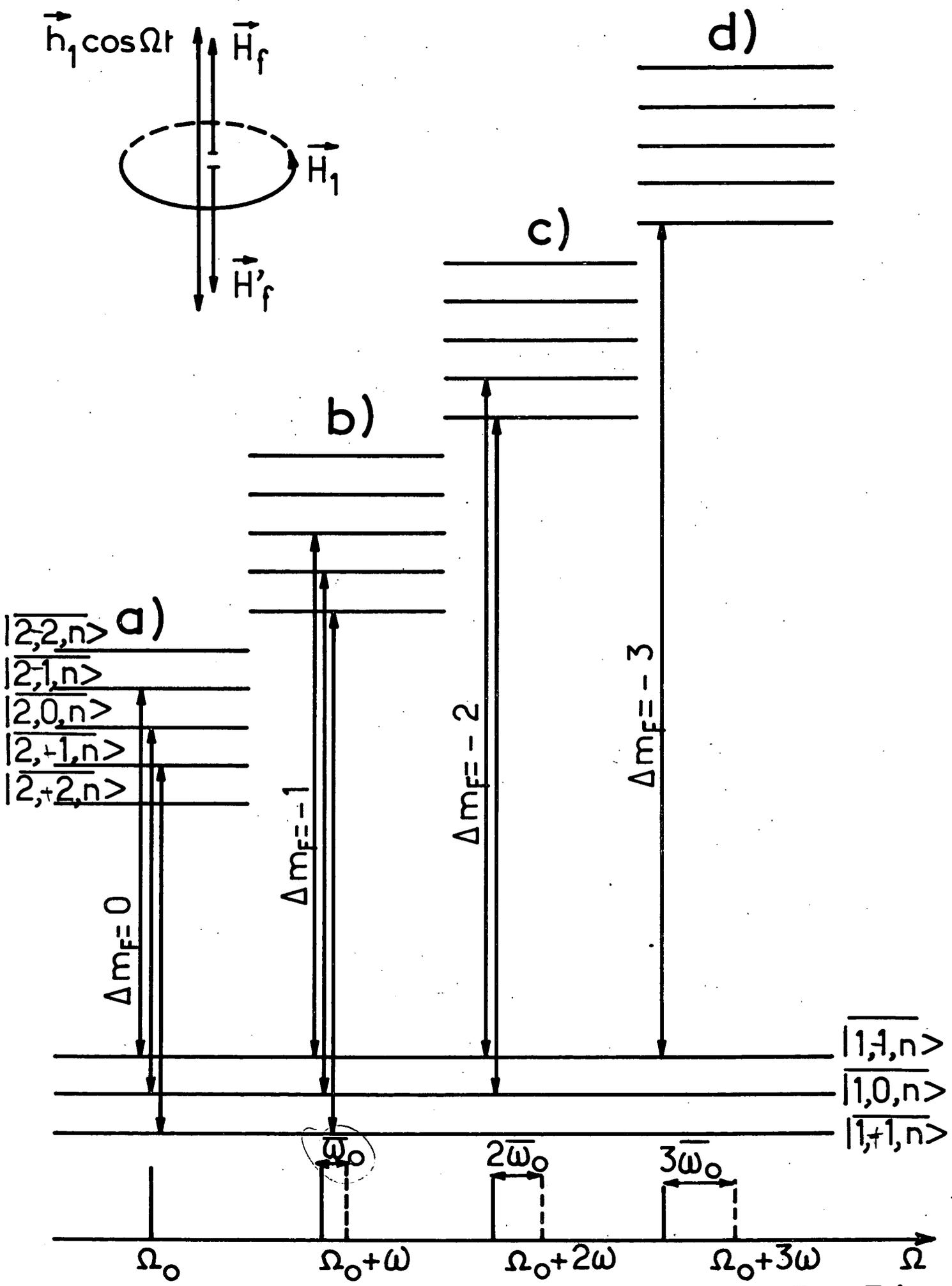


Fig. 34

sèdent une infinité de raies (dont les intensités vérifient la règle de somme (VI,A,7) indépendante du niveau de la radiofréquence) et sont symétriques par rapport à la fréquence centrale $\Omega = \Omega_0$.

4) Spectre Zeeman hyperfin en champ statique nul d'un atome alcalin habillé par un champ de radiofréquence tournant

Nous avons vu que les champs statiques équivalents \vec{H}_f et \vec{H}'_f associés à un champ de radiofréquence tournant sont opposés dans les deux niveaux hyperfins de l'état fondamental d'un atome alcalin (§ V-C-2). Il s'ensuit que l'ordre de succession des sous-niveaux Zeeman qui est inversé pour F et F' lorsque l'atome est plongé dans un vrai champ magnétique (figure 31) redevient le même dans les deux niveaux hyperfins en présence des champs fictifs \vec{H}_f et \vec{H}'_f . Nous avons vu que ce résultat a des conséquences importantes sur la relaxation transversale de l'orientation atomique (§ V-C-2). Il est également à l'origine d'une modification profonde du spectre Zeeman hyperfin de l'atome : intéressons-nous tout d'abord à la bande centrale de ce spectre : si le champ "sonde" est parallèle à la direction commune de \vec{H}_f et \vec{H}'_f (polarisation $\pi^{(S)}$ par rapport aux champs statiques équivalents; voir figure 34-a), on observera trois transitions $\Delta m_F = 0$ confondues à la même fréquence : le spectre est alors constitué d'une seule raie au lieu de trois comme sur l'atome libre en présence d'un vrai champ \vec{H}_0 (figure 31-a'). Au contraire, si le champ "sonde" est perpendiculaire à la direction de \vec{H}_f et \vec{H}'_f (polarisation $\sigma^{(S)}$ par rapport aux champs statiques équivalents; voir figure 35-a), on observera sur la bande centrale six transitions $\Delta m_F = \pm 1$ groupées trois par trois : au lieu d'obtenir le quadruplet caractéristique de l'effet Zeeman ordinaire (figure 31-b'), on observe un simple doublet. Ainsi, sur la bande d'absorption centrale, le spectre d'un alcalin est beaucoup plus simple en présence des champs \vec{H}_f et \vec{H}'_f qu'en présence d'un vrai champ statique et s'apparente tout à fait au spectre Zeeman normal de l'atome d'hydrogène libre décrit au § VI-B-1. A ce spectre s'ajoutent cependant des raies latérales correspondant à des transitions entre multiplicités de l'atome habillé associées à des valeurs différentes de n. En polarisation $\pi^{(S)}$, les transitions correspondantes sont représentées sur les figures 34-b,c et d : sur la première bande latérale ($n-n' = +1$), l'atome absorbe un photon $\pi^{(S)}$ et réémet un photon σ_+ du champ habillant : les trois transitions permises ont un $\Delta m_F = -1$ et sont confondues à la fréquence $\Omega_0 + \omega - \bar{\omega}_0$. Sur la deuxième bande latérale, la variation du moment angulaire atomique est $\Delta m_F = -2$ (absorption d'un photon $\pi^{(S)}$ et émission de 2 photons σ_+ du champ de radiofréquence) : il ne reste que deux transitions confondues à la fréquence

$\Omega_0 + 2\omega - 2\bar{\omega}_0$. Enfin, sur la troisième bande, il ne reste plus qu'une transition $\Delta m_F = -3$ à la fréquence $\Omega_0 + 3\omega - 3\bar{\omega}_0$. Trois raies latérales symétriques par rapport à la fréquence Ω_0 (non représentées sur la figure), correspondant à $\Delta m_F = +1, +2$ et $+3$, apparaissent aux fréquences $\Omega_0 - \omega + \bar{\omega}_0$, $\Omega_0 - 2\omega + 2\bar{\omega}_0$ et $\Omega_0 - 3\omega + 3\bar{\omega}_0$. Ce sont les seules raies observables. Ici encore, la polarisation circulaire du champ habillant limite le nombre de transitions permises.

Les figures 35-b,c,d et e décrivent enfin les bandes latérales dans le cas d'un champ "sonde" en polarisation $\sigma^{(S)}$. Il est facile de montrer que l'on observe alors quatre bandes de part et d'autre de la bande centrale (seules les bandes de fréquence supérieure à Ω_0 sont représentées sur la figure). Les deux premières sont constituées de doublets et les deux dernières d'une seule raie chacune. Le calcul des intensités de toutes ces raies ne présente aucune difficulté connaissant les états propres de l'atome habillé par le champ tournant. On pourra le trouver dans la référence (52).

En conclusion, l'étude du spectre d'absorption de l'atome habillé en champ statique faible ou nul illustre de façon très claire le double rôle joué par les photons de radiofréquence : absorbés ou réémis réellement par le système atomique en même temps que celui-ci absorbe un photon du champ "sonde", les photons de radiofréquence font apparaître de nouvelles transitions dans le spectre (bandes latérales) : absorbés ou réémis virtuellement, ils renormalisent les niveaux d'énergie atomiques, ce qui entraîne une modification du spectre Zeeman observé sur la bande centrale et sur les bandes latérales (modification de l'écartement des raies ou levée de leur dégénérescence suivant la polarisation du champ habillant).

VI-C. DIFFUSION DE LUMIERE PAR L'ATOME HABILLE (*)

1) Introduction. Position du problème

Nous nous proposons d'étudier dans ce paragraphe la diffusion du champ "sonde" par l'atome habillé. Nous nous limiterons au cas où ce champ est de nature optique, car les sections efficaces de diffusion sont négligeables dans le domaine

(*) voir également référence (37)

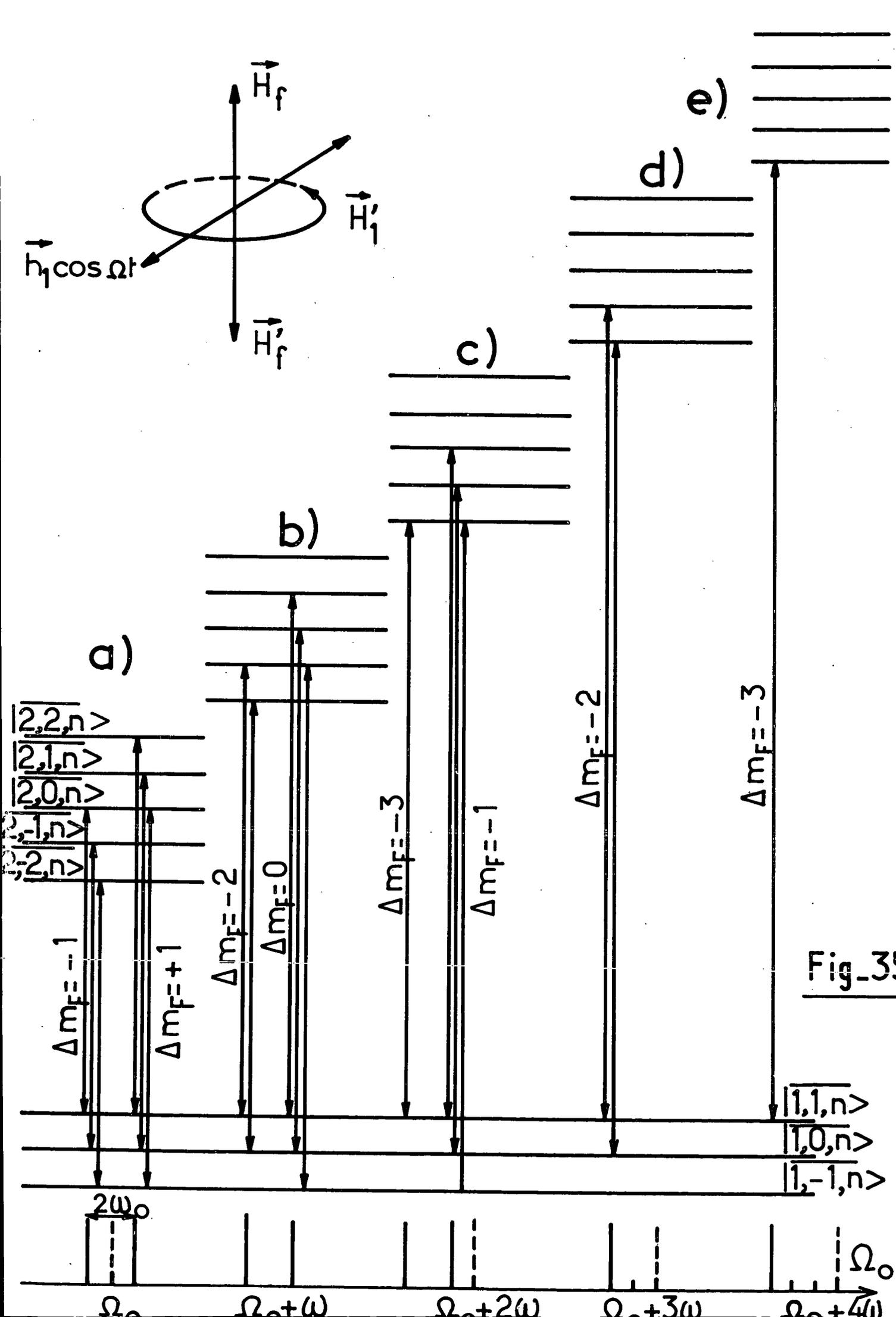
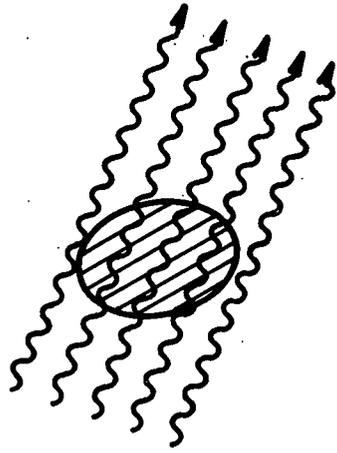
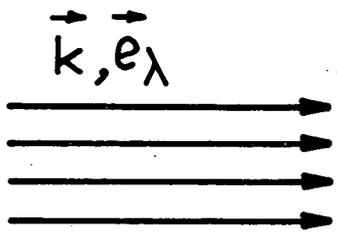
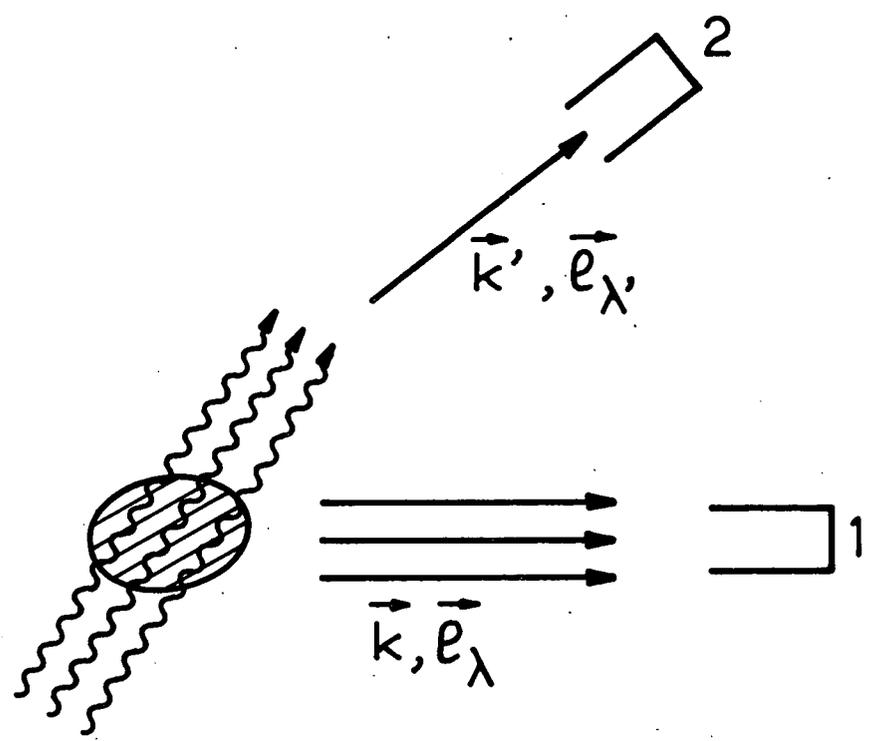


Fig-35



a)



b)

Fig_36

hyperfréquence étudié plus haut. De plus, comme nous l'avons déjà signalé (remarque de la page 28), la largeur spectrale des sources utilisées dans le domaine optique et l'effet Doppler rendent en général l'étude de la diffusion de la lumière beaucoup plus intéressante que celle de son absorption. Comparons en effet les expériences d'absorption et de diffusion optique effectuées sur l'atome habillé : supposons qu'une onde lumineuse (vecteur d'onde \vec{k} , polarisation \vec{e}_λ , fréquence $\Omega_k = ck$) arrive sur un atome interagissant avec un champ de radiofréquence contenant n photons (figure 36-a). Cette onde est susceptible, en se couplant au dipôle électrique \vec{D} de l'atome, d'induire des transitions entre le niveau fondamental $|f\rangle$ de durée de vie infinie (que nous supposons ici diamagnétique) et un niveau excité $|e\rangle$ de spin J (sous-niveaux Zeeman $|e_m\rangle$), d'énergie Ω_0 dont la largeur naturelle Γ a pour origine l'émission spontanée. Les photons incidents ont donc une certaine probabilité d'être absorbés par le système atomique. Cette probabilité est proportionnelle à une section efficace totale d'absorption lumineuse \mathcal{A}_T qui présente des variations résonnantes aux différentes fréquences de Bohr de l'atome habillé et qui est donnée au voisinage d'une de ces fréquences par une formule analogue à (VI,A,2) :

$$\mathcal{A}_T = c^{te} \frac{|\langle F, n' | \vec{e}_\lambda^* \cdot \vec{D} | e_m, n \rangle|^2}{\frac{\Gamma^2}{4} + \left[\Omega_k - \Omega_0 + (n' - n)\omega - m\bar{\omega}_0 \right]^2} \quad (\text{VI,C,1})$$

(on passe de (VI,A,2) à (VI,C,1) en remplaçant \vec{M} par \vec{D} et Γ par $\frac{\Gamma}{2}$ puisque seul le niveau excité possède à présent une largeur naturelle).

Une fois le photon incident absorbé, l'atome porté dans l'état excité revient à l'état fondamental en émettant un photon de fluorescence $\vec{k}' \vec{e}_\lambda$, après avoir éventuellement absorbé ou émis dans l'état excité un ou plusieurs photons de radiofréquence (figure 36-b). Suivant que l'on mesure le nombre total de photons transmis sur le faisceau lumineux à l'aide du détecteur n°1, ou que l'on s'intéresse au contraire aux photons $\vec{k}' \vec{e}_\lambda$, réémis dans une direction, avec un état de polarisation et éventuellement une énergie déterminés (détecteur n°2), on réalise une expérience d'absorption ou de diffusion.

Tant que le champ sonde est monochromatique, ces deux types d'expériences peuvent fournir des renseignements analogues sur l'atome habillé; l'absorption et la diffusion présentent notamment l'une et l'autre des variations résonnantes lorsque Ω_k correspond à une des fréquences de Bohr de l'hamiltonien \mathcal{H} .

Par contre, si l'excitation se fait en raie large, ce qui est, comme nous l'avons déjà signalé, généralement le cas dans le domaine optique (cf. note

page 26), les caractéristiques de l'absorption et de la diffusion deviennent très différents. Il faut en effet dans ces conditions intégrer les diverses sections efficaces monochromatiques sur la forme de raie ^(*). Nous savons déjà que lors d'une telle intégration, toutes les informations relatives au couplage avec la radiofréquence disparaissent sur la section efficace totale d'absorption (cf. § VI-A-5). Par contre, nous avons montré au § I-E-2 que la lumière totale diffusée dans une direction et avec un état de polarisation donnés présente des variations résonnantes lorsqu'on balaie le champ H_0 au voisinage des points de croisement et d'anticroisement introduits dans l'état excité par le couplage avec la radiofréquence. L'origine physique de cette différence essentielle entre l'absorption et la diffusion se comprend aisément : alors que l'absorption totale se fait sur des paquets d'onde transmis qui n'ont interagi avec l'atome qu'un temps $1/\Delta$ extrêmement court, les paquets d'onde diffusés latéralement le sont un temps $1/\Gamma$ après l'excitation de l'atome ($\Delta \gg \Gamma$) et le couplage entre l'atome et la radiofréquence a eu alors le temps de s'effectuer dès lors que la condition $\omega_1 > \Gamma$ est remplie.

L'avantage des méthodes de diffusion sur celles de l'absorption pour l'étude des propriétés de l'atome habillé étant ainsi mis en évidence, il nous paraît intéressant de reprendre l'étude de la diffusion dans un point de vue différent de celui que nous avons adopté au § I-E-2 : nous avons en effet, dans ce paragraphe, donné une interprétation détaillée de la diffusion en raie large par l'atome habillé en rattachant directement les signaux détectés aux valeurs moyennes des grandeurs atomiques de l'état excité. Le point de vue que nous avons alors adopté revenait en fait à traiter phénoménologiquement l'absorption et la diffusion optique qui étaient considérées comme de simples méthodes de préparation et de détection du système atomique. Nous nous proposons à présent de décrire directement ce qui se passe sur le champ optique au cours de la diffusion en précisant le rôle respectif des deux types de photons. Dans ce but, nous serons amenés à développer l'amplitude de diffusion en puissances du couplage avec les deux champs et nous associerons à tout terme de ce développement un diagramme de Feynman "visualisant" l'histoire complète du système au cours de chaque processus (§ VI-C-2).

(*) On peut se ramener dans tous les cas à l'étude d'atomes immobiles excités par une raie de largeur Δ dont le profil est donné par le produit de convolution de la forme de raie excitatrice et du profil de la raie d'absorption.

Nous commencerons par décrire les différentes résonances de diffusion au moyen des diagrammes de Feynman qui permettent d'en rendre compte à l'ordre le plus bas. Nous pourrions ainsi justifier la dénomination de "double résonance" donnée en général aux résonances d'anticroisement de l'atome habillé (§ VI-C-3) et nous verrons que les résonances de cohérence de type Franken résultent en fait de l'interférence entre deux diagrammes de Feynman distincts (§ VI-C-4). Nous montrerons enfin comment on peut rendre compte des différents effets radiatifs (élargissements, déplacements, saturation des résonances) en effectuant une resommation des diagrammes de Feynman à tous les ordres du couplage entre l'atome et la radiofréquence (§ VI-C-5). Partis d'une approche perturbative, qui permet de dégager en terme de processus élémentaires la signification des diverses résonances, nous aboutirons ainsi de nouveau au point de vue de l'atome habillé qui consiste à considérer que les photons optiques sont diffusés par le système global "atome + champ de radiofréquence".

2) Description de la diffusion optique par les diagrammes de Feynman

a) Description quantique du champ optique et de son interaction avec le système atomique

A tout mode optique de vecteur d'onde \vec{k} et de polarisation \vec{e}_λ , nous associons un photon $|\vec{k}, \lambda\rangle$ d'énergie Ω_k , état propre de l'hamiltonien optique :

$$\mathcal{H}_{\text{opt}} = \sum_{\vec{k}, \lambda} \Omega_k a_{\vec{k}, \lambda}^\dagger a_{\vec{k}, \lambda} \quad (\text{VI,C,1})$$

($a_{\vec{k}, \lambda}^\dagger$ et $a_{\vec{k}, \lambda}$ sont les opérateurs de création et d'annihilation d'un photon dans le mode $|\vec{k}, \lambda\rangle$).

Comme dans la référence (⁴⁶), le faisceau lumineux sera constitué par un mélange statistique de photon $|\vec{k}, \lambda\rangle$ dont la répartition en énergie est donnée par une fonction $u(\Omega_k)$ centrée autour d'une valeur Ω_k de largeur Δ (voir figure 2). Le nombre de photons dans chacun des modes du champ optique est supposé très petit (pratiquement égal à un au maximum), ce qui constitue une grande différence avec le champ de radiofréquence qui condense, comme nous l'avons vu (§ I-B-2 - c) un très grand nombre de photons dans un seul mode. Il en résulte que l'émission spontanée de photons optiques l'emporte largement sur l'émission stimulée que nous pouvons totalement négliger (c'est le contraire en ce qui concerne les photons de radiofréquence).

L'interaction dipolaire électrique \mathcal{H}_I entre le système atomique et le champ optique n'agit pas sur les variables de radiofréquence et ne couple entre eux que les états $|f, n, \vec{k}, \lambda\rangle$ et $|e_m, n\rangle$ correspondant au même nombre n :

$$\langle f, n, \vec{k}, \lambda | \mathcal{H}_I | e_m, n' \rangle = \delta_{n, n'} B_m \quad (\text{VI,C,2})$$

avec :

$$\langle f, \vec{k}, \lambda | \mathcal{H}_I | e_m \rangle = B_m \quad (\text{VI,C,3})$$

b) Expression de la section efficace de diffusion $k\lambda \rightarrow k'\lambda'$

La section efficace de diffusion d'un photon optique, et par suite les divers signaux mesurés, se calculent à partir de la matrice S de la théorie des collisions (⁴²) ou, ce qui revient au même, de la matrice de transition T définie par :

$$S = I - 2i\pi\delta(E_i - E_d) T \quad (\text{VI,C,4})$$

I étant la matrice unité, E_i et E_d les énergies des états initial $|f, n, k, \lambda\rangle$ et final $|f, n', k', \lambda'\rangle$ de la diffusion. On peut montrer d'autre part (⁴²) que T est donnée par la relation :

$$T = \mathcal{H}_I \frac{1}{E_i - \mathcal{H}_T + i\varepsilon} \mathcal{H}_I \quad (\text{VI,C,5})$$

où ε est un infiniment petit réel positif que l'on fait tendre vers zéro à la fin des calculs et où \mathcal{H}_T représente l'hamiltonien total du système "atome + champ optique et de radiofréquence" :

$$\mathcal{H}_T = \mathcal{H}_0 + V + \mathcal{H}_{\text{opt}} + \mathcal{H}_I \quad (\text{VI,C,6})$$

\mathcal{H}_0 est, dans la somme (VI,C,6), l'hamiltonien du système atomique et du champ de radiofréquence en absence de couplage. Appelant P_e le projecteur dans l'état atomique excité, nous pouvons écrire :

$$\mathcal{H}_0 = \Omega_0 P_e + \omega_0 J_z + \omega a^\dagger a \quad (\text{VI,C,7})$$

Supposons que le champ de radiofréquence est incohérent et représenté par un état $|n\rangle$. La probabilité par unité de temps $W_{f, n, k, \lambda \rightarrow f, n', k', \lambda'}$ de la transition $|f, n, k, \lambda\rangle \rightarrow |f, n', k', \lambda'\rangle$ s'écrit, en supposant différentes les directions de \vec{k} et de \vec{k}' :

$$W_{f,n,k\lambda \rightarrow f,n',k'\lambda'} = 2\pi | \langle f,n',k'\lambda' | T | f,n,k\lambda \rangle |^2 \delta(E_i - E_d) \quad (\text{VI,C,8})$$

Si nous ne détectons pas dans l'état final les photons de radiofréquence et si nous n'analysons pas l'énergie des photons optiques diffusés mais seulement leur direction et leur état de polarisation, nous devons sommer la probabilité de transition sur tous les états finaux correspondant à des nombres n' de photons de radiofréquence différents et à des énergies Ω_k , différentes. D'autre part, il nous faudra pondérer la probabilité de diffusion par le profil $u(\Omega_k)$ de la raie excitatrice. Finalement, la section efficace de diffusion dans la direction \vec{k}' avec la polarisation \vec{e}_λ , s'écrira :

$$A_{k\lambda \rightarrow k'\lambda'} = c^{te} \sum_{n'} \iint u(\Omega_k) d\Omega_k d\Omega_{k'} \delta[\Omega_k - \Omega_{k'} + (n-n')\omega] | \langle f,n',k'\lambda' | T | f,n,k\lambda \rangle |^2 \quad (\text{VI,C,9})$$

Le calcul de la section efficace se ramène ainsi à celui de la matrice de transition T que nous allons étudier à présent plus en détail.

c) Développement de la matrice de transition en série de perturbation

T se présente, d'après (VI,C,5), comme le produit de trois termes décrivant successivement de droite à gauche :

- α) l'absorption du photon incident et l'excitation optique de l'atome (\mathcal{H}_I)
 - β) l'évolution de l'atome dans l'état excité sous l'effet simultané des couplages V et \mathcal{H}_I avec le champ de radiofréquence et le champ optique ($\frac{1}{E_i - \mathcal{H}_I + i\epsilon}$)
 - γ) la retombée de l'atome dans l'état fondamental et l'émission du photon diffusé (\mathcal{H}_I)
- (nous négligerons dans toute la suite le processus antirésonnant qui correspond à l'émission du photon diffusé $|\vec{k}'\lambda'\rangle$ précédant l'absorption du photon incident $|\vec{k}\lambda\rangle$).

Le couplage \mathcal{H}_I avec le champ optique dans l'état excité est responsable des effets radiatifs bien connus : largeur naturelle Γ et "self-énergie" ΔE du niveau excité. La théorie de l'émission spontanée (⁴²) montre qu'on tient compte de ces effets en introduisant à la place de \mathcal{H}_I au dénominateur de T dans (VI,C,5) le terme complexe $\Delta E - i\frac{\Gamma}{2}$. (On admet que le couplage de l'atome avec la radiofréquence ne modifie pas le processus d'émission spontanée; cf. § II-C-2-b). On a donc :

$$T = \mathcal{H}_I G(z) \mathcal{H}_I \quad (\text{VI,C,10})$$

en introduisant le propagateur :

$$G(z) = \frac{1}{z - \mathcal{H}_0 - V} \quad (\mathcal{H}_{\text{opt}} \text{ est nul dans l'état excité puisque le photon incident a été absorbé}) \quad \text{(VI,C,11)}$$

avec $z = E_i + i \frac{\Gamma}{2}$.

(La self-énergie ΔE est réintégrée dans \mathcal{H}_0 .)

Le propagateur $G(z)$ peut se développer en puissances de V :

$$G = G_0 + G_0 V G_0 + \dots + G_0 (V G_0)^q + \dots \quad \text{(VI,C,12)}$$

avec

$$G_0 = \frac{1}{z - \mathcal{H}_0} \quad \text{(VI,C,13)}$$

On obtient finalement, en reportant (VI,C,12) dans (VI,C,10), le développement en série de perturbations de la matrice de transition :

$$T = \mathcal{H}_I G_0 \mathcal{H}_I + \mathcal{H}_I G_0 V G_0 \mathcal{H}_I + \dots + \mathcal{H}_I G_0 (V G_0)^q \mathcal{H}_I + \dots \quad \text{(VI,C,14)}$$

Le terme général de ce développement est associé à l'ensemble des processus de diffusion au cours desquels l'atome interagit q fois avec le champ de radiofréquence entre l'instant où il absorbe le photon incident et celui où il émet le photon diffusé. Chacun de ces processus peut être "visualisé", comme nous le montrons maintenant, par un diagramme analogue à ceux que nous avons introduits au chapitre I pour décrire le couplage de l'atome avec le seul champ de radiofréquence.

d) Les diagrammes de Feynman ⁽⁸⁴⁾.

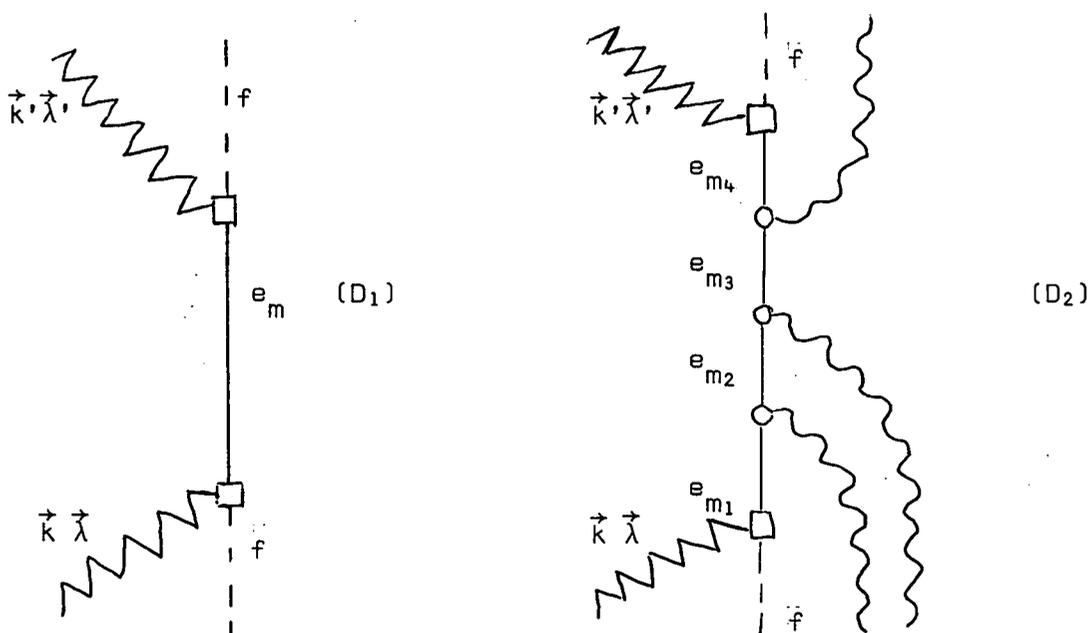
L'élément de matrice de T associé au terme le plus général du développement (VI,C,14) peut s'écrire en introduisant des relations de fermeture dans l'état excité :

$$\langle f, n', k', \lambda' | \mathcal{H}_I G_0 (V G_0)^q \mathcal{H}_I | f, n, k, \lambda \rangle = \sum_{\substack{m, m', m'' \dots \\ n'' \dots}} \langle f, n', k', \lambda' | \mathcal{H}_I | e_m, n' \rangle$$

$$\langle e_m, n' | G_0 | e_m, n' \rangle \langle e_m, n' | V | e_m'', n'' \rangle \dots \langle e_m, n | \mathcal{H}_I | f, n, k, \lambda \rangle \quad \text{(VI,C,15)}$$

A chacun des termes de cette sommation, lu de droite à gauche, peut être associé un diagramme de Feynman décrivant de bas en haut le processus de diffusion correspondant; on représente l'état fondamental $|f\rangle$ par une ligne pointillée, chaque état excité

$|e_m\rangle$ intermédiaire par un trait plein, les photons optiques par des lignes brisées, les photons de radiofréquence par des lignes ondulées. Réciproquement, chaque diagramme correspond de façon univoque à un terme algébrique du développement (VI,C,15). Tout vertex (intersection entre une ligne atomique et une ligne de photon) étant associé à un élément de matrice de V (vertex rond) ou \mathcal{H}_I (vertex carré) et tout état intermédiaire entre deux vertex à l'élément de matrice diagonal correspondant du "propagateur" G_0 . Donnons quelques exemples : le diagramme (D₁) ci-dessous représente la diffusion d'un photon optique ($\vec{k}, \vec{\lambda} \rightarrow \vec{k}', \vec{\lambda}'$) avec excitation intermédiaire de l'atome dans l'état $|e_m\rangle$.



Il est associé à l'amplitude de transition suivante :

$$\langle f', k', \lambda' | \mathcal{H}_I | e_m \rangle \frac{1}{\Omega_k - \Omega_0 - m\omega_0 + i \frac{\Gamma}{2}} \langle e_m | \mathcal{H}_I | f, k, \lambda \rangle \quad (\text{VI,C,16})$$

L'énergie Ω_k de l'état initial doit être égale à celle, $\Omega_{k'}$, de l'état final de la diffusion (la conservation de l'énergie est traduite par la fonction δ de l'expression (VI,C,4)). Par contre, l'énergie de l'état intermédiaire $\Omega_0 + m\omega_0$ peut être différente de $\Omega_k = \Omega_{k'}$, pourvu que le temps de séjour τ dans cet état soit suffisamment court ($\tau \leq \frac{1}{\Omega_k - \Omega_0 - m\omega_0}$). Suivant que $\Omega_0 + m\omega_0$ est égal ou non à Ω_k (à la largeur naturelle Γ

du niveau excité près), la transition intermédiaire est réelle ou virtuelle.

Le dénominateur d'énergie dans (VI,C,16) montre que l'amplitude de diffusion est d'autant plus importante que la durée de la transition intermédiaire est plus longue, cette amplitude passant par un maximum résonnant lorsque la transition intermédiaire devient réelle.

Le diagramme (D₂) possède quatre états intermédiaires et représente la diffusion d'un photon $|\vec{k}, \vec{\lambda}\rangle$ par un atome qui absorbe deux, puis réémet un photon de radiofréquence dans l'état excité, la conservation de l'énergie à l'issue de la diffusion s'écrivant dans ce cas :

$$\Omega_{k'} + \omega = \Omega_k + 2\omega$$

Un tel processus décrit donc une diffusion du champ "sonde" avec conversion de fréquence. L'amplitude de transition qui lui est associée peut être calculée très facilement. Son expression -qui comporte quatre dénominateurs d'énergie- est cependant très lourde : on comprend ainsi la grande simplification introduite ici par les diagrammes de Feynman dont l'écriture est finalement très commode et qui "visualisent" de façon particulièrement concrète les processus physiques impliqués dans la diffusion.

Dans ces diagrammes, les énergies des états intermédiaires de la diffusion sont les énergies propres de l'hamiltonien "non perturbé" \mathcal{H}_0 dans le niveau excité. La variation de ces énergies en fonction du champ magnétique est donnée par la figure 5 pour un spin $J = 1/2$, par la figure 14 pour un spin $J = 1$: dans un champ H_0 donné, il ne peut y avoir de transition intermédiaire réelle que si l'énergie $\Omega_k + n\omega$ de l'état initial $|f, n, \vec{k}, \vec{\lambda}\rangle$ coïncide avec l'une des valeurs propres de \mathcal{H}_0 dans ce champ. Il en résulte qu'en général un état intermédiaire seulement pourra être résonnant, sauf au voisinage des croisements de niveaux de \mathcal{H}_0 où il peut y avoir transition réelle vers plusieurs niveaux distincts "non perturbés" de même énergie; ceci conduit à l'existence de processus résonnants que nous nous proposons d'étudier maintenant à l'ordre le plus bas où ils se manifestent.

3) Interprétation diagrammatique de la double résonance

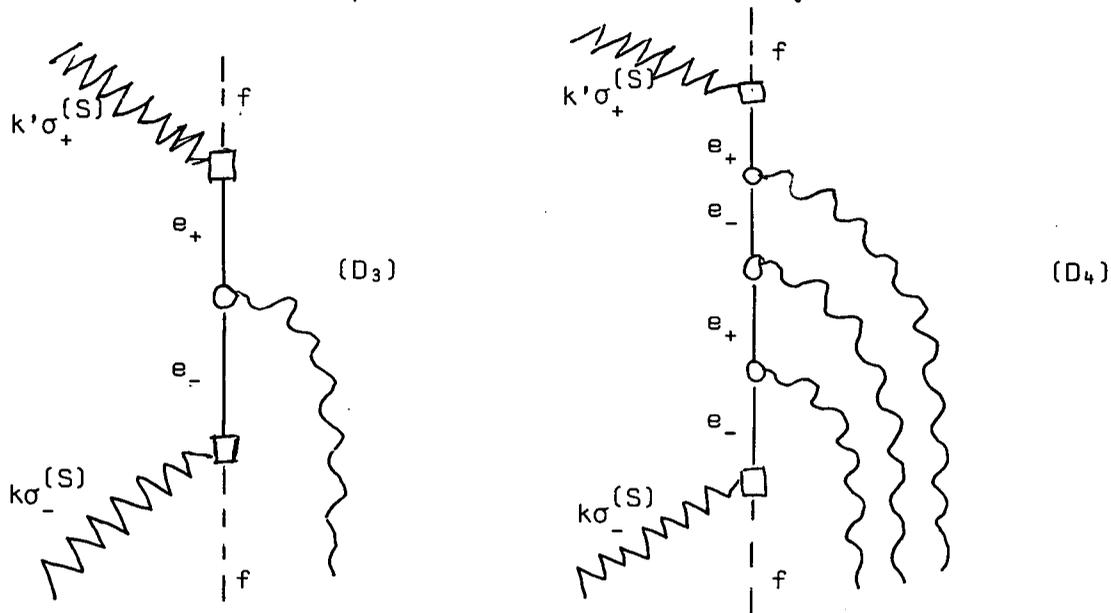
Supposons ici, pour simplifier, $J = 1/2$ et notons $|e_+\rangle$ et $|e_-\rangle$ les deux sous-niveaux de l'état excité. Envisageons tout d'abord des photons optiques incidents et diffusés ayant un état de polarisation circulaire respectivement $\sigma_-^{(S)}$ et $\sigma_+^{(S)}$; il s'agit donc de polarisations non cohérentes, chacune d'entre elles ne permettant d'exciter ou de détecter qu'un seul sous-niveau de l'état excité :

$$\langle f, \vec{k}, \sigma_-^{(S)} | \mathcal{H}_I | e_+ \rangle = B_+ = 0; \quad \langle f, \vec{k}, \sigma_-^{(S)} | \mathcal{H}_I | e_- \rangle = B_- \neq 0$$

$$\langle f, \vec{k}', \sigma_+^{(S)} | \mathcal{H}_I | e_+ \rangle = B'_+ \neq 0; \quad \langle f, \vec{k}', \sigma_+^{(S)} | \mathcal{H}_I | e_- \rangle = B'_- = 0$$

Il en résulte qu'en absence de radiofréquence, l'amplitude de diffusion $\vec{k} \sigma_-^{(S)} \rightarrow \vec{k}' \sigma_+^{(S)}$ est nulle.

Les diagrammes (D₃) et (D₄) montrent comment l'interaction de l'état excité avec un champ de radiofréquence peut rendre cette amplitude non nulle et lui donner un caractère résonnant pour certaines valeurs de ω_0 .



Dans (D₃), l'atome est excité dans $|e_-, n\rangle$ par absorption d'un photon optique $\vec{k} \sigma_-^{(S)}$, puis il absorbe un photon de radiofréquence et passe dans l'état $|e_+, n-1\rangle$ à partir duquel a lieu l'émission d'un photon optique $\vec{k}' \sigma_+^{(S)}$. Nous supposons le champ de radiofréquence tournant circulaire droit par rapport à $H_0(\sigma_+)$ ou linéaire et perpendiculaire à $H_0(\sigma_-)$. Dans les 2 cas, le couplage V entre les 2 états intermédiaires $|e_-, n\rangle$ et $|e_+, n-1\rangle$ est possible (cf. § I-B-3-b). L'amplitude de diffusion correspondant à D₃ sera importante, si les deux transitions intermédiaires sont réelles, c'est-à-dire si (condition de double résonance) :

$$\begin{cases} \text{a)} & \Omega_k = \Omega_0 - \frac{\omega_0}{2} & \text{(résonance optique)} \\ \text{b)} & \omega_0 = \omega & \text{(résonance magnétique)} \end{cases} \quad \text{(VI,C,17)}$$

Dans (D₄), l'atome subit une transition vers l'état $|e_-, n\rangle$ puis trois transitions successives de radiofréquence qui le conduisent à l'état $|e_+, n-3\rangle$ avant de réémettre le photon optique diffusé. Nous avons alors quatre états intermédiaires de diffusion. Si $\Omega_k = \Omega_0 - \frac{\omega_0}{2}$ (à Γ près), l'énergie est conservée pour le premier état intermédiaire. Si $\omega_0 = 3\omega$, elle l'est également pour le quatrième état intermédiaire. Les deuxième et troisième états intermédiaires ont alors une énergie nécessairement dif-

férente de l'énergie initiale : nous avons, dans l'état excité, une transition réelle à trois quanta qui s'effectue par l'intermédiaire de deux transitions virtuelles. Il est facile de voir que (D₄) n'existe pas pour la polarisation σ^+ du champ de radiofréquence. En effet, le couplage entre les deuxième et troisième états intermédiaires $|e_+, n+1\rangle$ et $|e_-, n-2\rangle$ est alors nul. Par contre (D₄) existe pour la polarisation σ .

On peut imaginer aisément des diagrammes faisant intervenir plus de 3 quanta de radiofréquence et correspondant à des processus de double résonance, c'est-à-dire impliquant :

a) une "résonance optique" qui se produit lorsque l'énergie est conservée à l'absorption du photon incident;

b) une "résonance magnétique" qui se produit lorsque l'énergie est conservée à l'issue des transitions de radiofréquence avant l'émission du photon optique diffusé. Les diagrammes de diffusion correspondants comportent deux états intermédiaires simultanément résonnants, condition qui ne peut être remplie qu'en un point de croisement de deux niveaux de \mathcal{H}_0 . D'autre part, il faut évidemment que ces deux niveaux de \mathcal{H}_0 qui se croisent soient couplés par V puisqu'ils figurent sur le même diagramme : en d'autres termes, la condition de double résonance correspond nécessairement à un anticroisement de niveaux de l'"hamiltonien perturbé" $\mathcal{H}_a = \mathcal{H}_0 + V$.

Nous venons de décrire à l'ordre le plus bas les processus de diffusion résonnants associés aux anticroisements dans le cas d'une excitation monochromatique. Il est facile de voir que ces processus conduisent à un effet résonnant important dans le cas d'une excitation en raie large : pour calculer la section efficace de diffusion, il faut en effet élever au carré la contribution de chacun des diagrammes du type (D₃) ou (D₄) et sommer les probabilités de transition obtenues conformément à (VI,C,9). Il existera toujours dans le profil de la raie excitatrice un photon satisfaisant à la condition de résonance optique (VI,C,17-a).

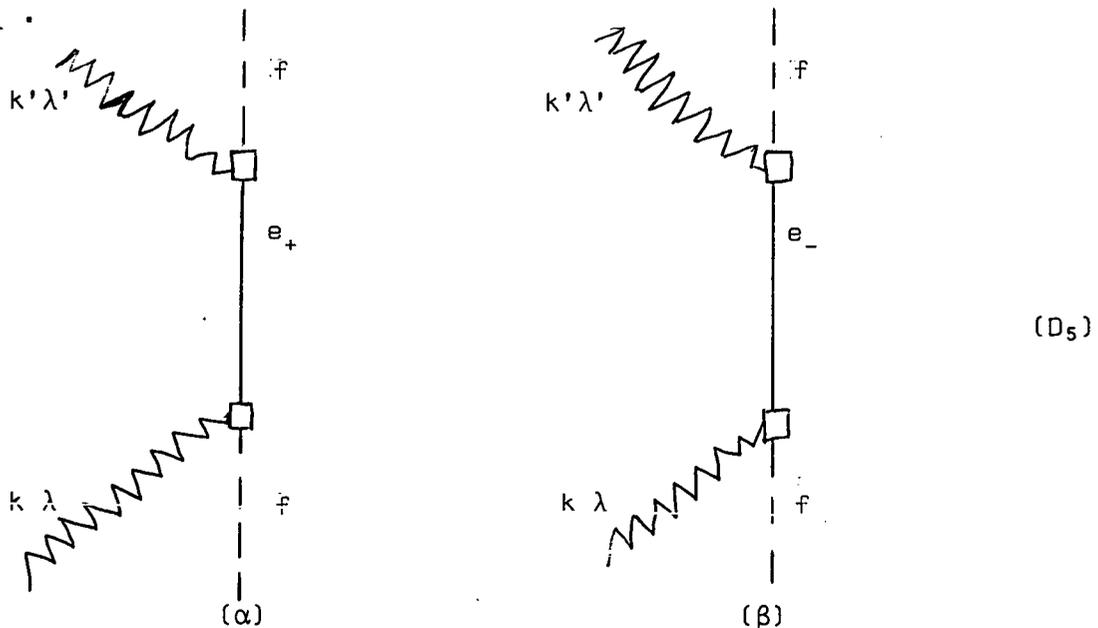
On voit cependant que la condition de résonance magnétique (équ. (VI,C,17-b) pour une transition à un quantum) ne sera réalisée qu'aux points d'anticroisements de l'hamiltonien \mathcal{H} , ce qui explique l'existence d'une variation rapide de la section efficace de la diffusion lorsqu'on balaie le champ magnétique autour de ces points.

4) Interprétation diagrammatique de l'effet Franken de l'atome habillé

Supposons maintenant que les photons optiques incidents (diffusés) ont une polarisation cohérente \vec{e}_λ ($\vec{e}_{\lambda'}$) qui permet d'exciter (de détecter) l'atome dans chacun des deux sous-niveaux Zeeman de l'état excité. Nous avons alors

$$\begin{cases} \langle f, \vec{k}, \lambda \mid \mathcal{H}_I \mid e_\pm \rangle = B_\pm \neq 0 \\ \langle f, \vec{k}', \lambda' \mid \mathcal{H}_I \mid e_\pm \rangle = B'_\pm \neq 0 \end{cases}$$

En l'absence de radiofréquence, le processus de diffusion $|\vec{k}, \lambda\rangle \rightarrow |\vec{k}', \lambda'\rangle$ peut maintenant s'effectuer par l'intermédiaire de chacun des deux états $|e_+\rangle$ et $|e_-\rangle$. Aux deux diagrammes $D_{S-\alpha}$ et $D_{S-\beta}$ qui partent du même état initial pour aboutir au même état final en passant par 2 états intermédiaires différents sont associées deux amplitudes de diffusion, A_+ et A_- qu'il faut ajouter pour obtenir l'amplitude de diffusion totale $A = A_+ + A_-$.



La probabilité de transition $W_{\vec{k}, \lambda \rightarrow \vec{k}', \lambda'}$ s'écrit alors :

$$W_{\vec{k}, \lambda \rightarrow \vec{k}', \lambda'} = |A|^2 = |A_+|^2 + |A_-|^2 + 2 \operatorname{Re} A_+ A_-^* \quad (\text{VI,C,18})$$

A_+ n'est important que si la transition intermédiaire correspondante est réelle, c'est-à-dire si :

$$|\Omega_k - (\Omega_0 + \frac{\omega_0}{2})| \lesssim \Gamma$$

De même, A_- n'est important que si :

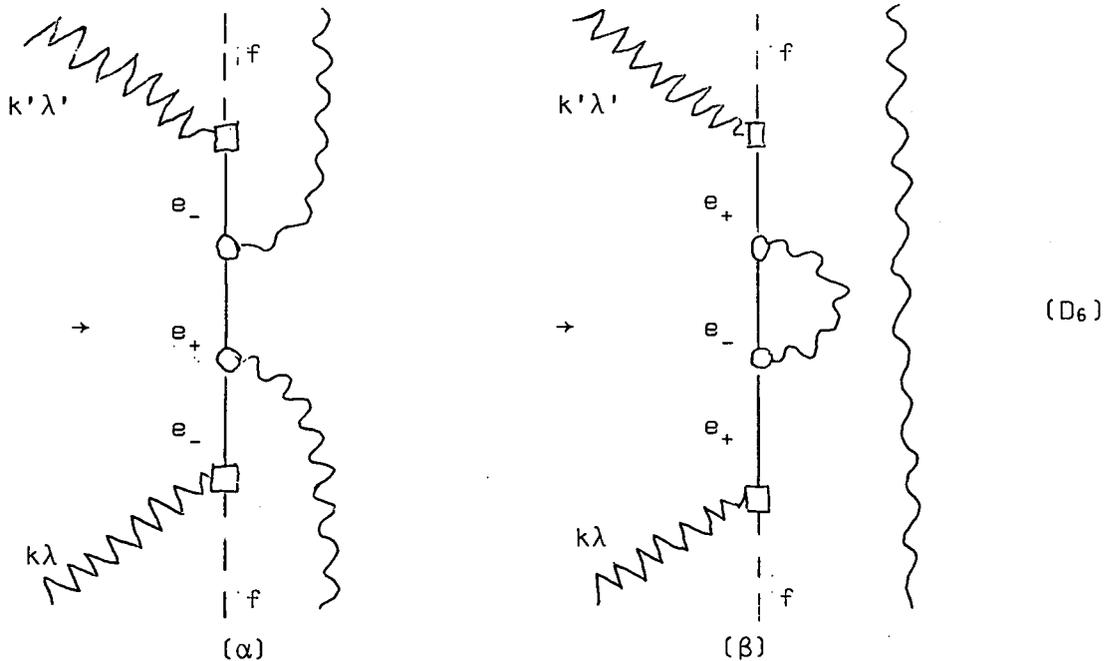
$$|\Omega_k - (\Omega_0 - \frac{\omega_0}{2})| \lesssim \Gamma$$

Le terme d'interférence de $W_{\vec{k} \lambda \rightarrow \vec{k}' \lambda'}$, est maximum lorsque A_+ et A_- sont simultanément résonnants, c'est-à-dire si :

$$\omega_0 \lesssim \Gamma$$

On se trouve alors au voisinage du croisement des deux niveaux en champ nul (effet HANLE (⁴⁴) dont nous donnons ici une interprétation diagrammatique différente de celle du § I-A-3-c).

Dès que $\omega_0 > \Gamma$, les effets d'interférence précédents disparaissent. Cependant, sous l'effet du couplage avec la radiofréquence, de nouveaux effets d'interférence peuvent apparaître. Supposons le champ de radiofréquence polarisé en σ , la diffusion $|\vec{k} \lambda \rangle \rightarrow |\vec{k}' \lambda' \rangle$ peut s'effectuer par les deux chemins $(D_{6-\alpha})$ et $(D_{6-\beta})$ qui ne sont "ouverts" tous les deux que si les deux polarisations \vec{e}_λ et $\vec{e}_{\lambda'}$ sont cohérentes.



A ces deux chemins qui correspondent au même état initial $|f, n, \vec{k} \lambda \rangle$ et au même état final $|f, n, \vec{k}' \lambda' \rangle$ correspondent deux amplitudes de diffusion A_a et A_b qui vont interférer. La transition vers l'état $|e_+, n-1 \rangle$, marqué par une flèche sur $(D_{6-\alpha})$ sera réelle si :

$$\Omega_k + \omega = \Omega_0 + \frac{\omega_0}{2} \quad (\text{à } \Gamma \text{ près}).$$

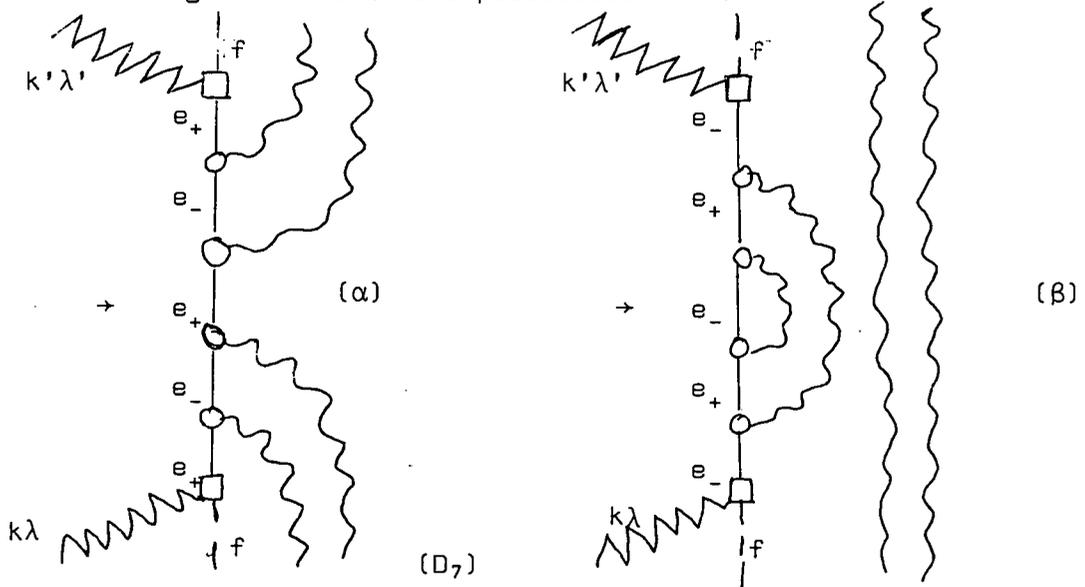
De même, la transition vers l'état $|e_-, n+1\rangle$ marqué par une flèche sur $(D_{6-\beta})$ sera réelle si :

$$\Omega_k + \omega = \Omega_0 - \frac{\omega_0}{2} + 2\omega \quad (\text{à } \Gamma \text{ près}).$$

Les deux amplitudes de diffusion A_a et A_D seront donc simultanément importantes si :

- a) $\Omega_k = \Omega_0$
- b) $\omega_0 = 2\omega$

Le terme d'interférence entre A_a et A_D est donc résonnant au point de croisement pair I_{n-1}^2 de la figure 5. On peut imaginer aisément des paires de diagrammes d'ordre plus élevé donnant naissance à des termes d'interférence résonnants pour $\omega_0 = 2p\omega$ (cf. diagrammes $(D_{7-\alpha})$ et $(D_{7-\beta})$ où $p = 2$). (On vérifiera toutefois aisément que de tels diagrammes nécessitent une polarisation linéaire σ du champ de radiofréquence alors que $(D_{6-\alpha})$ et $(D_{6-\beta})$ existent également avec une polarisation σ^+).



La condition de résonance $\omega_0 = 2p\omega$ est indépendante de la fréquence des photons optiques et montre que la variation résonnante de la section efficace de diffusion lorsqu'on balaie le champ magnétique subsiste en excitation par une raie large : nous donnons ainsi une nouvelle interprétation des résonances de cohérence associées aux croisements de niveaux $\omega_0 = 2p\omega$ de l'atome habillé dans l'état excité : ces résonances sont liées à des interférences entre deux diagrammes comportant chacun un état intermédiaire résonnant et décrivant l'absorption réelle d'un photon optique et d'un ou plusieurs photons de radiofréquence (on voit en effet sur les diagrammes (D_6) et (D_7) que l'état intermédiaire résonnant n'est pas celui qui suit immédiatement l'absorption du photon optique incident). Les deux états intermédiaires simultanément résonnants ne sont connectés à aucun

ordre par V et ne peuvent donc apparaître que sur 2 diagrammes différents. Les deux chemins qui interfèrent ne sont alors simultanément ouverts que si les polarisations des photons optiques incidents et diffusés sont cohérentes (*). Il est possible de généraliser l'interprétation précédente aux autres polarisations de la radiofréquence susceptibles de faire apparaître des résonances de cohérence dans l'état excité. Notons la différence fondamentale avec la double résonance étudiée plus haut où les deux états résonnants figuraient sur le même diagramme et où il n'était pas nécessaire de faire appel à une interférence entre deux diagrammes distincts.

Remarque :

Nous envisageons dans ce paragraphe la diffusion d'un champ optique par un atome en interaction avec un champ de radiofréquence incohérent contenant un nombre bien défini de photons dans l'état initial de la diffusion. Nous ne pouvons donc décrire diagrammatiquement que les signaux statiques associés aux diverses résonances de l'atome habillé. Il est possible de rendre compte également des signaux modulés en envisageant l'interaction de l'atome diffuseur avec un champ cohérent dans un état de GLAUBER (voir Appendice IV de la référence (37)) : les signaux modulés résultent de l'interférence entre des diagrammes de Feynman dont les états initiaux sont associés à des nombres de photons habillants différents et qui possèdent une relation de phase bien définie du fait de la cohérence de la radiofréquence. Cette cohérence se retrouve après la diffusion dans le champ optique : les deux états finaux contiennent le même nombre de photons de radiofréquence, mais correspondent à des photons optiques dont la fréquence diffère par un multiple de ω et qui ont une relation de phase entre eux. En d'autres termes, l'onde optique diffusée par le système est constituée par une superposition cohérente d'ondes monochromatiques présentant des battements qui sont responsables des modulations des signaux de détection. L'interférence entre les diagrammes permet également de rendre compte des résonances apparaissant sur ces modulations au voisinage des croisements de niveaux de l'hamiltonien \mathcal{H}_0 .

(*) Nous nous limitons ici à l'étude de croisements de niveaux de première espèce de l'atome habillé. Il est facile de voir alors que le premier (dernier) état intermédiaire de diffusion doit être différent sur les deux diagrammes (donc que les polarisations \vec{e}_λ et \vec{e}'_λ doivent être cohérentes), car il est impossible d'atteindre, à partir d'un même état, par des transitions de radiofréquence, les deux niveaux résonnants qui ne peuvent, pour un tel croisement, être reliés entre eux à aucun ordre par V .

5) Interprétation diagrammatique des différents effets radiatifs observés sur la lumière diffusée. Retour au point de vue de l'atome habillé

Dans ce qui précède, nous avons décrit les différents phénomènes observés à l'ordre le plus bas où ils apparaissent. Lorsque l'intensité du champ de radiofréquence augmente, nous devons tenir compte des processus d'interaction avec la radiofréquence à un ordre de plus en plus élevé; en d'autres termes, nous devons resommer les contributions de tous les termes du développement (VI,C,14) de la matrice de transition. Nous nous proposons à présent de montrer comment on peut, en effectuant cette resommation, rendre compte des différents effets radiatifs apparaissant sur les signaux résonnants.

De façon plus précise, nous allons montrer qu'on peut resommer à tous les ordres les effets (importants) des transitions réelles et tenir compte des effets de transitions virtuelles (qui sont beaucoup moins importants) à l'ordre le plus bas où ils se manifestent. En procédant ainsi, nous retrouverons, à partir de ce nouveau point de vue perturbatif, tous les résultats que nous avons établis dans les chapitres précédents à partir de l'étude directe des caractéristiques des croisements et anti-croisements apparaissant dans le diagramme d'énergie du système global "atome + champ de radiofréquence". Cette resommation partielle de la série infinie de diagrammes nous permettra également de justifier la dénomination "atome habillé" que nous utilisons dans ce travail en "visualisant" l'image d'un atome entouré d'un "nuage" de photons de radiofréquence avec lesquels il interagit constamment.

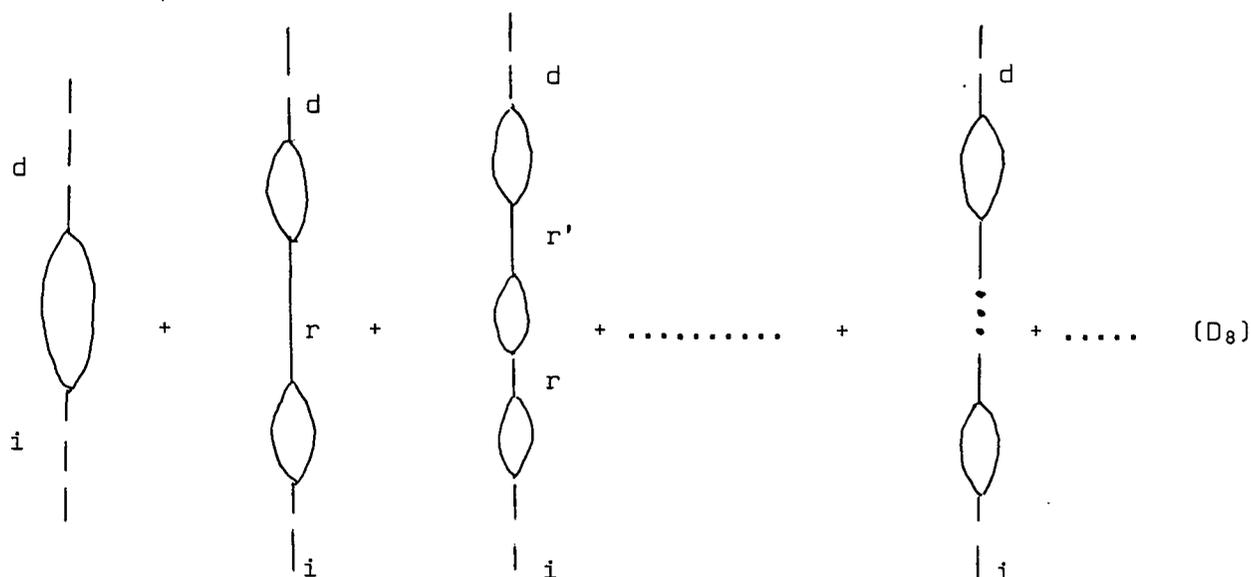
a) Resommation des diagrammes

On voit, d'après (VI,C,14), qu'entre l'absorption du photon optique incident et l'émission du photon diffusé, l'atome peut subir 0, 1, 2, ... q, .. interactions avec la radiofréquence. L'amplitude $\langle f, n', \vec{k}' \lambda' | T | f, n, \vec{k} \lambda \rangle$ s'obtient en sommant les contributions de tous ces processus.

Fixons l'énergie du photon optique incident. Nous avons remarqué que cette énergie ne peut coïncider qu'avec celle d'un petit nombre d'états intermédiaires de diffusion : par exemple, dans le cas d'un spin $J = 1/2$, nous avons au plus deux états résonnants a et b aux points de croisement de \mathcal{H}_0 (cf. figure 5). Ce sont évidemment ces états qui apportent dans chaque diagramme la contribution la plus importante à l'amplitude de transition. On a donc intérêt à distinguer ces niveaux de tous les autres dans la resommation. Dans ce but, nous introduisons les projecteurs P et Q, projetant respectivement dans et hors de la multiplicité des niveaux intermédiaires

résonnants et nous allons établir une nouvelle expression de T qui particularise ces états résonnants.

Nous représenterons la diffusion la plus générale par la série de diagrammes (D_g) dans lesquels nous avons indiqué en pointillé les niveaux initial et final i et d de la diffusion $|f, n, \vec{k}, \lambda\rangle$ et $|f, n', \vec{k}', \lambda'\rangle$, en traits pleins les propagateurs des niveaux intermédiaires résonnants r ; les figures ovales décrivent une diffusion soit directe, soit indirecte par l'intermédiaire de niveaux non résonnants, entre les états qu'elles relient.



Ainsi, le premier terme de (D_g) ne comporte aucun niveau résonnant, les termes suivants contiennent successivement 1, 2, ..., p ..., états intermédiaires où l'énergie est conservée. Nous avons donc effectué un réarrangement des termes du développement (VI,C,14) dans lequel nous avons regroupé ensemble tous les processus où le système subit un nombre donné de transitions intermédiaires réelles.

A chaque partie des diagrammes (D_g) correspond une expression algébrique bien définie : aux propagateurs des niveaux résonnants (traits pleins) correspondent les éléments de matrice de $P G_0 P$; à chacune des figures ovales (vertex généralisé) est associée une série de termes décrivant une diffusion directe ou indirecte via 0, 1, 2, ..., q , ... niveaux tous non résonnants :

$$W + WQ G_0 QW + WQ G_0 QVQ G_0 QW + \dots + WQ G_0 Q (VQ G_0 Q)^q W + \dots \quad (\text{VI,C,19})$$

W est mis pour \mathcal{H}_I ou V suivant que l'on a, à l'extrémité de la chaîne correspondante, l'état initial ou final i ou d ou un état résonnant r . La présence du projecteur Q assure que l'on ne passe jamais par un niveau résonnant.

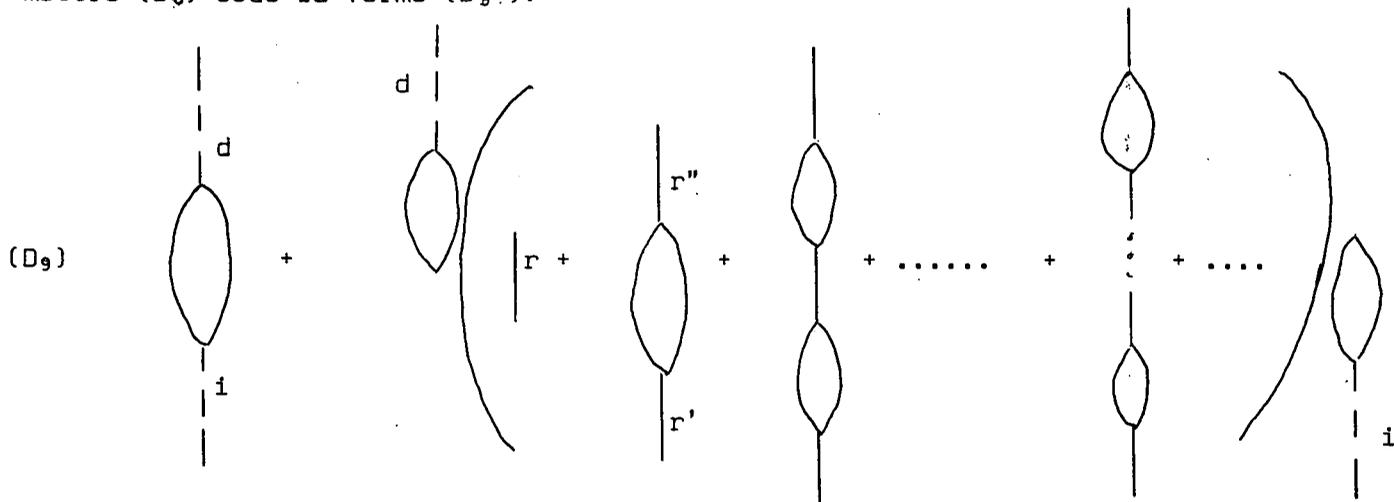
(VI,C,19) se resomme formellement pour donner :

$$W + W K W = W (1 + K W) = (1 + W K) W \quad \text{(VI,C,20)}$$

avec :

$$K = \frac{Q}{z - \mathcal{H}_0 - Q V Q} \quad \text{(VI,C,21)}$$

Le développement de K en puissance de V porté dans (VI,C,20) redonne bien en effet (VI,C,19). En factorisant la partie centrale des diagrammes comprise entre la première et la dernière apparition d'un niveau résonnant au cours de la diffusion, nous pouvons mettre (D_g) sous la forme (D_g').



Dans le premier terme de (D_g'), l'ovale relie i et d. Il faut donc, dans (VI,C,20), remplacer W par \mathcal{H}_I et l'on a :

$$\begin{array}{c} d \\ | \\ \text{O} \\ | \\ i \end{array} = \mathcal{H}_I + \mathcal{H}_I K \mathcal{H}_I = \mathcal{H}_I K \mathcal{H}_I \quad \text{(VI,C,22)}$$

(en effet, \mathcal{H}_I ne peut connecter i et d).

Les deux ovales qui figurent à l'extérieur de la parenthèse de (D_g') relient i ou d et un état résonnant. On a donc, d'après (VI,C,20) :

$$\begin{array}{c} \text{O} \\ | \\ i \end{array} = [1 + V K] \mathcal{H}_I = F \mathcal{H}_I \quad \text{(VI,C,23)}$$

en posant $F = 1 + V K$ (VI,C,24)

De même, toujours d'après (VI,C,20) :

$$\begin{array}{c} | \\ \text{d} \\ \text{O} \end{array} = \mathcal{H}_I [1+K V] = \mathcal{H}_I F' \quad (\text{VI,C,25})$$

en posant $F' = 1 + K V$ (VI,C,26)

Enfin, tous les ovals figurant à l'intérieur de la parenthèse de (D_g) relient 2 états résonnants de sorte que l'expression algébrique correspondante est (VI,C,20) où l'on remplace tous les W par V, c'est-à-dire encore :

$$R = V + V K V \quad (\text{VI,C,27})$$

Il s'ensuit que l'expression algébrique correspondant à la parenthèse de (D_g) s'écrit :

$$P G_0 P + (P G_0 P) R (P G_0 P) + (P G_0 P) R (P G_0 P) R (P G_0 P) + \dots$$

expression qui se resomme pour donner

$$\frac{P}{z - \mathcal{H}_0 - P R P} \quad (\text{VI,C,28})$$

ce qui, d'ailleurs, n'est autre que la projection P G P du propagateur "perturbé"

$G(z) = \frac{1}{z - \mathcal{H}_0 - V}$ dans la multiplicité des états résonnants. En effet, on peut manifestement développer P G(z) P en puissance de V comme dans (VI,C,12) et regrouper les termes en particulierisant les états résonnants comme cela est fait dans la parenthèse de (D_g) (on remarque que l'on retrouve ainsi diagrammatiquement l'expression de P G(z) P donnée en Appendice II).

Finalement, l'expression algébrique de T associée à (D_g) et obtenue en particulierisant les états résonnants s'écrit, à partir de (VI,C,22), (VI,C,23), (VI,C,25) et (VI,C,28) :

$$T = \mathcal{H}_I K \mathcal{H}_I + \mathcal{H}_I F' \frac{P}{z - \mathcal{H}_0 - P R P} F \mathcal{H}_I \quad (\text{VI,C,29})$$

où K, F, F', R sont donnés par (VI,C,21), (VI,C,24), (VI,C,26) et (VI,C,27).

Nous avons donné de (VI,C,29) une démonstration diagrammatique. On peut en donner une démonstration purement algébrique, qui a l'avantage d'être plus rapide, mais l'inconvénient d'être moins physique (cf. Appendice II de la référence (37)).

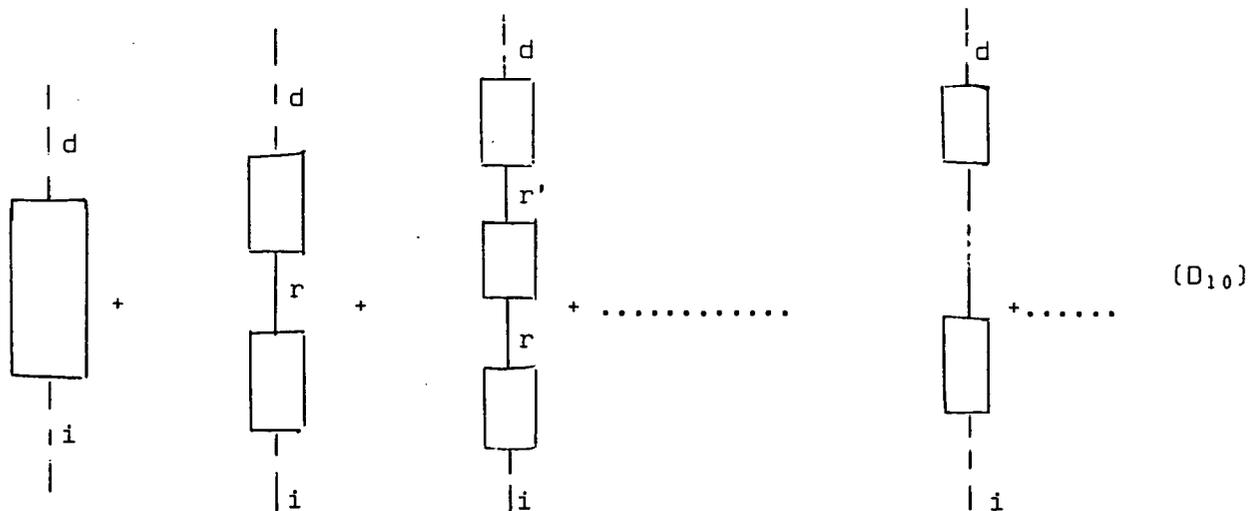
b) Approximations sur la formule resommée

Le développement en série de l'opérateur K et celui des opérateurs F, F' et R qui s'expriment à l'aide de K sont très rapidement convergents tant que les éléments de matrice de V sont très petits devant ω , car aucun de leurs dénominateurs d'énergie n'est résonnant. Il en résulte que l'on peut remplacer, dans l'expression (VI,C,29) de T, les éléments de matrice de ces opérateurs par leur expression à l'ordre le plus bas où ils sont non nuls.

D'autre part, ces opérateurs sont en toute rigueur des fonctions de la variable $z = E_i + i \frac{\Gamma}{2}$, mais ce sont en fait des fonctions très lentement variables au voisinage d'un croisement de niveaux de \mathcal{H}_0 , car aucun des dénominateurs d'énergie ne peut diverger; on peut donc négliger cette variation ainsi que le terme $i \frac{\Gamma}{2}$ et remplacer z par la valeur fixe \bar{E} de l'énergie au point de croisement des niveaux. On appellera donc \bar{K} , \bar{F} , \bar{F}' et \bar{R} l'expression à l'ordre le plus bas, pour la valeur $z = \bar{E}$, des opérateurs K, F, F' et R et on remplacera l'expression rigoureuse par l'expression approchée :

$$\bar{T} = \mathcal{H}_I \bar{K} \mathcal{H}_I + \mathcal{H}_I \bar{F}' \frac{P}{z - \mathcal{H}_0 - P \bar{R} P} \bar{F} \mathcal{H}_I \quad (VI,C,30)$$

Remarquons bien qu'une telle approximation est nettement meilleure que celle que l'on fait en calculant T à un certain ordre de perturbation en V selon (VI,C,14). On obtient en effet \bar{T} en remplaçant dans (D₉) chacune des figures ovales par son expression à l'ordre le plus bas (avec $z = \bar{E}$) représentée dans (D₁₀) par un rectangle. Ce faisant,



on resomme cependant une série infinie de diagrammes qui font intervenir à tous les ordres les niveaux résonnants. On conçoit aisément qu'en traitant ainsi de façon complète l'effet prépondérant de toutes les transitions réelles et à l'ordre le plus bas les effets très faibles des transitions virtuelles, on fait une approximation très raisonnable.

c) Règle de calcul de l'amplitude de transition resommée

L'amplitude de transition $\langle f, n', \vec{k}' \lambda' | \bar{T} | f, n, \vec{k} \lambda \rangle$ calculée à

partir de (VI,C,30) est une somme d'un certain nombre d'amplitudes partielles qui correspondent aux différents éléments de matrice de $P \bar{G} P = \frac{P}{z - \mathcal{H}_0 - P \bar{R} P}$ à l'intérieur de la multiplicité des niveaux résonnants ($r, r' \dots$).

(VI,C,30) s'écrit en effet :

$$\bar{T} = \mathcal{H}_I \bar{K} \mathcal{H}_I + \sum_{r, r'} \mathcal{H}_I \bar{F} |r\rangle \langle r| G |r'\rangle \langle r'| \bar{F} \mathcal{H}_I \quad (\text{VI,C,31})$$

La règle suivante permet de calculer les différents termes de (VI,C,31) à partir de diagrammes à l'ordre le plus bas.

- α.) On commence par déterminer tous les diagrammes à l'ordre le plus bas reliant $|f, n, \vec{k} \lambda\rangle$ à $|f, n', \vec{k}' \lambda'\rangle$ et contenant soit aucun, soit un, soit deux états intermédiaires résonnants différents.
- β.) On conserve tel quel le diagramme non résonnant, ce qui donne le 1er terme de (VI,C,31).
- γ.) Dans chacun des autres diagrammes, on garde les propagateurs des chaînes extrêmes non résonnantes; pour le diagramme contenant 1 seul état intermédiaire résonnant r , on remplace la partie centrale (propagateur $\langle r | G_0 | r \rangle$ de l'état r) par l'élément diagonal de G , $\langle r | \bar{G} | r \rangle$ (on obtient ainsi tous les éléments du 2e membre de (VI,C,31) correspondant à $r = r'$); pour le diagramme contenant 2 états intermédiaires résonnants différents r, r' , on remplace la partie centrale ou "chaîne" $\langle r | G_0 P \bar{R} P G_0 | r' \rangle$ reliant r et r' par $\langle r | \bar{G} | r' \rangle$ (ce qui donne tous les autres termes de (VI,C,31) : en d'autres termes, nous effectuons sur les diagrammes à l'ordre le plus bas une renormalisation du propagateur de la partie résonnante à l'aide des éléments de matrice de $P \bar{G} P$.

d) Resommation des diagrammes et retour au point de vue de l'atome habillé

Nous allons illustrer les règles de renormalisation que nous venons d'établir par deux exemples relatifs à un spin $J = 1/2$ et correspondant au cas où les deux niveaux résonnants $|a\rangle$ et $|b\rangle$ sont associés soit à un croisement, soit à un anticroisement de niveaux de l'hamiltonien \mathcal{H}_0 .

Dans le premier cas, les deux états $|a\rangle$ et $|b\rangle$ ne sont couplés à aucun ordre par V . L'opérateur $P \bar{G} P$ est diagonal et un diagramme ne peut passer que par l'un des deux niveaux résonnants à la fois. Celui qui passe par le niveau $|a\rangle$, à l'ordre le plus bas, correspond à l'amplitude :

$$A_a = \langle f, n', \vec{k}', \lambda' | \mathcal{H}_I \bar{F}' | a \rangle \frac{1}{E_i - E_a + i \frac{\Gamma}{2}} \langle a | \bar{F} \mathcal{H}_I | f, n, \vec{k}, \lambda \rangle \quad (\text{VI,C,32})$$

La règle de resommation du § VI-C-5-c revient à remplacer $\frac{1}{E_i - E_a + i \frac{\Gamma}{2}}$ par l'élément de matrice diagonal $\bar{G}_{aa} = \frac{1}{E_i - E_a - \bar{R}_{aa} + i \frac{\Gamma}{2}}$. L'amplitude devient :

$$A'_a = \langle f, n', \vec{k}', \lambda' | \mathcal{H}_I F' | a \rangle \frac{1}{E_i - E_a - \bar{R}_{aa} + i \frac{\Gamma}{2}} \langle a | \bar{F} \mathcal{H}_I | f, n, \vec{k}, \lambda \rangle \quad (\text{VI,C,33})$$

L'examen de cette expression nous montre que A'_a représente simplement l'amplitude de diffusion de l'onde optique correspondant à un passage intermédiaire du système dans le niveau $|\bar{a}\rangle$ de l'atome habillé, état propre de l'hamiltonien perturbé $\mathcal{H} = \mathcal{H}_0 + V$ se déduisant continûment de l'état $|a\rangle$ par branchement du couplage V . En effet, l'énergie $E_a + \bar{R}_{aa}$ apparaissant au dénominateur de (VI,C,33) n'est autre que celle de l'état $|\bar{a}\rangle$ au voisinage du croisement de niveaux et les vecteurs ket et bra $\bar{F}' | a \rangle$ et $\langle a | \bar{F}$ représentent simplement les développements classiques de la théorie des perturbations du ket $|\bar{a}\rangle$ et du bra $\langle \bar{a}|$ (ces développements sont arrêtés à l'ordre le plus bas permettant à \mathcal{H}_I de coupler $|\bar{a}\rangle$ aux états initial et final de la diffusion). En d'autres termes, on obtiendrait la même amplitude de diffusion en exprimant la matrice $T = \mathcal{H}_I \frac{1}{z - \mathcal{H}} \mathcal{H}_I$ directement sur la base des états propres de \mathcal{H} . Ainsi la resommation des diagrammes à tous les ordres revient à effectuer une description de la diffusion à l'aide des états propres de l'atome habillé au lieu de la décrire dans la base découplée des états propres de \mathcal{H}_0 .

Montrons que l'on obtient le même résultat aux points d'anticroisement du diagramme d'énergie : les niveaux $|a\rangle$ et $|b\rangle$ qui se croisent sont alors couplés par V . L'opérateur $P \bar{G} P$ a des éléments de matrice non diagonaux : en inversant $z - \mathcal{H}_0 - P R P$ (qui est, dans ce cas simple, une matrice 2×2), on obtient sans difficulté :

$$\overline{G}_{ab}(z) = \frac{\overline{R}_{ab}}{(z - E_a - \overline{R}_{aa})(z - E_b - \overline{R}_{bb}) - |\overline{R}_{ab}|^2} \quad (\text{VI,C,34})$$

Il existe dans ce cas des diagrammes passant successivement par les deux niveaux résonnants b et a, le diagramme à l'ordre le plus bas correspondant à l'amplitude de transition :

$$A_{ab} = \langle f, n', \vec{k}', \lambda' | \mathcal{H}_I \overline{F}' | a \rangle \left[\frac{1}{E_i - E_a + i \frac{\Gamma}{2}} \overline{R}_{ab} \frac{1}{E_i - E_b + i \frac{\Gamma}{2}} \right] \langle b | \overline{F} \mathcal{H}_I | f, n, \vec{k}, \lambda \rangle \quad (\text{VI,C,35})$$

La règle de resommation du § VI-C-5-c conduit à remplacer la partie résonnante entre crochets de (VI,C,35) par $\overline{G}_{ab}(z)$. On obtient alors :

$$A'_{ab} = \langle f, n', \vec{k}', \lambda' | \mathcal{H}_I \overline{F}' | a \rangle \frac{\overline{R}_{ab}}{(E_i - E_a - \overline{R}_{aa} + i \frac{\Gamma}{2})(E_i - E_b - \overline{R}_{bb} + i \frac{\Gamma}{2}) - |\overline{R}_{ab}|^2} \langle b | \overline{F} \mathcal{H}_I | f, n, \vec{k}, \lambda \rangle \quad (\text{VI,C,36})$$

Dans cette amplitude de transition, le dénominateur d'énergie résonnant possède deux zéros :

$$E_{\pm} = i \frac{\Gamma}{2} + \left(\frac{E_a + E_b + \overline{R}_{aa} + \overline{R}_{bb}}{2} \right) \pm \frac{1}{2} \sqrt{(E_a - E_b + \overline{R}_{aa} - \overline{R}_{bb})^2 + 4 |\overline{R}_{ab}|^2}$$

qui ne sont autres (au terme d'amortissement $i \frac{\Gamma}{2}$ près) que les deux valeurs propres de \mathcal{H} correspondant à l'anticroisement des deux niveaux non perturbés $|a\rangle$ et $|b\rangle$ (cf. équation (I,A,16)). On voit donc apparaître ici encore dans l'amplitude de transition des résonances correspondant aux énergies propres de l'atome habillé.

La resommation à tous les ordres des processus de diffusion revient donc, dans tous les cas, à considérer que la diffusion des photons optiques est effectuée non par l'atome nu, mais par l'atome habillé. Tous les signaux détectés, calculés à partir des expressions resommées (VI,C,33) et (VI,C,36) présenteront donc les caractéristiques (déplacement, élargissements, saturations) établies aux chapitres I, II et III dans le formalisme de l'atome habillé.

On notera, pour finir, la grande analogie existant entre le problème traité ici et les phénomènes de diffusion en électrodynamique quantique ou en physique des solides (problèmes à N corps) pour lesquels la resommation des processus élémentaires aux différents ordres du couplage conduit à introduire la notion de quasi-

particules ou de particules habillées. Les quasi-particules sont considérées physiquement comme des particules nues environnées par un nuage de photons ou de phonons virtuels qui modifient leurs propriétés physiques. Dans le cas présent, c'est le système atomique environné du nuage de photons de radiofréquence avec lesquels il interagit qui joue le rôle de quasi particule . C'est la raison pour laquelle nous avons choisi d'appeler "atome habillé" un tel système.

C H A P I T R E VII

LA RELAXATION DE L'ATOME HABILÉ PAR DES CHAMPS DE RADIOFREQUENCE INTENSES

INTRODUCTION

Tout au long des chapitres précédents, nous avons envisagé la relaxation de l'atome habillé dans le cas où l'inégalité $\omega_1 \tau_c \ll 1$ se trouve réalisée : l'interaction avec la radiofréquence ne peut alors se manifester pendant le temps de corrélation de la perturbation responsable de la relaxation et le couplage entre l'atome et le réseau n'est pas modifié par la présence du champ habillant. Cependant, l'interaction entre les atomes et la radiofréquence, en changeant les fréquences d'évolution propres du système peut modifier l'efficacité du couplage induit par la relaxation entre les différentes populations et cohérences Zeeman du système de spins et affecter profondément l'évolution des observables soumises au processus de relaxation. Nous avons décrit en détail ces effets dans le cas des collisions d'échange de spin et insisté sur le fait que les modifications apportées à l'évolution du système étaient dues au recouplage de l'atome avec la radiofréquence entre deux collisions d'échange successives et non pas à une altération du processus d'échange lui-même sous l'effet de l'interaction avec le champ de radiofréquence.

Nous nous proposons, dans ce chapitre, de nous affranchir de la condition $\omega_1 \tau_c \ll 1$ et d'étudier dans le formalisme de l'atome habillé les modifications apportées au processus de relaxation atomique par la présence d'un champ de radiofréquence qui peut être très intense. En d'autres termes, nous allons étudier les effets liés au couplage de l'atome avec le champ habillant pendant le temps de collision lui-même.

Le problème de la relaxation de spins en présence d'un champ de radiofréquence intense a déjà été étudié en détail dans un formalisme traitant classiquement ce champ ⁽²³⁾⁽⁶⁴⁾. L'énergie du système atomique dépend alors explicitement du temps. Pour étudier la relaxation, il faut déterminer la transformation canonique qui permet d'éliminer la variation "rapide" de la matrice densité atomique sous l'effet du couplage avec le champ de radiofréquence de façon à isoler l'évolution "lente" liée aux processus de relaxation eux-mêmes. Toute la difficulté du calcul de la relaxation réside dans la détermination explicite de cette transformation canonique qui décrit en quelque

sorte le passage dans un référentiel tournant généralisé. Dans le formalisme quantique adopté ici, l'hamiltonien du système est d'emblée indépendant du temps et la relaxation se calcule exactement comme celle d'un atome libre dont les niveaux d'énergie seraient ceux de l'atome habillé. Les deux points de vue classique et quantique sont naturellement équivalents dans la mesure où, comme nous l'avons montré au chapitre III, la connaissance du diagramme d'énergie de l'atome habillé équivaut précisément à déterminer la transformation qui décrit le passage au référentiel tournant généralisé de la théorie classique. Cependant, le point de vue quantique présente des avantages conceptuels certains sur la description classique : il permet d'une part d'analyser simplement le mécanisme de la relaxation en terme de transitions entre les niveaux d'énergie de l'atome habillé ce qui donne, sans effectuer aucun calcul, une idée qualitative très précise sur les principales caractéristiques des effets observés en présence du champ de radiofréquence; d'autre part, le point de vue de l'atome habillé permet de décrire la relaxation en terme de processus élémentaires impliquant l'interaction simultanée de l'atome avec le réseau et avec des photons de radiofréquence absorbés ou réémis réellement ou virtuellement ... Ces images donnent aux différents phénomènes observés une signification physique plus claire que celle qui résulte simplement du calcul algébrique de la théorie classique.

En pratique, pour réaliser facilement la condition $\omega_1 \tau_c > 1$, il est commode d'étudier des processus de relaxation dont le temps de corrélation est très long. C'est le cas par exemple de la relaxation produite par des inhomogénéités magnétiques dans une cellule contenant une vapeur atomique sous faible pression ($\tau_c \sim 10^{-3}$ à 10^{-4} sec., comme nous le montrerons plus loin). Nous étudierons dans ce chapitre ce type de relaxation qui présente le double avantage de se prêter aisément à un traitement théorique et à des vérifications expérimentales. Nous remarquerons cependant qu'en décrivant classiquement la perturbation agissant sur les spins, nous obtiendrons toujours une température infinie pour le système atomique à l'état de régime permanent : un tel modèle ne nous permet donc pas de décrire les équations de Boltzmann de l'atome habillé pour une température finie quelconque. Pour établir ces équations, il faudrait, comme nous l'avons indiqué au chapitre II, traiter quantiquement les degrés de liberté du réseau responsable de la relaxation. Ce traitement ne présente aucune difficulté conceptuelle nouvelle, mais alourdirait considérablement notre étude. Nous nous contenterons donc ici d'une description classique de la perturbation "relaxante", correspondant à une température infinie du système (ce qui est d'ailleurs une très bonne approximation pour les systèmes physiques étudiés dans ce travail : kT_R est en effet toujours très grand devant toutes les énergies impliquées).

Enfin, au lieu de traiter formellement la relaxation de l'atome habillé dans le cas général d'une polarisation quelconque de la radiofréquence, nous choisirons une polarisation particulière conduisant à des calculs entièrement solubles, ce qui nous permettra de mettre clairement en évidence des processus de relaxation qui se généralisent ensuite aisément à un champ de radiofréquence quelconque. Nous savons que seuls les deux types de polarisations σ_+ et π se prêtent à des calculs simples. Le cas de la relaxation en présence d'un champ tournant intense a déjà fait l'objet d'études détaillées tant théoriques (⁶⁴) qu'expérimentales (⁸⁵). Rappelons simplement que les temps de relaxation des diverses composantes de l'orientation définies dans le référentiel tournant peuvent être fortement modifiées par rapport à ceux que l'on observe sur l'atome libre. On constate en particulier, si le champ de radiofréquence est intense et résonnant, un net allongement du temps de relaxation de l'orientation transversale dans le référentiel tournant. Tous ces effets se calculent aisément dans notre formalisme quantique. Nous n'en reprendrons cependant pas l'étude ici et nous décrirons plutôt la relaxation en présence d'un champ de radiofréquence linéaire en polarisation π qui possède également des caractéristiques intéressantes : en particulier, on s'attend à ce que le couplage avec un tel champ habillant entraîne une réduction du moment magnétique du système de spins (cf. § V-A) dont la sensibilité aux perturbations magnétiques doit subir une atténuation produisant un allongement des temps de relaxation de diverses grandeurs atomiques. De façon plus précise, ces temps de relaxation qui dépendent du facteur de Landé de l'atome habillé proportionnel à $J_0(\frac{\omega_1}{\omega})$ doivent présenter des variations oscillantes en fonction de l'amplitude ω_1 de la radiofréquence, la relaxation magnétique devant notamment s'annuler pour toutes les valeurs de ω_1/ω correspondant à des zéros de la fonction de Bessel $J_0(\frac{\omega_1}{\omega})$. Nous verrons qu'un tel phénomène peut effectivement être observé en champ statique faible si la fréquence ω du champ habillant est suffisamment élevée. Nous mettrons également en évidence d'autres propriétés intéressantes de la relaxation en présence du champ habillant.

Le plan du chapitre sera le suivant : nous commencerons par rappeler brièvement (§ VII-A) les principales caractéristiques de la relaxation d'un atome libre sous l'effet d'inhomogénéités magnétiques. Nous montrerons ensuite (§ VII-B) comment on peut simplement généraliser les résultats relatifs à l'atome libre pour décrire les différents processus de relaxation observables sur l'atome habillé. Nous étudierons enfin (§ VII-C) les différentes modifications apportées à la relaxation atomique par la présence du champ habillant en fonction de l'amplitude et de la fréquence de ce champ.

VII-A. RAPPELS SUR LA RELAXATION MAGNETIQUE D'UN ATOME LIBRE (*)

1) Les deux mécanismes de relaxation possibles

Considérons des atomes enfermés dans une cellule et plongés dans un champ statique \vec{H}_0 aligné le long de Oz auquel s'ajoute un champ magnétique inhomogène; du fait de leur mouvement d'agitation thermique, ces atomes voient un champ $\vec{h}(t)$ fonction aléatoire du temps et sont donc soumis à une perturbation magnétique qui est à l'origine de deux phénomènes de relaxation bien distincts : d'une part, les composantes du champ inhomogène transversales par rapport au champ statique induisent des transitions entre les sous-niveaux Zeeman du système de spins; d'autre part, si les fréquences de Bohr atomiques dépendent du champ magnétique, elles ne sont plus identiques pour tous les spins mais présentent un étalement dû à la variation de la composante longitudinale du champ inhomogène dans la cellule. Cette dispersion de fréquences propres se trouvera en général considérablement atténuée du fait du mouvement des atomes (rétrécissement par le mouvement). Un étalement résiduel de fréquences peut cependant subsister et entraîner, même pour les spins qui n'ont pas effectué de transition, une disparition de la cohérence Zeeman. Le terme de relaxation correspondant est qualifié d'adiabatique. Nous le négligerons dans la suite de cette étude : nous nous intéresserons en effet en général à des cohérences atomiques entre niveaux indépendants du champ (transitions 0 - 0); d'autre part, dans la situation expérimentale où nous nous placerons pour vérifier les effets théoriques prévus dans ce chapitre (cf. chapitre XI), les inhomogénéités de champ seront produites perpendiculairement au champ statique de façon à annuler le terme adiabatique et à favoriser dans la relaxation les processus destransitions réelles dont nous allons préciser maintenant les principales caractéristiques.

2) Probabilités de transitions induites par la relaxation entre les niveaux atomiques

A l'intérieur d'un niveau atomique (αJ) de rapport gyromagnétique γ_α , la partie transversale de la perturbation magnétique est égale à

(*) On trouvera une étude détaillée de la relaxation due à des inhomogénéités magnétiques dans la référence (86).

$-\frac{\gamma_\alpha}{2} [J_+ h_-(t) + J_- h_+(t)]$; la probabilité de transition induite par unité de temps entre deux niveaux tels que $\Delta m = \pm 1$, séparés par l'énergie ω_0 , est proportionnelle au carré de l'élément de matrice de $\gamma_\alpha J_\pm$ entre ces niveaux et à la densité spectrale $f(\omega_0)$ de la perturbation magnétique, transformée de Fourier de la fonction de corrélation $g(\tau)$ associée aux composantes transversales du champ aléatoire $\vec{h}(t)$. De façon plus précise, en appelant $W_{m\pm 1, m}$ cette probabilité, nous aurons (*) :

$$W_{m\pm 1, m} = \frac{\gamma_\alpha^2}{4} |\langle \alpha J_{m\pm 1} | J_\pm | \alpha J_m \rangle|^2 f(\omega_0) \quad (\text{VII,A,1})$$

en définissant la densité spectrale par la relation :

$$f(\omega_0) = \int_{-\infty}^{+\infty} g(\tau) e^{-i\omega_0 \tau} d\tau \quad (\text{VII,A,2})$$

et la fonction de corrélation $g(\tau)$ par la formule :

$$g(\tau) = \overline{h_-(t) h_+(t - \tau)} \quad (\text{VII,A,3})$$

La barre de l'expression précédente indique qu'il s'agit d'une valeur moyenne de fonction aléatoire du temps t ; cette valeur moyenne ne dépend donc bien que de τ (fonction aléatoire stationnaire).

La probabilité totale $\Gamma_{\alpha J_m}$ par unité de temps pour qu'un atome situé dans le niveau $|\alpha J_m \rangle$ quitte ce niveau sous l'influence de la relaxation (quantité que nous appellerons, pour simplifier, la "largeur" du niveau) s'écrit évidemment :

$$\Gamma_{\alpha J_m} = W_{m+1, m} + W_{m-1, m} \quad (\text{VII,A,4})$$

c'est-à-dire encore, compte tenu de (VII,A,1) :

$$\Gamma_{\alpha J_m} = \gamma_\alpha^2 A_{J_m} f(\omega_0) \quad (\text{VII,A,5})$$

en définissant la constante A_{J_m} par la relation :

(*) Tous les résultats énoncés dans ce paragraphe ne sont valables que si la condition de "collision faible" $\gamma_\alpha |h(t)| \tau_c \ll 1$ est satisfaite pour la perturbation magnétique. Nous le supposerons dans toute la suite de cette étude.

$$\begin{aligned} \Delta A_{Jm} &= \frac{1}{4} [J(J+1) - m(m+1)] + \frac{1}{4} [J(J+1) - m(m-1)] \\ &= \frac{J(J+1) - m^2}{2} \end{aligned}$$

(VII, A, 6)

Ainsi, la description de la relaxation repose entièrement sur la connaissance des quantités $f(\omega_0)$ et $g(\tau)$. Elles dépendent de façon compliquée de la géométrie de la cellule, de la distribution des vitesses atomiques et de la carte du champ inhomogène. Nous admettrons que ce sont des fonctions monotones décroissantes de ω_0 et de τ . Nous remarquerons également que le temps moyen séparant deux collisions sur les parois de la cellule se présente comme un temps de corrélation pour la perturbation magnétique puisque le mouvement des atomes est modifié de façon brusque et aléatoire à chaque choc sur les parois. τ_c , qui représente la largeur de $g(\tau)$ est donc de l'ordre du temps moyen de vol libre dans la cellule (10^{-3} à 10^{-4} sec. pour les vitesses thermiques des atomes étudiés et les dimensions de quelques cms des cellules utilisées dans les expériences). Il s'agit d'un temps de corrélation particulièrement long pour un processus de relaxation. La densité spectrale $f(\omega_0)$ décroît donc très vite avec ω_0 au-delà d'une fréquence de l'ordre de $1/\tau_c$ relativement faible (10^3 à 10^4 Hz). Ainsi, le système n'est sensible aux transitions réelles induites par les inhomogénéités magnétiques que si le champ statique est très petit; en champ "fort" tel que $\omega_0 \tau_c \gg 1$, la fréquence Zeeman atomique se situe en effet en dehors du spectre de la perturbation magnétique et la relaxation devient négligeable.

3) Largeur des raies atomiques

Envisageons une transition atomique induite par un champ "sonde" entre deux niveaux $|\alpha J m\rangle$ et $|\alpha' J' m'\rangle$. Supposons qu'il s'agisse d'une transition simple (dont la fréquence ne coïncide avec celle d'aucune autre transition dans le système atomique) et que l'on puisse négliger le terme de relaxation adiabatique de la cohérence atomique entre les deux niveaux impliqués dans la transition. On peut alors montrer que la largeur de la raie de résonance correspondante est égale à la somme des "largeurs" de ces deux niveaux. C'est le cas par exemple de la transition hyperfine indépendante du champ d'un atome alcalin $F, m_F = 0 \leftrightarrow F', m_{F'} = 0$. La perturbation magnétique induit alors des transitions Zeeman à l'intérieur de chacun des niveaux hyperfins F et F' qui subissent la relaxation indépendamment l'un de l'autre (on peut en effet négliger les transitions induites entre les deux niveaux hyperfins par le champ inhomogène, car $\Omega_0 \tau_c \gg 1$).

Sommant les largeurs des deux niveaux qui bordent la transition, on obtient, compte tenu de (VII,A,5), l'expression suivante pour la largeur L de la résonance correspondante :

$$L = \gamma_F^2 (A_{F_0} + A_{F,0}) f(\omega_0) \quad (\text{VII,A,7})$$

(on a en effet $\gamma_F^2 = \gamma_{F'}^2$, car γ_F et $\gamma_{F'}$ sont opposés; d'autre part, la densité spectrale prend la même valeur dans les deux niveaux car c'est une fonction paire de ω_0). L'étude de la largeur de raie nous fournit ainsi un moyen expérimental commode pour mesurer la somme des largeurs des niveaux $m_F = 0$

VII-B. DESCRIPTION GENERALE DE LA RELAXATION MAGNETIQUE D'UN ATOME HABILLE PAR UN CHAMP DE RADIOFREQUENCE EN POLARISATION π

1) Les différents processus de relaxation en présence du champ de radiofréquence

Supposons à présent que les atomes interagissent avec un champ de radiofréquence linéaire parallèle à \vec{H}_0 (figure 37-a). Les niveaux d'énergie $|\overline{\alpha J, m, n}\rangle$ de l'atome habillé sont alors donnés par la relation (III,A,6). Les éléments de matrice des composantes $\gamma_{\alpha} J_{\pm}$ et $\gamma_{\alpha} J_z$ de la perturbation magnétique entre deux états $|\overline{\alpha J, m, n}\rangle$ et $|\overline{\alpha J, m', n'}\rangle$ s'obtiennent immédiatement à partir des expressions (III,B,32) :

$$\langle \overline{\alpha J, m', n'} | \gamma_{\alpha} J_{\pm} | \overline{\alpha J, m, n} \rangle = \gamma_{\alpha} \delta_{m', m \pm 1} \langle \alpha J, m' | J_{\pm} | \alpha J, m \rangle J_{n'-n} \left(\pm \frac{\omega_1}{\omega} \right) \quad (\text{VII,B,1-a})$$

$$\langle \overline{\alpha J, m', n'} | \gamma_{\alpha} J_z | \overline{\alpha J, m, n} \rangle = \gamma_{\alpha} \delta_{mm'} \delta_{nn'} \langle \alpha J, m' | J_z | \alpha J, m \rangle \quad (\text{VII,B,1-b})$$

L'équation (VII,B,1-b) montre que, comme pour l'atome libre, seule la partie transversale du champ inhomogène peut induire des transitions entre niveaux différents. L'équation (VII,B,1-a) exprime que la relaxation de l'atome habillé peut s'effectuer suivant plusieurs processus distincts suivant que la perturbation magnétique induit des transitions $\Delta m = \pm 1$ à l'intérieur d'une seule multiplicité ($n = n'$) ou entre deux multiplicités différentes ($n' \neq n$).

Nous avons, sur la figure 37-b, représenté par des flèches les divers processus responsables de la relaxation du niveau $m = 0$. Les transitions représentées par les flèches n° 1 ne changent pas la valeur de n ; en d'autres termes, à la limite où l'intensité de la radiofréquence est très faible, le nombre de photons du champ habillant n'est pas modifié au cours du processus que nous qualifierons de "processus de relaxation simple" de l'atome habillé. L'intensité de la transition correspondante dépend cependant de la renormalisation des niveaux d'énergie sous l'effet du couplage avec la radiofréquence. En ce sens, on peut dire que le processus de relaxation simple est affecté par des émissions et absorptions virtuelles de photons de radiofréquence par le système atomique. Nous décrirons cet effet en détail plus loin (cf. § VII-C-2-a-α).

Dans le cas où la relaxation induit des transitions entre multiplicités différentes (flèches n° 2 et 3 sur la figure 37-b), le nombre de photons de radiofréquence est modifié à l'issue du processus; il s'agit donc de mécanismes de relaxation dans lesquels l'interaction avec le réseau s'accompagne de l'absorption ou de l'émission induite réelles simultanées d'un ou plusieurs photons du champ habillant (un photon seulement dans le cas des transitions indiquées sur la figure). Afin de bien comprendre ces processus d'absorption ou d'émission de radiofréquence, nous avons, sur la figure 37-c, représenté les mêmes transitions dans le diagramme d'énergie de l'atome libre : les flèches 1' décrivent simplement les transitions directes induites par la relaxation entre les niveaux atomiques. Les flèches 2' indiquent les processus de relaxation qui s'accompagnent de l'émission stimulée d'un photon de radiofréquence (ligne ondulée) et les flèches 3' les processus au cours desquels un photon est absorbé. Les mécanismes que nous venons de décrire sont très généraux et se produisent naturellement quelle que soit la polarisation de la radiofréquence. Dans le cas particulier qui nous intéresse ici, nous sommes cependant en mesure de les calculer exactement : en effet, la probabilité par unité de temps $W_{\overline{m\pm 1, n'}, \overline{mn}}$ de la transition entre les deux niveaux $|\overline{\alpha J m\pm 1, n'}\rangle$ et $|\overline{\alpha J m, n}\rangle$ est proportionnelle au carré de l'élément de matrice de la perturbation entre ces niveaux ainsi qu'à la densité spectrale de la perturbation à la fréquence $\mp\omega_0 + (n-n')\omega$ de la transition :

$$W_{\overline{m\pm 1, n'}, \overline{mn}} = \frac{\gamma \alpha^2}{4} [J(J+1) - m(m\pm 1)] J_{n'-n}^2 \left(\frac{\omega_1}{\omega}\right) f[\mp\omega_0 + (n-n')\omega] \quad (\text{VII, B, 2})$$

2) Largeur des niveaux de l'atome habillé

La probabilité totale de transition à partir du niveau $|\overline{\alpha J m, n}\rangle$ s'obtient en sommant les probabilités (VII, B, 2) sur tous les états finaux de transition

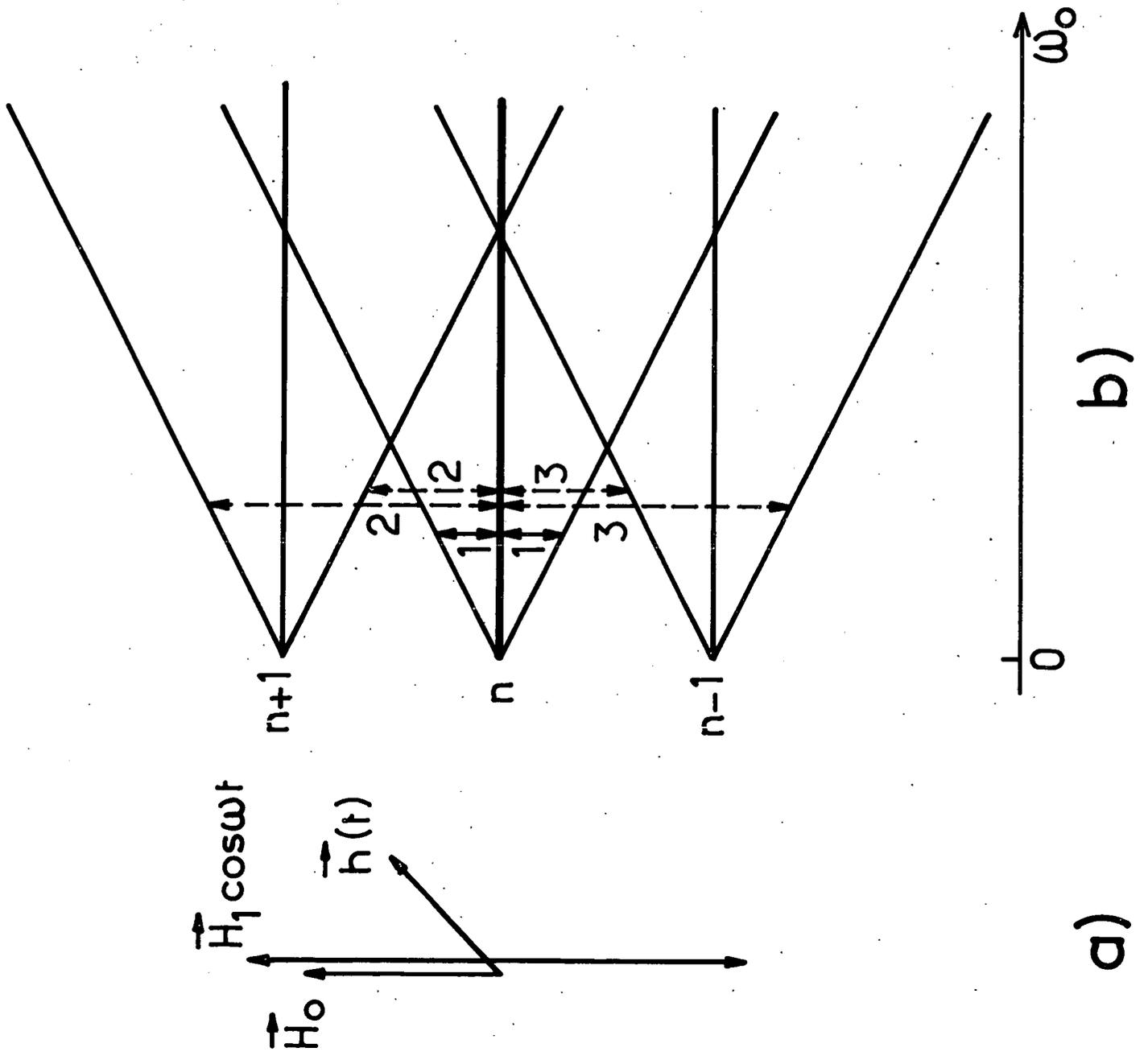


Fig. 37

possibles. On obtient ainsi la "largeur" $\Gamma_{\alpha Jmn}$ de ce niveau :

$$\begin{aligned} \Gamma_{\alpha Jmn} &= \frac{\gamma_{\alpha}^2}{4} \sum_n \left\{ W_{m+1, n'; mn} + W_{m-1, n'; mn} \right\} \\ &= \frac{\gamma_{\alpha}^2}{4} \sum_n \left[J(J+1) - m(m+1) \right] J_{n'-n}^2 \left(\frac{\omega_1}{\omega} \right) f \left[-\omega_0 + (n-n')\omega \right] \\ &+ \frac{\gamma_{\alpha}^2}{4} \sum_n \left[J(J+1) - m(m-1) \right] J_{n'-n}^2 \left(\frac{\omega_1}{\omega} \right) f \left[\omega_0 + (n-n')\omega \right] \end{aligned} \quad (\text{VII,B,3})$$

f étant une fonction paire, on peut dans $f \left[-\omega_0 + (n-n')\omega \right]$ changer le signe de l'argument $-\omega_0 + (n-n')\omega$. On peut également effectuer le changement d'indice $n'-n = r$ et remplacer les sommations sur n' par des sommations sur r variant de $-\infty$ à $+\infty$:

$$\begin{aligned} \Gamma_{\alpha Jmn} &= \frac{\gamma_{\alpha}^2}{4} \sum_r J_r^2 \left(\frac{\omega_1}{\omega} \right) \left[J(J+1) - m(m+1) \right] f(\omega_0 + r\omega) \\ &+ \frac{\gamma_{\alpha}^2}{4} \sum_r J_r^2 \left(\frac{\omega_1}{\omega} \right) \left[J(J+1) - m(m-1) \right] f(\omega_0 + r\omega) \end{aligned} \quad (\text{VII,B,4})$$

Enfin, on ne modifie pas la deuxième sommation de (VII,B,4) en y changeant formellement r en $-r$: $J_r^2 \left(\frac{\omega_1}{\omega} \right)$ reste alors inchangé et on transforme $f(\omega_0 - r\omega)$ en $f(\omega_0 + r\omega)$. Ce dernier terme se met alors en facteur dans l'expression de $\Gamma_{\alpha Jmn}$ qui, compte tenu de (VII,A,6), se met finalement sous la forme (*) :

$$\Gamma_{\alpha Jmn} = \gamma_{\alpha}^2 A_{Jm} \sum_r J_r^2 \left(\frac{\omega_1}{\omega} \right) f(\omega_0 + r\omega) \quad (\text{VII,B,5})$$

Ainsi, la probabilité totale qu'a le système de quitter le niveau $|\alpha Jmn\rangle$ sous l'effet de la relaxation se présente comme une somme de contributions correspondant aux processus où l'atome interagit avec le réseau sans absorber ni réémettre réellement aucun photon ($r = 0$) ainsi qu'à ceux où il absorbe ou réémet réellement un ou plusieurs photons en même temps qu'il subit la relaxation ($r \neq 0$). Nous verrons plus loin (§ VII-Q) comment on peut observer isolément dans la relaxation les contributions de ces différents termes.

Notons également que l'expression (VII,B,5) de la largeur du niveau $|\alpha Jmn\rangle$ dépend de m , ω_0 , ω_1 et ω mais non explicitement de n (n est contenu cependant

(*) On supposera toujours la "largeur" des niveaux très petite devant la fréquence ω (voir note, page 59) : $\Gamma_{\alpha Jmn} \ll \omega$.

implicitement dans la quantité $\omega_1 = 2\lambda \sqrt{n}$. La variation de ω_1 étant très lente avec n (voir § I-C-1), la largeur $\Gamma_{\alpha J m n}$ est donc indépendante de n dans un domaine très étendu de variation du nombre de photons).

Remarque :

La formule (VII,B,5) décrit la "largeur" d'un niveau atomique habillé. Il peut être intéressant de déterminer également celle d'un niveau $|\alpha J m\rangle$ du système atomique seul. Or il se trouve que, pour cette polarisation du champ habillant, l'état $|\overline{\alpha J m n}\rangle$ est égal au produit tensoriel de l'état atomique $|\alpha J m\rangle$ par un état de radiofréquence $|\overline{n}_m\rangle$ (cf. équation (III,A,6)). Seule la partie atomique du système subissant la relaxation, il est, dans ces conditions, évident que les "largeurs" du niveau habillé $|\overline{\alpha J m n}\rangle$ et du niveau atomique seul $|\alpha J m\rangle$ doivent être identiques : $\Gamma_{\alpha J m}$ est donc également donné en présence du champ habillant par la formule (VII,B,5).

3) Largeur des raies de résonance de l'atome habillé

Envisageons les transitions induites par un deuxième champ "sonde" entre les niveaux d'énergie de l'atome habillé. Comme pour l'atome libre, dans le cas d'une transition simple, la largeur de raie sera la somme des largeurs des deux niveaux impliqués dans la transition. En particulier, la largeur $\overline{\Gamma}$ de la raie de résonance hyperfine $|\overline{F, m_F = 0, n}\rangle \rightarrow |\overline{F', m_{F'} = 0, n}\rangle$ d'un atome alcalin habillé sera donnée par la formule :

$$\overline{\Gamma} = \gamma_F^2 (A_{F_0} + A_{F'_0}) \sum_r J_r^2 \left(\frac{\omega_1}{\omega}\right) f(\omega_0 + r\omega) \quad (\text{VII,B,6})$$

qui remplace l'expression (VII,A,7) relative au même alcalin libre.

Remarque :

La probabilité de transition entre les deux niveaux hyperfins $m_F=0$ est indépendante du couplage de l'atome avec le champ habillant (cf. § V-B-3-d) car ces deux niveaux n'interagissent pas avec la radiofréquence en polarisation π . En d'autres termes, en absence de champ magnétique inhomogène, le système atomique au cours de la transition $0 \leftrightarrow 0$ ne "verrait" pas le champ de radiofréquence habillant; le couplage avec ce champ ne se manifeste qu'en raison de l'existence de la relaxation magnétique qui induit des transitions entre chacun des niveaux $m_F=0$ et des niveaux $m_F=\pm 1$ qui sont, quant à eux, "renormalisés" par les photons de radiofréquence. Ainsi, les modifications subies par la résonance $0 \leftrightarrow 0$ en présence de la radiofréquence (variation de sa

largeur donnée par (VII,B,6) et de son intensité) ne peuvent être dues qu'aux modifications des processus de relaxation eux-même sous l'effet du couplage de l'atome avec le champ habillant.

VII-C. INFLUENCE DE L'AMPLITUDE ET DE LA FREQUENCE DU CHAMP HABILLANT SUR LA RELAXATION MAGNETIQUE

La formule (VII,B,5) est valable quellesque soient l'amplitude et la fréquence du champ habillant. Suivant les valeurs prises par ces deux paramètres, la relaxation de l'atome habillé peut, comme nous le montrons maintenant, présenter des aspects très différents.

1) Etude de la relaxation magnétique en fonction de l'amplitude du champ habillant

Si l'intensité du champ de radiofréquence est nulle ($\omega_1=0$), seul le terme $r=0$ subsiste dans la sommation (VII,B,5) ($J_r(0)=\delta_{r0}$) et la largeur du niveau $|\alpha J_{mn}\rangle$ de l'atome habillé se réduit naturellement à celle du niveau $|\alpha J_m\rangle$ de l'atome libre, donnée par (VII,A,5).

Dès que ω_1 devient différent de zéro, les contributions des processus impliquant des absorptions ou émissions de photons ($r \neq 0$) apparaissent dans l'expression (VII,B,5) de la largeur $\Gamma_{\alpha J_{mn}}$ tandis que le terme de relaxation directe ($r=0$) diminue. Cependant, il est facile de voir que la modification globale de la largeur des différents niveaux de l'atome habillé reste négligeable tant que la condition $\omega_1 \tau_c \ll 1$ est remplie; en effet, il résulte des propriétés bien connues des fonctions de Bessel que les coefficients $J_r^2(\frac{\omega_1}{\omega})$ deviennent très petits dès que leur ordre r est très supérieur à l'argument ω_1/ω de la fonction, c'est-à-dire encore si $r\omega$ est beaucoup plus grand que ω_1 ; en conséquence, seuls sont importants les termes de la sommation (VII,B,5) pour lesquels l'argument $\omega_0 + r\omega$ de la densité spectrale diffère de ω_0 d'une quantité au plus de l'ordre de ω_1 . Si $\omega_1 \tau_c \ll 1$, l'écart de cet argument par rapport à ω_0 est donc négligeable devant la largeur $1/\tau_c$ de la densité spectrale et on peut, dans les termes prépondérants de la somme, remplacer $f(\omega_0+r\omega)$ par $f(\omega_0)$. Cette dernière quantité se factorise alors et la sommation sur r dans (VII,B,5) se réduit à une

relation de fermeture classique sur les fonctions de Bessel : $\sum_r J_r^2(\frac{\omega_1}{\omega}) = 1$. L'équation (VII,B,5) s'identifie dans ce cas à (VII,A,5) et tout se passe comme s'il n'y avait pas de champ de radiofréquence. En d'autres termes, tant que la condition $\omega_1 \tau_c \ll 1$ est remplie, la réduction sous l'effet du champ habillant du processus de relaxation direct $r = 0$ est compensée presque exactement par l'apparition de mécanismes indirects à un ou plusieurs photons.

Pour observer une modification notable de la relaxation magnétique en présence du champ habillant, il faut donc que ce champ soit suffisamment intense pour que la condition

$$\omega_1 \tau_c \gtrsim 1$$

soit remplie. Ce résultat montre bien que la radiofréquence doit pouvoir interagir avec le système atomique pendant le temps de corrélation de la perturbation magnétique et que nous observons alors un phénomène lié à une modification intrinsèque des processus de relaxation sous l'effet du couplage avec les photons de radiofréquence.

Nous allons à présent étudier ces modifications plus en détail en fonction de la fréquence du champ habillant.

2) Etude de la relaxation magnétique en fonction de la fréquence du champ habillant

Si la condition $\omega \tau_c \ll 1$ est réalisée, le champ vu par l'atome durant son temps de vol libre dans la cellule est un champ pratiquement statique figé à une valeur dépendant de la phase de la radiofréquence à cet instant : nous verrons que la relaxation suit alors adiabatiquement les variations du champ magnétique total $\vec{H}_0 + \vec{H}_1 \cos \omega t$. Au contraire, si l'on a $\omega \tau_c \gg 1$, plusieurs périodes du champ de radiofréquence sont contenues dans l'intervalle de temps τ_c et le système de spins est en quelque sorte "sensible" au caractère oscillant du champ habillant pendant le temps de corrélation τ_c . La relaxation ne peut plus "suivre" adiabatiquement les variations de la radiofréquence et des effets intéressants et nouveaux deviennent alors observables. Ainsi, la quantité $1/\tau_c$ joue dans le problème un rôle capital non seulement vis-à-vis de ω_1 mais aussi vis-à-vis de ω . Nous allons envisager à présent les deux situations que nous venons d'évoquer.

a) La relaxation magnétique en présence d'un champ habillant de fréquence élevée ($\omega \tau_c \gg 1$)

ω étant dans ce cas très supérieur à la largeur $1/\tau_c$ du profil spectral de la perturbation magnétique, une seule des quantités $\omega_0 + r\omega$ peut se trouver dans ce profil et il en résulte qu'un terme au plus de la sommation (VII,B,5) contribue de façon importante à la relaxation. Deux cas sont à considérer suivant la grandeur du champ statique H_0 :

α) Champ statique faible : réduction de la relaxation magnétique due à la modification du facteur de Landé atomique

Nous avons représenté sur la figure 38-a les variations de la "largeur" $\Gamma_{\alpha J_m}$ du niveau $|\alpha J_m\rangle$ de l'atome libre en fonction du champ statique H_0 (cette variation décrit simplement celle de $f(\omega_0)$ étudiée au § VII-A). Si la condition de champ faible $\omega_0 \tau_c \ll 1$ est satisfaite (rétrécissement extrême), on se trouve pratiquement au maximum de la courbe et la relaxation magnétique de l'atome libre est importante. On a alors en effet $f(\omega_0) \sim f(0)$ et la largeur $\Gamma_{\alpha J_m}$ s'écrit :

$$\Gamma_{\alpha J_m} = A_{J_m} \gamma_\alpha^2 f(0) \quad (\text{VII,C,1})$$

En présence du champ habillant, la largeur des niveaux est donnée par l'expression (VII,B,5) dans laquelle on peut négliger ω_0 dans les arguments des différentes distributions spectrales :

$$\Gamma_{\alpha J_m} = A_{J_m} \gamma_\alpha^2 \sum_r J_r^2 \left(\frac{\omega_1}{\omega} \right) f(r\omega) \quad (\text{VII,C,2})$$

ω étant très supérieur à $1/\tau_c$, le seul terme non négligeable de cette somme correspond à $r = 0$ et l'on peut écrire finalement :

$$\Gamma_{\alpha J_m} = A_{J_m} \gamma_\alpha^2 J_0^2 \left(\frac{\omega_1}{\omega} \right) f(0) \quad (\text{VII,C,3})$$

Tout se passe donc dans ce cas comme si la relaxation de l'atome habillé était la même que celle d'un atome libre de rapport gyromagnétique $\gamma_\alpha J_0 \left(\frac{\omega_1}{\omega} \right)$. En effet, bien que le facteur de Landé ne soit pas modifié pour le champ \vec{H}_0 parallèle à la radiofréquence (l'écart Zeeman des niveaux de l'atome habillé reste égal à ω_0), ce facteur se trouve réduit par $J_0 \left(\frac{\omega_1}{\omega} \right)$ pour les composantes de la perturbation $\vec{h}(t)$ perpendiculaires à \vec{H}_1 qui sont dans ce cas précisément responsables de la relaxation : il en résulte une réduc-

tion en $J_0^2(\frac{\omega_1}{\omega})$ de la largeur d'origine magnétique des niveaux d'énergie atomiques. Cette largeur est représentée en fonction de ω_1 par la courbe de la figure 38-b : c'est une fonction oscillante de l'amplitude du champ habillant. En particulier, pour toutes les valeurs $\omega_1 = 2,4\omega$; $\omega_1 = 5,6\omega$ etc. annulant la fonction de Bessel $J_0(\frac{\omega_1}{\omega})$, le système atomique devient insensible aux inhomogénéités magnétiques.

Insistons bien sur le point suivant : pour que la variation du facteur de Landé atomique se manifeste directement sur la sensibilité du système aux perturbations magnétiques, il faut que le processus de relaxation directe que nous venons de décrire ne soit pas masqué par les processus indirects $r \neq 0$ à un ou plusieurs photons de radiofréquence et il est donc indispensable que la condition $\omega \tau_c \gg 1$ soit remplie. Ce résultat se comprend d'ailleurs aisément : supposons par exemple que le champ habillant ait une fréquence très inférieure à $1/\tau_c$ et que le rapport ω_1/ω corresponde à la première annulation du facteur de Landé de l'atome habillé. ω_1 qui est de l'ordre de ω est alors lui-même très inférieur à $1/\tau_c$. Il est donc évident que l'annulation du facteur de Landé ne peut, dans ces conditions, se traduire par une réduction de la relaxation magnétique qui, dans le cas $\omega_1 \tau_c \ll 1$, doit rester insensible à l'interaction avec le champ habillant (cf. § VII-C-1).

β) Champ statique fort : mise en évidence des processus de relaxation impliquant l'absorption ou l'émission de photons de radiofréquence

Plaçons-nous dans un champ statique tel que $\omega_0 \tau_c \gg 1$. Dans ce domaine de champ fort, le couplage avec la radiofréquence ne se traduit plus simplement par une réduction du facteur de Landé atomique et nous allons voir que, loin d'être diminuée par la présence de la radiofréquence, la relaxation peut à présent être fortement augmentée. Sur l'atome libre la relaxation magnétique est, en effet, très faible car on a $f(\omega_0) \sim 0$ (cf. figure 38-a). Cependant, si la fréquence ω du champ habillant est telle que la condition :

$$\omega_0 + r\omega \ll \frac{1}{\tau_c} \quad (\text{VII,C,4})$$

est remplie pour une transition $|\alpha J_m\rangle \rightarrow |\alpha J_{m\pm 1, n\pm r}\rangle$ donnée (le champ statique est alors voisin d'un point de croisement $\omega_0 = -r\omega$ de niveaux de l'atome habillé), la densité spectrale associée au processus de relaxation correspondant devient importante et l'on a :

$$\Gamma_{\alpha J_m} = A_{J_m} \gamma_\alpha^2 J_r^2(\frac{\omega_1}{\omega}) f(0) \quad (\text{VII,C,5})$$

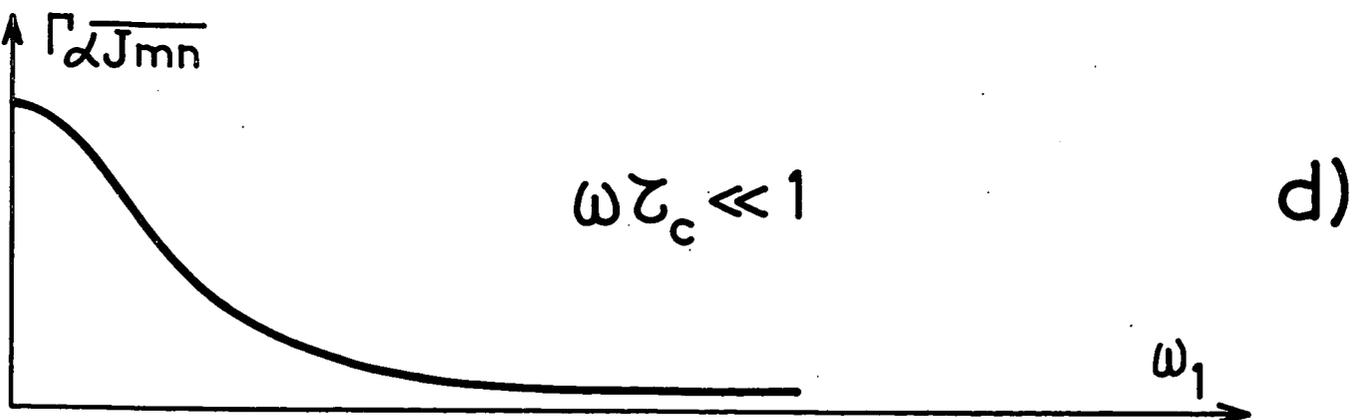
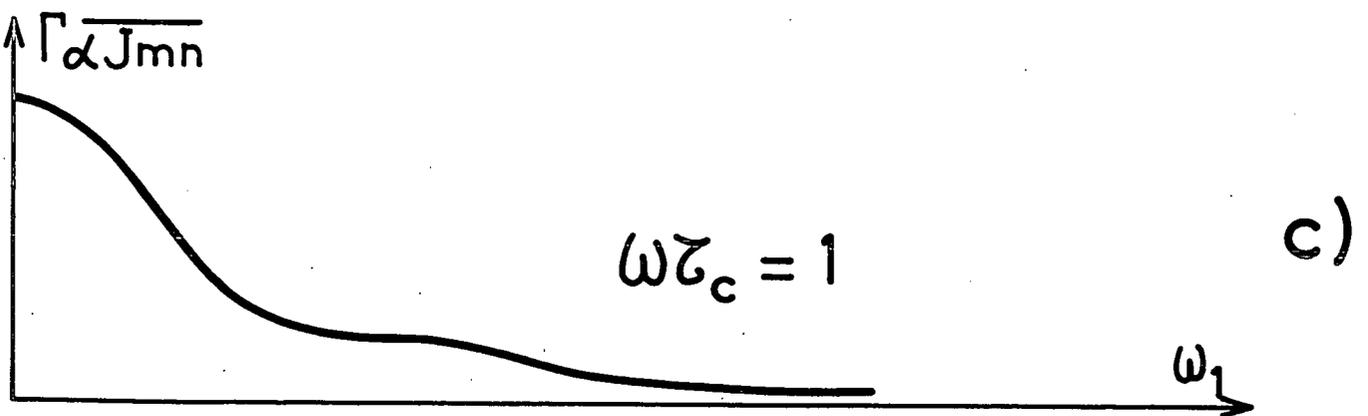
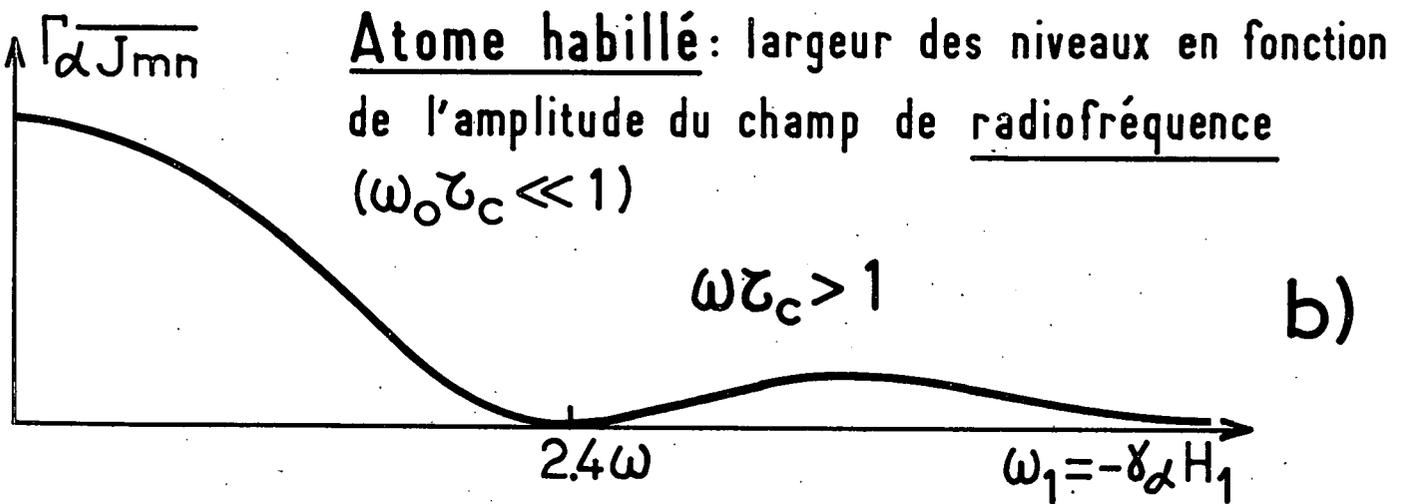
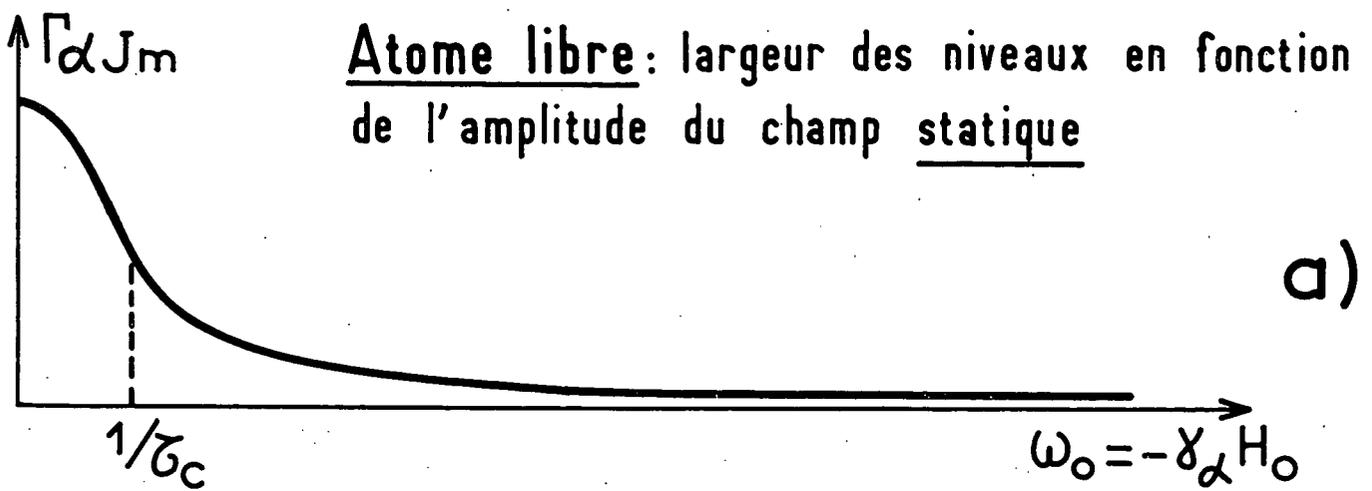


Fig. 38

L'effet de la relaxation qui était négligeable sur l'atome libre peut, dans ce cas, devenir important sur l'atome habillé : alors que la relaxation magnétique à elle seule ne pouvait induire de transition entre les niveaux atomiques trop séparés les uns des autres, l'absorption ou l'émission induite de r photons permet en effet de ramener la fréquence de la transition induite par le couplage avec le champ inhomogène dans le profil spectral de la perturbation magnétique. Il est ainsi possible de mettre en évidence séparément, en faisant varier la fréquence ω ou l'amplitude ω_0 du champ statique de façon à satisfaire (VII,C,4) pour différentes valeurs de r , des processus de relaxation à un ou plusieurs quanta d'un ordre r quelconque qui se manifestent au voisinage des différents croisements $\omega_0 = r\omega$ de l'atome habillé. L'intensité de chacun de ces processus varie comme la fonction de Bessel $J_r^2\left(\frac{\omega_1}{\omega}\right)$ et subit les oscillations caractéristiques de cette fonction lorsqu'on varie l'intensité de la radiofréquence.

b) La relaxation magnétique en présence d'un champ habillant basse fréquence

Si, partant du domaine haute fréquence $\omega \tau_c \gg 1$, on diminue petit à petit la fréquence du champ oscillant, on constate sans peine sur la formule (VII,B,5) que le nombre de processus de r différents qui contribuent à la largeur des niveaux va augmenter progressivement : par exemple, en champ statique faible ($\omega_0 \tau_c \ll 1$), lorsque $\omega \tau_c$ deviendra de l'ordre de l'unité, il va apparaître en plus du terme en J_0^2 décrit au paragraphe précédent des termes en J_1^2 , J_2^2 , etc.. Le nombre de fonctions de Bessel augmentant, les oscillations en fonction de ω_1/ω de la largeur des niveaux vont peu à peu s'atténuer puis disparaître complètement : la figure 38-c représente par exemple la largeur des niveaux en fonction de ω_1 pour $\omega \tau_c = 1$. Les oscillations ne sont alors pratiquement plus perceptibles ...

On passe ainsi en diminuant la fréquence de façon continue d'une situation où l'atome voit pendant le temps de corrélation un champ véritablement oscillant, à une situation où il se trouve couplé pendant le temps τ_c avec un champ quasi-statique $\vec{H}_0 + \vec{H}_1 \cos \omega t$ dont l'amplitude change sur des intervalles de temps caractéristiques très longs devant τ_c . On s'attend alors à ce que les populations des niveaux atomiques $|\alpha J_m\rangle$ relaxent à chaque instant avec une constante de temps dépendant de l'amplitude instantanée du champ, le temps de relaxation suivant adiabatiquement les variations de cette amplitude. La "largeur" des niveaux atomiques devra donc être la moyenne sur une période de la "largeur" définie dans le champ instantané; on peut donc écrire, d'après ces considérations intuitives :

$$\lim_{\omega\tau_c \rightarrow 0} \Gamma_{\alpha Jm} = A_{Jm} \gamma_\alpha^2 \frac{\omega}{2\pi} \int_0^{2\pi/\omega} f(\omega_0 + \omega_1 \cos \omega t) dt \quad (\text{VII,C,6})$$

Ce raisonnement classique ne permet a priori de déterminer que la largeur des différents niveaux du système atomique seul et non pas celle des états propres de l'atome habillé. Cependant, d'après la remarque de la page 256, on a $\Gamma_{\alpha Jmn} = \Gamma_{\alpha Jm}$ et la largeur des niveaux de l'atome habillé doit également être donnée, à la limite des faibles fréquences, par l'expression (VII,C,6) (*). Il est facile de voir que cette expression ne dépend plus de ω et qu'elle redonne bien, pour $\omega_1 = 0$, l'expression (VII,A,5) de la largeur du niveau αJm dans le champ H_0 . D'autre part, au voisinage du champ statique nul ($\omega_0 \tau_c \ll 1$), on peut dans (VII,C,6) négliger ω_0 et l'on voit alors immédiatement que $\Gamma_{\alpha Jmn}$ est une fonction monotone décroissante de ω_1 dont l'allure est très voisine de celle de $f(\omega_0)$. Nous avons représenté cette fonction sur la figure 38-d. Nous constatons en particulier que le caractère oscillant de la largeur des niveaux en fonction de ω_1 a bien complètement disparu.

Il est facile de retrouver quantiquement tous les résultats que nous venons d'établir à partir d'une description classique du champ habillant. Il nous suffit en effet de montrer que la formule (VII,C,6) est un cas particulier, à la limite des faibles fréquences, de la formule générale (VII,B,5), valable quel que soit ω . Il est commode dans ce but de donner de cette dernière équation une formulation équivalente à partir de laquelle il sera plus facile d'envisager la limite $\omega \tau_c \rightarrow 0$: revenant à la fonction de corrélation $g(\tau)$, l'équation (VII,B,5) peut s'écrire, compte tenu de (VII,A,2) :

$$\Gamma_{\alpha Jmn} = \gamma_\alpha^2 A_{Jm} \sum_r \int_{-\infty}^{+\infty} g(\tau) e^{-i[\omega_0 + r\omega]\tau} d\tau J_r^2\left(\frac{\omega_1}{\omega}\right)$$

soit encore :

$$\Gamma_{\alpha Jmn} = \gamma_\alpha^2 A_{Jm} \int_{-\infty}^{+\infty} \left\{ \sum_r J_r^2\left(\frac{\omega_1}{\omega}\right) e^{-ir\omega\tau} \right\} g(\tau) e^{-i\omega_0\tau} d\tau \quad (\text{VII,C,7})$$

(*) On notera que le raisonnement conduisant à l'expression (VII,C,6) suppose, bien entendu, que le temps caractéristique d'évolution de la population des niveaux sous l'effet de la relaxation est très long devant la période du champ de radiofréquence, c'est-à-dire encore que la condition $\Gamma_{\alpha Jmn} < \omega$ est remplie (voir note, page 255).

Nous allons exprimer sous une forme différente l'expression entre accolades sous le signe somme dans l'équation (VII,C,7). On sait en effet que les fonctions de Bessel $J_r(\frac{\omega_1}{\omega})$ peuvent être définies comme les composantes de Fourier de la fonction périodique $e^{-i\frac{\omega_1}{\omega} \sin \omega \tau}$

$$e^{-i\frac{\omega_1}{\omega} \sin \omega \tau} = \sum_r J_r(\frac{\omega_1}{\omega}) e^{-ir\omega \tau} \quad (\text{VII,C,8})$$

Si l'on effectue le produit de convolution de $e^{-i\frac{\omega_1}{\omega} \sin \omega \tau}$ avec elle-même, on obtiendra une nouvelle fonction périodique de τ , dont les composantes de Fourier seront les carrés des coefficients $J_r(\frac{\omega_1}{\omega})$ et dont le développement ne sera finalement autre que l'expression entre accolades dans (VII,C,7); de façon plus précise, on a, compte tenu de (VII,C,8) :

$$\begin{aligned} \int_0^{2\pi/\omega} e^{-i\frac{\omega_1}{\omega} \sin \omega(\tau-\tau')} e^{-i\frac{\omega_1}{\omega} \sin \omega \tau'} d\tau' &= \sum_{r,r'} J_r(\frac{\omega_1}{\omega}) J_{r'}(\frac{\omega_1}{\omega}) e^{-ir\omega \tau} \int_0^{2\pi/\omega} e^{i(r'-r)\omega \tau'} d\tau' \\ &= \frac{2\pi}{\omega} \sum_r J_r^2(\frac{\omega_1}{\omega}) e^{-ir\omega \tau} \end{aligned} \quad (\text{VII,C,9})$$

Reportant (VII,C,9) dans (VII,C,7), on met finalement la largeur $\Gamma_{\alpha Jmn}$ sous la forme :

$$\Gamma_{\alpha Jmn} = \gamma_\alpha^2 A_{Jm} \frac{\omega}{2\pi} \int_0^{2\pi/\omega} d\tau' \int_{-\infty}^{+\infty} d\tau e^{-i\frac{\omega_1}{\omega} [\sin \omega(\tau-\tau') + \sin \omega \tau']} e^{-i\omega_0 \tau} g(\tau) \quad (\text{VII,C,10})$$

Jusqu'à présent, nous n'avons effectué aucune approximation et l'expression (VII,C,10) est strictement équivalente à (VII,B,5). Précisons ce que devient cette expression si $\omega \tau_c \ll 1$: la fonction $g(\tau)$ sous le signe somme dans (VII,C,10) a une largeur de l'ordre de τ_c ; en conséquence l'intégration sur τ effectuée de $-\infty$ à $+\infty$ porte en fait sur des valeurs de τ au plus de l'ordre de quelques τ_c . $\omega \tau$ peut donc, de même que $\omega \tau_c$, être considéré comme une quantité petite devant l'unité. On peut alors, dans l'argument de l'exponentielle, effectuer un développement limite en $\omega \tau$ et écrire :

$$e^{-i\frac{\omega_1}{\omega} [\sin \omega(\tau-\tau') + \sin \omega \tau']} \sim e^{-i\omega_1 \tau} \cos \omega \tau'$$

$\Gamma_{\alpha Jmn}$ devient alors :

$$\Gamma_{\alpha J m n} \sim \gamma_{\alpha}^2 A_{J m} \frac{\omega}{2\pi} \int_0^{2\pi/\omega} d\tau' \int_{-\infty}^{+\infty} d\tau e^{-i[\omega_1 \cos \omega \tau' + \omega_0] \tau} g(\tau) \quad (\text{VII,C,11})$$

On reconnaît dans l'intégrale sur τ de l'équation (VII,C,11) l'expression de la densité spectrale prise pour la valeur $\omega_0 + \omega_1 \cos \omega \tau'$. En remplaçant cette intégrale par $f(\omega_0 + \omega_1 \cos \omega \tau')$, on retrouve bien l'expression (VII,C,6) dont nous avons donc justifié la forme à partir de l'équation générale (VII,B,5) en établissant le raccord entre les différents domaines de fréquence du champ habillant. Nous avons ainsi pu décrire, dans le formalisme de l'atome habillé, l'ensemble des propriétés de la relaxation d'un système de spins en présence d'un champ de radiofréquence intense en polarisation π . Ce formalisme nous a permis de rendre compte aussi bien du comportement du système à haute fréquence, dans un domaine où il est possible de parler de l' "interaction" de l'atome avec un champ oscillant pendant le temps de corrélation de la perturbation, qu'à basse fréquence dans un domaine où le système de spins suit adiabatiquement les variations du champ. L'ensemble des propriétés de la relaxation est contenu dans les équations (VII,B,5) ou (VII,C,10) qui sont strictement équivalentes. Remarquons que c'est la seconde de ces équations que l'on aurait obtenu si l'on s'était livré à un calcul classique de la relaxation en présence de la radiofréquence. L'équation (VII,B,5), obtenue directement à partir du calcul quantique, est cependant plus simple dans la mesure où elle met bien en évidence les termes correspondant aux divers processus physiques élémentaires qui contribuent à la relaxation.

Nous décrivons au chapitre XI les expériences qui nous ont permis de vérifier la théorie présentée ici. Elles ont consisté à mesurer la largeur de la raie $0 \leftrightarrow 0$ de résonance hyperfine du ^{87}Rb habillé (formule (VII,B,6)). L'étude de cette résonance est, comme nous l'avons vu (^{2^{ème}} remarque, page 256), particulièrement bien adaptée à la mise en évidence des processus de relaxation de l'atome habillé puisqu'au cours de la transition $0 \leftrightarrow 0$, le couplage avec la radiofréquence ne peut modifier que l'effet de la perturbation magnétique responsable de la relaxation et non pas la probabilité de la transition elle-même.

CHAPITRE VIII

INTRODUCTION A L' ETUDE EXPERIMENTALE

VIII-A. GENERALITES

Un certain nombre de conditions expérimentales doivent être nécessairement remplies si l'on veut vérifier les principaux effets prévus dans les chapitres précédents :

- Il est tout d'abord indispensable de disposer de techniques expérimentales permettant la préparation et la détection de grandeurs transversales dans le système atomique. Le pompage doit d'autre part pouvoir s'effectuer en champ statique faible, voire même nul.

- Il faut également être capable de réaliser un champ de radiofréquence d'intensité relative très grande : il ne suffit pas en effet que ce champ puisse saturer la résonance magnétique dans le niveau étudié ($\omega_1 > \Gamma$); il faut également, pour observer la plupart des effets liés aux transitions virtuelles, que l'amplitude rapportée à la fréquence du champ, ω_1/ω , puisse prendre des valeurs de l'ordre de l'unité ou plus ($\omega_1 \gtrsim \omega$).

- Enfin, les différents effets prévus par la théorie sont extrêmement sensibles à la polarisation de la radiofréquence. Envisageons par exemple le cas d'un champ habillant en polarisation π ; en principe le diagramme d'énergie d'un spin 1/2 habillé doit alors présenter une infinité de croisements de niveaux $\omega_0 = p\omega$ (voir figure 7-a). En fait, si la radiofréquence possède une composante parasite perpendiculaire au champ statique \vec{H}_0 , tous ces croisements deviennent des anticroisements. Il suffit que l'amplitude ω'_1 de la composante parasite soit de l'ordre de la largeur Γ du niveau pour que ces anticroisements soient détectables et que les propriétés physiques du système soient donc nettement modifiées. Un défaut de polarisation très faible en valeur relative est suffisant si l'amplitude du champ habillant est grande ($\frac{\omega'_1}{\omega_1} \sim \frac{\Gamma}{\omega_1} \ll 1$). On conçoit donc qu'un réglage précis de la polarisation de la radiofréquence soit en général nécessaire.

La discussion précédente nous permet clairement de comprendre les raisons pour lesquelles la plupart des effets décrits dans ce travail ne sont en général pas observés dans des expériences classiques de résonance magnétique électronique ou nucléaire : seul un pompage longitudinal du système de spins en champ statique fort

est alors en général possible (l'orientation dépendant souvent, dans ces expériences, du facteur de Boltzmann). D'autre part, en raison de la fréquence relativement élevée des champs de radiofréquence communément utilisés, le rapport ω_1/ω est en général très petit devant l'unité et les effets de transitions virtuelles de radiofréquence restent d'habitude très faibles. Enfin, on ne dispose pas dans de telles expériences de méthodes simples pour contrôler avec précision la polarisation de la radiofréquence.

Au contraire, toutes les conditions énoncées plus haut se trouvent réunies de façon idéale lorsqu'on utilise les techniques du pompage optique de l'état fondamental d'atomes paramagnétiques en phase vapeur. Nous savons alors que l'on dispose, en variant la polarisation, l'orientation ou la fréquence des faisceaux de pompage et de détection, d'une méthode extrêmement souple et commode pour préparer ou détecter une observable atomique donnée du niveau étudié, dans un champ magnétique statique, d'amplitude quelconque. D'autre part, l'utilisation de cellules de résonance contenant une vapeur à faible pression, dont les parois sont recouvertes éventuellement d'un enduit protecteur permet d'obtenir des temps de relaxation atomiques extrêmement longs et l'utilisation de champs habillants de très basse fréquence devient alors possible. Pour de tels champs, il est très facile, avec des amplitudes modérées de la radiofréquence, de réaliser la condition $\omega_1/\omega \gtrsim 1$. Enfin, l'existence d'une grande variété de signaux de détection optiques sensibles à la fois au champ statique et aux champs oscillants appliqués aux atomes rend possible un contrôle précis de la polarisation de la radiofréquence.

Les expériences que nous avons réalisées ont porté sur deux types d'atomes différents : un certain nombre d'effets ont été vérifiés sur l'état fondamental 6^1S_0 des isotopes impairs du mercure dont le paramagnétisme est d'origine nucléaire (^{199}Hg pour lequel $I = 1/2$; ^{201}Hg de $I = 3/2$). D'autres phénomènes ont été étudiés sur l'état fondamental $nS_{1/2}$ d'atomes alcalins dont le paramagnétisme est électronique et qui possèdent, comme nous l'avons déjà signalé, du fait de leur spin nucléaire, une structure hyperfine dans cet état (^{87}Rb $I = 3/2$; ^{133}Cs $I = 7/2$).

La sensibilité magnétique des atomes étudiés est très différente dans ces deux types d'expérience : alors que le magnétisme nucléaire des isotopes impairs du mercure correspond à des rapports gyromagnétiques de l'ordre du KHz par Gauss (760 Hz/G pour ^{199}Hg ; 280 Hz/G pour ^{201}Hg), celui des atomes alcalins, d'un ordre mille fois supérieur, avoisine le MHz par Gauss (700 KHz/G pour ^{87}Rb ; 350 KHz/G pour ^{133}Cs). Il se trouve cependant que les temps de relaxation de l'orientation atomique sont, pour ces différentes espèces, comparables et dans les meilleures conditions (voir plus loin) voisins de la seconde. Il en résulte que la largeur mesurée en champ magnétique des

raies atomiques, $\Delta H_0 = 2\Gamma/\gamma$, est de l'ordre du milligauss pour le mercure, du microgauss seulement pour les alcalins. Il est bien clair, dans ces conditions, que les signaux détectés seront, surtout dans ce dernier cas, extrêmement sensibles aux différents bruits magnétiques (fluctuations du champ terrestre, champs parasites du laboratoire ...) dont l'amplitude est généralement de l'ordre du milligauss. Il est indispensable d'atténuer dans des proportions considérables toutes ces perturbations magnétiques dont les effets masqueraient complètement les phénomènes liés au couplage avec le champ habillant. Nous avons donc placé le montage expérimental dans un blindage magnétique qui constitue l'élément original d'un dispositif de pompage optique par ailleurs classique. Avant d'aborder aux chapitres suivants la description des différentes expériences que nous avons réalisées à l'aide de ce dispositif, nous allons donner une description rapide de ses différentes parties et rappeler brièvement les diverses techniques expérimentales que nous avons utilisées.

VIII-B. DESCRIPTION GENERALE DU MONTAGE ET DES TECHNIQUES EXPERIMENTALES

1) Le pompage et la détection optiques

a) Les cellules de résonance et les temps de relaxation atomiques

Dans le cas des expériences de pompage optique du mercure (⁸⁷), les cellules sont des cubes de quartz de quelques cms de côté contenant soit de la vapeur saturante de mercure, soit de la vapeur sèche dont la pression dépend de la température à laquelle la cellule a été scellée. La relaxation des atomes est due à leurs chocs sur les parois. Les temps de relaxation, de l'ordre de la seconde lorsque la cellule est à la température ordinaire peuvent être encore allongés (jusqu'à quelques secondes) si les parois sont chauffées à une température d'environ 200°C. Pour le pompage des atomes alcalins (⁷⁷), les cellules de résonance, en pyrex, ont une forme sphérique. Leur diamètre varie de trois à six cm suivant les expériences. Elles contiennent de la vapeur saturante d'atomes alcalins dont la pression varie dans des proportions considérables en fonction de la température de la cellule. Il n'y a pas de gaz tampon. A la température ordinaire, lorsque les collisions d'échange de spin peuvent être négligées, la relaxation est encore dominée par les chocs sur les parois de la cellule qui sont enduites de paraffine deutérée, ce qui allonge considérablement les temps de relaxation des diverses observables. Celui de l'orientation atomique est typiquement de l'ordre de la seconde.

b) Les principales caractéristiques du pompage et de la détection optiques

Le pompage s'effectue sur la transition $6^1S_0 - 6^3P_1$ du mercure (2.537Å) ou sur les transitions $nS_{1/2} \rightarrow nP_{1/2}$ et $nS_{1/2} \rightarrow nP_{3/2}$ des alcalins (raies D₁ et D₂; 7.947 et 7.800Å pour Rb). L'optique est donc très différente pour les deux types d'expériences réalisées les unes dans l'ultraviolet, les autres dans le proche infra-rouge : alors que pour le mercure, des lentilles et des cellules en quartz sont indispensables, on peut se contenter pour les alcalins de lentilles de Fresnel en plexiglass et utiliser des cannes ou des fibres de verre pour canaliser la lumière à la manière des fontaines lumineuses. Les détecteurs utilisés (photomultiplicateurs RCA 1P28 pour le mercure, ou RCA 7102 pour les alcalins) sont également différents suivant le type d'expérience envisagé.

Les faisceaux de pompage et de détection sont produits par des lampes à décharge sans électrodes, excitées par magnétron. Ces lampes contiennent des isotopes de mercure ou d'alcalins, identiques ou non suivant les cas à l'isotope contenu dans la cellule de résonance. En jouant sur les diverses coïncidences de raie (entre les isotopes du mercure (⁸⁷) ou encore entre les isotopes ⁸⁵Rb et ⁸⁷Rb du rubidium), il est possible d'obtenir des faisceaux de lumière résonnante ou non résonnante pour les atomes étudiés, permettant de réaliser des types de pompage ou de détection très variés (⁴⁶, ⁸⁹). Rappelons qu'un faisceau résonnant permet, s'il est polarisé circulairement, de préparer de l'orientation atomique dans sa direction de propagation. S'il n'est pas polarisé (ou polarisé linéairement), il introduit (si $J > 1/2$) une composante de l'alignement longitudinale (T_0^2) par rapport à sa direction de propagation (ou par rapport à celle de sa polarisation linéaire).

L'intensité de la lumière transmise sur le faisceau pompant est proportionnelle à la valeur stationnaire dans la vapeur atomique de la composante de l'orientation ou de l'alignement introduite par le pompage.

On peut également utiliser, pour mesurer les diverses observables atomiques, un faisceau détecteur distinct du faisceau de pompage : si ce faisceau est résonnant et si le détecteur est précédé d'un analyseur circulaire, on mesure la composante de l'orientation parallèle au faisceau. Cette même observable peut également être détectée à l'aide d'un faisceau non résonnant, à condition que la cellule soit placée entre un polariseur et un analyseur linéaire à 45° l'un de l'autre : on mesure alors la rotation Faraday du plan de polarisation optique proportionnelle à la composante de l'orientation le long du faisceau (⁹⁰)(⁹¹)(⁹²). Enfin, la détection de l'alignement peut s'effectuer à l'aide d'un faisceau résonnant sans analyseur (on détecte

alors la composante longitudinale de l'alignement dans la direction du faisceau) ou muni d'un analyseur linéaire (on détecte la composante T_0^2 rapportée à la direction du vecteur de polarisation). Remarquons cependant que la détection optique de l'alignement est pratiquement impossible, ou tout au moins très difficile, sur les atomes alcalins comme le Rb dont la structure hyperfine n'est pas résolue dans l'état excité (⁷²). Le seul élément que nous ayons étudié et qui se prête à une étude expérimentale simple de l'alignement est donc ²⁰¹Hg ($I = 3/2$).

Notons enfin que les faisceaux de pompage et de détection peuvent perturber de façon appréciable les niveaux d'énergie atomiques (⁶⁶) : un faisceau résonnant confère, en arrachant les atomes à l'état fondamental, une largeur d'origine optique à cet état; un faisceau non résonnant peut induire des déplacements de niveaux atomiques. On minimisera ces effets en limitant l'intensité de la lumière de pompage ou de détection.

2) Le blindage magnétique et le réglage du champ statique

Les champs magnétiques appliqués aux atomes sont produits par des dispositifs de bobines de Helmholtz au centre desquels se trouve la cellule de résonance. L'ensemble de la cellule et des bobines est protégé des perturbations extérieures par un blindage magnétique.

Nous avons en fait utilisé deux blindages, d'efficacités différentes, suivant qu'il s'agissait de pomper optiquement le mercure (cas dans lequel une atténuation "moyenne" de l'ordre d'un facteur 100 des bruits magnétiques était amplement suffisante) ou les atomes alcalins (une atténuation beaucoup plus importante est alors nécessaire). Le blindage utilisé pour les expériences relatives au mercure ayant déjà été décrit par ailleurs (⁶³), nous nous limiterons ici à une étude du blindage de haute performance utilisé pour les alcalins : nous l'avons schématisé avec l'ensemble du montage expérimental sur la figure 39 : le blindage qui protège la cellule de résonance et les bobines de Helmholtz génératrices des champs magnétiques ne contient ni les lampes des faisceaux de pompage et de détection, ni les photomultiplicateurs. Il se compose de cinq enceintes cylindriques concentriques de mu-métal de 2 mm d'épaisseur (longueur du cylindre intérieur 1m; diamètre 50 cm; une seule enceinte a été schématisée sur la figure). Chaque cylindre est fermé à ses deux extrémités par des couvercles de mu-métal de même épaisseur percés de fenêtres permettant aux faisceaux de pompage et de détection de pénétrer dans le blindage. Les faisceaux traversent la

cellule de résonance soit parallèlement à l'axe du blindage (F_1) soit perpendiculairement à cet axe (F_2). Dans ce dernier cas, la lumière issue de la lampe L_2 est réfléchie dans la bonne direction par un miroir M intérieur au blindage (voir fig. 39).

Le facteur de blindage des perturbations magnétiques dans la direction perpendiculaire à l'axe des cylindres est supérieur à 10^5 (10^4 seulement pour une perturbation parallèle à cet axe), ce qui permet dans des conditions favorables (jours fériés ou nuit) de réduire le bruit magnétique dans le blindage au-dessous de 10^{-9} G (nous indiquons plus loin comment on mesure ce bruit).

La démagnétisation que l'on doit réaliser en principe après chaque "accident magnétique" survenu au blindage (variation brutale du champ auquel il a été soumis, ouverture et fermeture des extrémités, etc.) est assurée par un conducteur unique en cuivre, le traversant de part en part, susceptible de débiter plusieurs centaines d'ampères de courant alternatif. On assure la démagnétisation en augmentant puis en diminuant progressivement l'intensité du courant, ce qui fait parcourir au mu-métal un très grand nombre de cycles d'hystérésis dont l'amplitude est d'abord croissante, puis décroissante.

Le champ résiduel à l'intérieur du blindage dépend précisément des conditions de la démagnétisation. Lorsque celle-ci a été soignée, ce champ peut être de l'ordre du μ G seulement. Sa direction est arbitraire et varie également d'une démagnétisation à l'autre.

Le blindage réduit aussi considérablement les inhomogénéités magnétiques sur le volume de la cellule de résonance (de l'ordre de 100 cm^3). Celles-ci sont dans le laboratoire de l'ordre du milligauss et sont réduites au-dessous du μ G dans le blindage.

Notons enfin qu'il est indispensable d'exclure du blindage tous les matériaux susceptibles d'être magnétiques et de créer des champs et surtout des gradients de champ sur le volume de la cellule : les photomultiplicateurs (dont les dynodes sont en nickel), les circuits électroniques (dont les capots de transistor sont magnétiques) et en général tous les matériaux pouvant comporter des impuretés magnétiques (laiton, etc.).

La cellule étant ainsi soustraite à la majeure partie du champ terrestre et aux différentes causes de perturbation et d'élargissement des niveaux d'énergie atomiques, il s'agit de lui appliquer un champ statique \vec{H}_0 d'amplitude et de direction bien définies. Pour cela, on commence par compenser le champ résiduel de l'ordre du μ G à l'aide d'un jeu de bobines de Helmholtz permettant de créer des champs dans les trois directions de l'espace. Cette compensation s'effectue en étudiant les

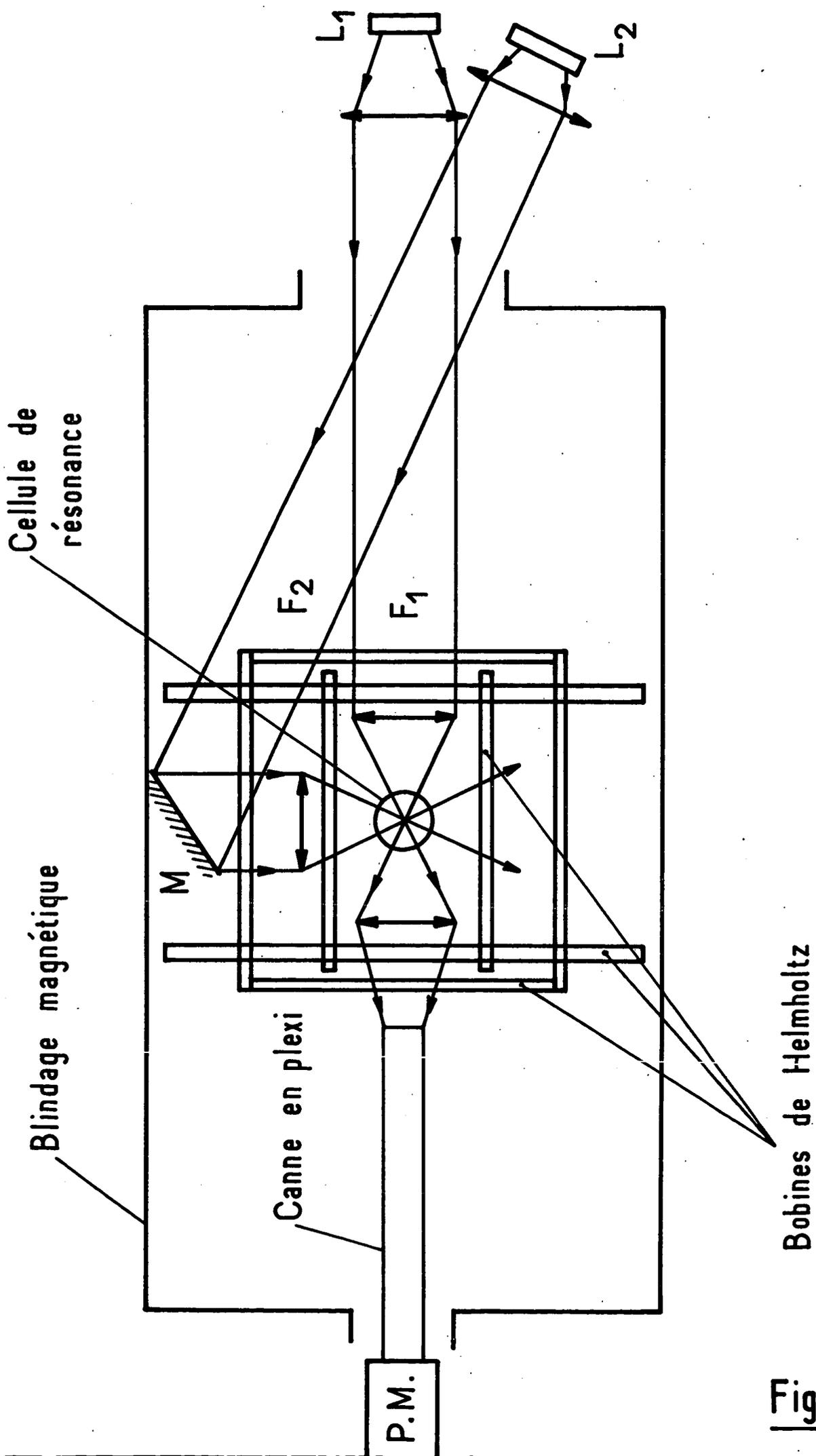


Fig - 39

signaux de croisement de niveaux atomiques en champ nul, suivant une procédure expliquée en détail dans la thèse de 3e cycle de N. POLONSKY (⁴⁷). Une fois le champ résiduel compensé, on peut créer, à l'aide d'un second jeu de bobines de Helmholtz, un champ statique de direction quelconque. Ce champ ne doit pas être trop important (inférieur à quelques dizaines de milligauss), afin de ne pas saturer le blindage. Il est étalonné par la mesure de la position des raies de résonance magnétique obtenues à l'aide d'un champ oscillant de fréquence variable. Son homogénéité au niveau de la cellule de résonance est de l'ordre de 10^{-3} : ainsi, dès que le champ dépasse le milligauss, l'inhomogénéité due aux bobines l'emporte sur l'inhomogénéité résiduelle intrinsèque au blindage. De toutes façons, les gradients de champ statique restent très faibles et sont moyennés par le mouvement des atomes dans la cellule, si bien qu'ils ne constituent pas une cause d'élargissement des raies atomiques.

3) Le réglage des champs de radiofréquence

Ils sont également produits par des bobines de Helmholtz. Ces bobines sont alimentées par un générateur T.B.F. délivrant un courant dont la fréquence peut varier suivant les expériences de quelques dizaines à quelques milliers de cycles par seconde. Ce courant est amplifié suffisamment pour que l'intensité relative ω_1/ω du champ de radiofréquence puisse atteindre des valeurs de l'ordre de quelques unités. Avec les rapports gyromagnétiques signalés plus haut, les amplitudes correspondantes sont, pour un champ de 1 KHz, de l'ordre du gauss pour les isotopes du mercure, du milligauss seulement pour les alcalins. Le calibrage du champ s'effectue par la mesure des fréquences de nutation des transitoires de résonance magnétique.

Un réglage précis de la polarisation du champ est, comme nous l'avons signalé plus haut, indispensable : si l'on veut réaliser une polarisation linéaire, on ne peut se contenter du champ produit par une seule paire de bobines de Helmholtz : en effet, des courants de Foucault parasites, induits dans les différents éléments métalliques du montage créent une distorsion du champ de radiofréquence au niveau de la cellule de résonance. On peut réduire ces effets en évitant l'utilisation de pièces de métal dans le montage, constitué principalement d'éléments en plexiglass. On ne peut cependant les éliminer totalement, des courants induits importants subsistant dans le blindage magnétique ou dans les différentes bobines du montage qui s'influencent mutuellement : le champ de radiofréquence résultant est généralement elliptique. Pour supprimer cette ellipticité, typiquement de l'ordre de quelques pour cents, on crée de petits champs de compensation de même fréquence, d'amplitude et de phase con-

venables à l'aide d'enroulements prévus à cet effet sur des bobines de Helmholtz d'axe perpendiculaire à celui des bobines créant le champ principal. Le réglage de ces compensations repose sur le fait qu'en présence d'un champ de radiofréquence elliptique et non plus linéaire, la dégénérescence des niveaux d'énergie de l'atome habillé en champ nul est levée (cf § I-D-3) et la résonance d'effet Hanle subit en conséquence des modifications importantes (déplacement ou élargissement). L'étude de cette résonance permet, suivant une technique décrite par ailleurs (⁴⁸), de régler avec précision la linéarité du champ habillant

L'étude de certains effets (§ V-C) nécessite l'utilisation d'un champ de radiofréquence tournant. Ce champ est alors produit par deux paires de bobines à angle droit alimentées par des courants en quadrature. Le réglage précis du champ tournant s'effectue en optimisant le signal de résonance magnétique observé dans le champ $H_0 = -\omega/\gamma_\alpha$ et en annulant la résonance qui apparaît dans le champ opposé.

REMARQUE :

Le réglage du champ tournant est plus délicat sur le Rb que sur le mercure. En effet, les facteurs de Landé des deux niveaux hyperfins étant sensiblement opposés, il apparaît, même en champ purement σ_+ , deux résonances magnétiques au voisinage des champs $\omega_0 = +\omega$ et $\omega_0 = -\omega$ associées respectivement à chacun des deux niveaux hyperfins. Il semble donc que l'on ne puisse se servir de la résonance $\omega_0 = -\omega$ pour annuler la composante σ_- et régler le champ en polarisation σ_+ . En fait, les facteurs de Landé des deux niveaux ne sont pas rigoureusement opposés et diffèrent d'environ $3.5 \cdot 10^{-3}$ si l'on tient compte du magnétisme nucléaire. Ainsi les résonances des deux niveaux apparaissent dans des champs légèrement différents en valeur absolue; la résonance magnétique induite par la composante σ_+ du champ dans le niveau hyperfin inférieur et celle qui est induite par la composante σ_- dans le niveau supérieur sont complètement séparées si la fréquence du champ est suffisante pour que la condition $\Gamma/\omega < 3.5 \cdot 10^{-3}$ soit réalisée. Il suffit d'effectuer l'expérience à une fréquence de 1.500 Hz pour qu'il en soit ainsi et qu'on puisse facilement régler le caractère circulaire du champ.

4) Conclusion : "performances" du dispositif expérimental

Le montage que nous venons de décrire nous a permis, en contrôlant parfaitement les caractéristiques de tous les champs appliqués au système de spin et en réduisant considérablement toutes les causes d'élargissement ou de perturbation des

raies atomiques d'obtenir sur les atomes alcalins des signaux de résonance dont la largeur en champ magnétique correspond à la valeur limite de l'ordre du μG indiquée plus haut : la courbe expérimentale de la figure 40-a représente le signal de croisement de niveaux observé sur ^{87}Rb lorsqu'on balaie H_0 autour de zéro. Le pompage est effectué perpendiculairement à H_0 ; on détecte la composante de l'orientation parallèle au pompage en mesurant directement la lumière absorbée sur le faisceau pompant qui joue ainsi également le rôle de faisceau de détection.

La courbe en dispersion de la figure 40-b représente le signal de résonance paramétrique observé dans les mêmes conditions expérimentales lorsqu'on ajoute parallèlement à H_0 un champ de radiofréquence linéaire $\vec{H}_1 \cos \omega t$ (effet Hanle de l'atome habillé). On observe alors sur le faisceau de pompage la composante modulée à la fréquence du champ (voir formule (V,A,30) dans laquelle on fait $r = 1$). On détecte cette modulation grâce à une amplification sélective et une détection synchrone (on notera la nette amélioration du rapport signal/bruit par rapport à la résonance de la figure 40-a détectée sur un signal statique).

Les raies de résonance que nous venons de décrire sont à notre connaissance les plus fines qui aient été obtenues dans l'état fondamental d'atomes alcalins. Elles nous ont permis, en marge du travail principal décrit dans ce mémoire, de mettre au point un magnétomètre extrêmement sensible (⁹³)(⁹⁴), permettant pratiquement de détecter autour du champ nul des champs magnétiques de l'ordre de 10^{-9} G. Cette sensibilité correspond en effet à la largeur de la raie de résonance détectée (de l'ordre de 10^{-6} G) divisée par son rapport signal/bruit (de l'ordre de $3 \cdot 10^3$ dans les conditions expérimentales optimales; voir figure 40-b). Il nous a été possible de mesurer à l'aide de ce magnétomètre des champs magnétiques extrêmement faibles tels que ceux que produisent des spins nucléaires de ^3He orientés sous faible pression en phase gazeuse (⁹⁵). C'est également à l'aide de ce magnétomètre que nous avons pu étudier avec précision les caractéristiques du blindage magnétique lui-même (ordre de grandeur du bruit et du champ résiduel).

Le montage relatif au pompage optique du mercure permettrait de détecter de façon analogue des champs magnétiques qui, quoique d'un ordre mille fois supérieur, restent relativement très faibles (10^{-6} G).

On conçoit aisément qu'avec une détection aussi sensible, il nous ait été possible de mettre clairement en évidence, comme nous le montrons aux chapitres suivants, des effets de "renormalisation" du système atomique par des champs habillants dont l'amplitude absolue est finalement très faible (de l'ordre du milligauss seulement pour les alcalins).

Nous décrirons, au chapitre IX, les expériences réalisées sur les isotopes impairs du mercure qui illustrent l'ensemble des propriétés physiques d'un niveau atomique couplé indépendamment des autres à un champ de radiofréquence : nous y étudierons expérimentalement les divers types de résonance de l'atome habillé ainsi que les propriétés magnétiques de cet atome en champ statique faible. Les deux derniers chapitres seront consacrés à la description des expériences qui mettent en jeu plusieurs niveaux d'énergie simultanément habillés par le champ de radiofréquence : collisions d'échange entre atomes alcalins habillés, différents ou identiques (chapitre X) et spectre hyperfin d'atomes ^{87}Rb habillés (étude expérimentale de la position des résonances, de leur intensité et de leur largeur, chapitre XI).

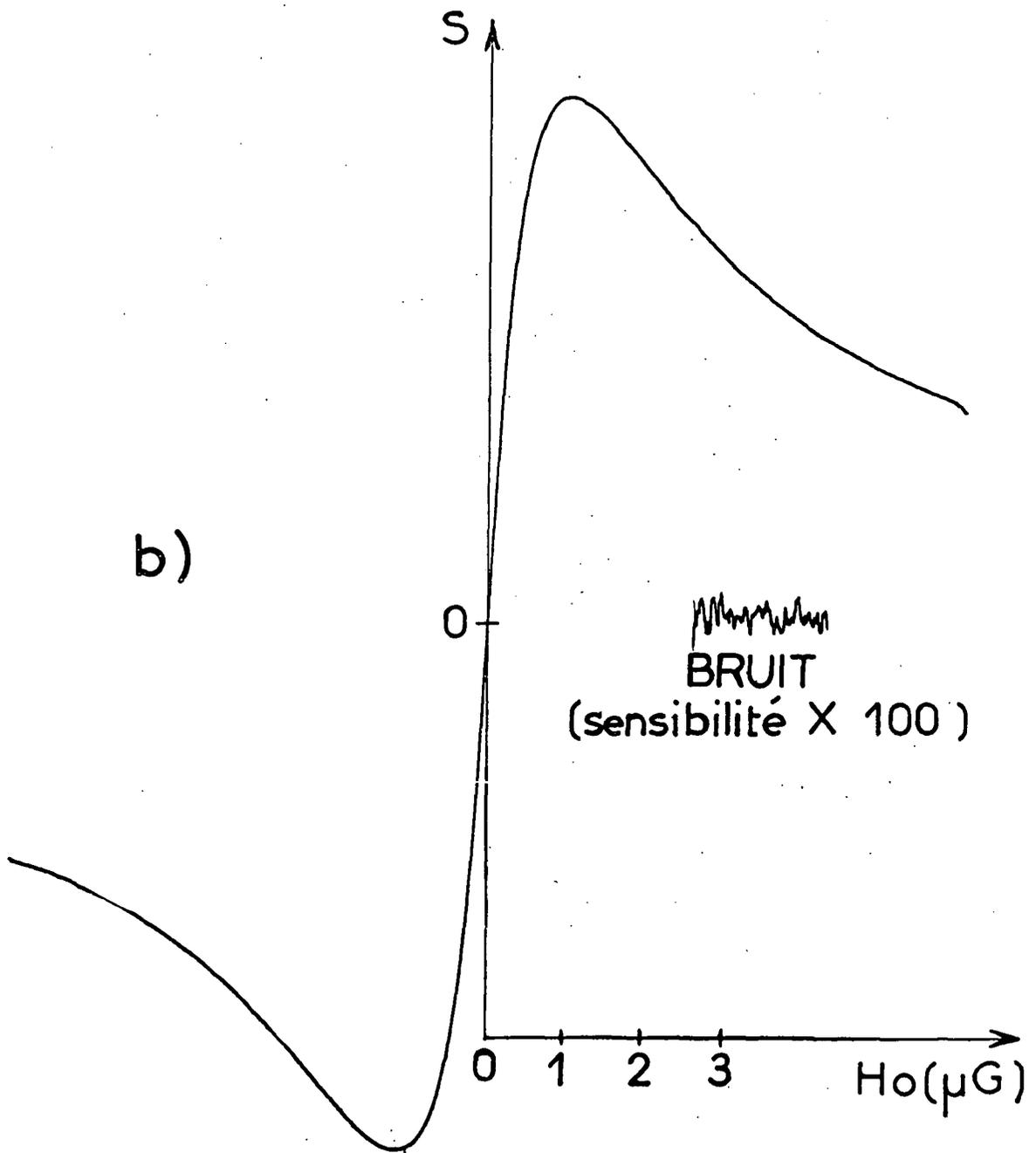
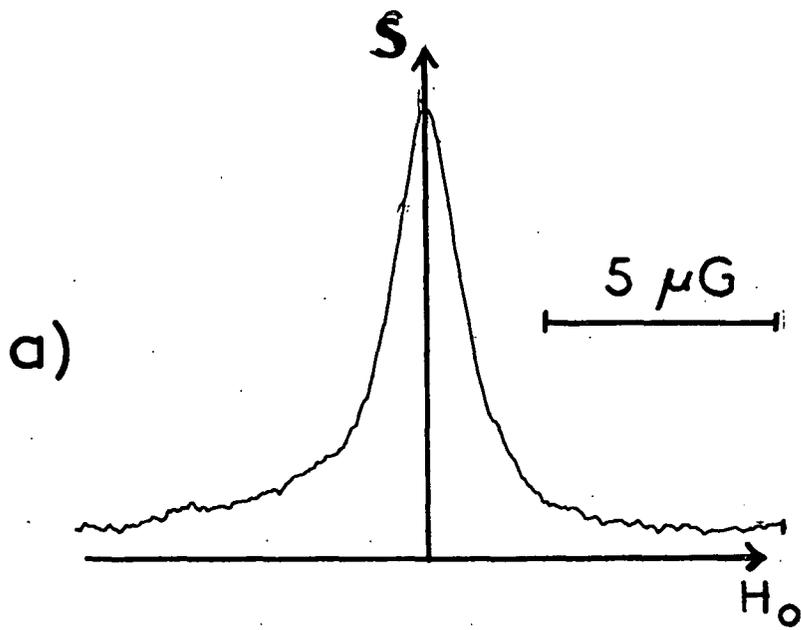


Fig 40

C H A P I T R E I X

ETUDE EXPERIMENTALE DES PROPRIETES PHYSIQUES DES ISOTOPES
IMPAIRS DU MERCURE HABILLES PAR UN CHAMP DE RADIOFREQUENCE

Les expériences décrites dans ce chapitre ont été réalisées dans le cadre de thèses de troisième cycle qui ont, au Laboratoire de l'E.N.S., précédé ce travail (thèses de 3e cycle de N. POLONSKY (⁴⁷) et de l'auteur (²²)) ont été effectuées dans le même temps (thèses de 3e cycle de C. LANDRE (⁴⁸) et de M. LE DOURNEUF (⁵²)). Ces expériences ont été réalisées dans l'état fondamental des isotopes impairs du mercure. Elles sont très simples dans leur principe et mettent clairement en évidence les principales propriétés physiques de l'atome habillé que nous avons étudiées dans la partie théorique de ce travail. Il nous a donc paru utile de les rappeler ici, quitte à n'en donner qu'une description rapide et à renvoyer le lecteur, pour plus de précisions, aux nombreuses publications qui s'y rapportent. Ce chapitre comprendra deux parties : nous commencerons par une étude expérimentale des divers types de signaux résonnants observés sur l'atome habillé (résonances d'anticroisement et de croisement de niveaux; résonances en pompage modulé) (§ IX-A); puis nous décrirons l'ensemble des expériences qui nous ont permis d'étudier les propriétés magnétiques de l'atome habillé en champ statique faible (§ IX-B).

IX-A. ETUDE EXPERIMENTALE DES DIVERS TYPES DE RESONANCES DE L'ATOME HABILLE

Nous avons représenté sur la figure 41, pour diverses polarisations du champ habillant, les schémas des dispositifs expérimentaux permettant de détecter n'importe quel type de résonance observable sur l'atome habillé : en orientation, sur ¹⁹⁹Hg, un faisceau lumineux F, polarisé circulairement, réalise un pompage longitudinal (figure 41-a,b et c) ou transversal (figure 41-d,e,f) suivant que l'on cherche à détecter les résonances d'anticroisement (§ IX-A-1) ou les résonances de cohérence (§ IX-A-2). En alignement, sur ²⁰¹Hg, on utilisera simplement un faisceau de lumière polarisé linéairement (figure 41-g) pour exciter les deux types de résonance (§ IX-A-3). Enfin, en faisant passer le faisceau successivement à travers un polariseur tournant à la fréquen-

ce $\Omega/2$ et une lame quart d'onde (figure 41-h), on obtiendra un pompage modulé en polarisation à la fréquence Ω , alternativement σ_+ et σ_- , à l'aide duquel on pourra explorer le diagramme d'énergie de l'atome habillé (§ IX-A-4).

Dans tous les cas, les résonances pourront être détectées sur la lumière transmise par le faisceau pompant qui comporte en général des composantes statiques et modulées; on pourra également détecter l'intensité totale de la lumière de fluorescence réémise par l'état excité dans une direction donnée, qui est simplement reliée aux observables de l'état fondamental (pour ^{199}Hg pompé sur la composante hyperfine $F = 1/2$ de l'état excité, la lumière de fluorescence est strictement proportionnelle à la lumière absorbée par les atomes sur le faisceau de pompage ⁽⁴⁶⁾).

1) Résonances d'anticroisement de l'atome habillé en orientation

a) Transitions à plusieurs quanta observées sur ^{199}Hg

La résonance la plus simple, citée pour mémoire, est la résonance magnétique ordinaire en champ tournant correspondant au dispositif de la figure 41-a. En présence d'un champ de radiofréquence linéaire en polarisation σ (figure 41-b), on observe, en plus de cette résonance, le spectre complet des transitions à plusieurs quanta reproduit sur la figure 42. Chacune des courbes expérimentales, qui représente les variations de la lumière de fluorescence réémise par la cellule, correspond à une valeur différente de l'intensité de la radiofréquence H_1 , repérée par le voltage V_1 aux bornes des bobines de radiofréquence. On constate que pour les valeurs les plus faibles de cette intensité, la seule résonance visible est la résonance $\omega_0 = \omega$. Lorsqu'on augmente H_1 , cette résonance s'élargit et subit un déplacement de Bloch-Siegert vers les faibles valeurs de H_0 alors qu'il apparaît une nouvelle résonance pour $\omega_0 = 3\omega \dots$ Pour des valeurs croissantes de l'intensité de la radiofréquence, on constate l'apparition successive de toutes les résonances du spectre impair $\omega_0 = (2p+1)\omega$ qui subissent des élargissements et des déplacements radiatifs importants. Toutes les caractéristiques de ces résonances sont bien conformes aux prévisions théoriques résumées dans la formule (I,D,3). Nous ne signalons ici ces résonances bien connues que pour opposer leurs propriétés à celles des résonances de cohérence décrites plus loin (§ IX-A-2).

b) Résonance Raman en champ nul ⁽⁵⁰⁾⁽⁵²⁾

Plus nouvelle et plus intéressante est la résonance d'anticroisement apparaissant en champ nul dans le cas où la radiofréquence tourne dans le plan du champ statique (figure 41-c). Nous avons montré (§ I-D-3) que cette résonance peut s'interpréter comme un effet Raman impliquant l'absorption et l'émission induite simultanée d'un photon de radiofréquence par l'atome.

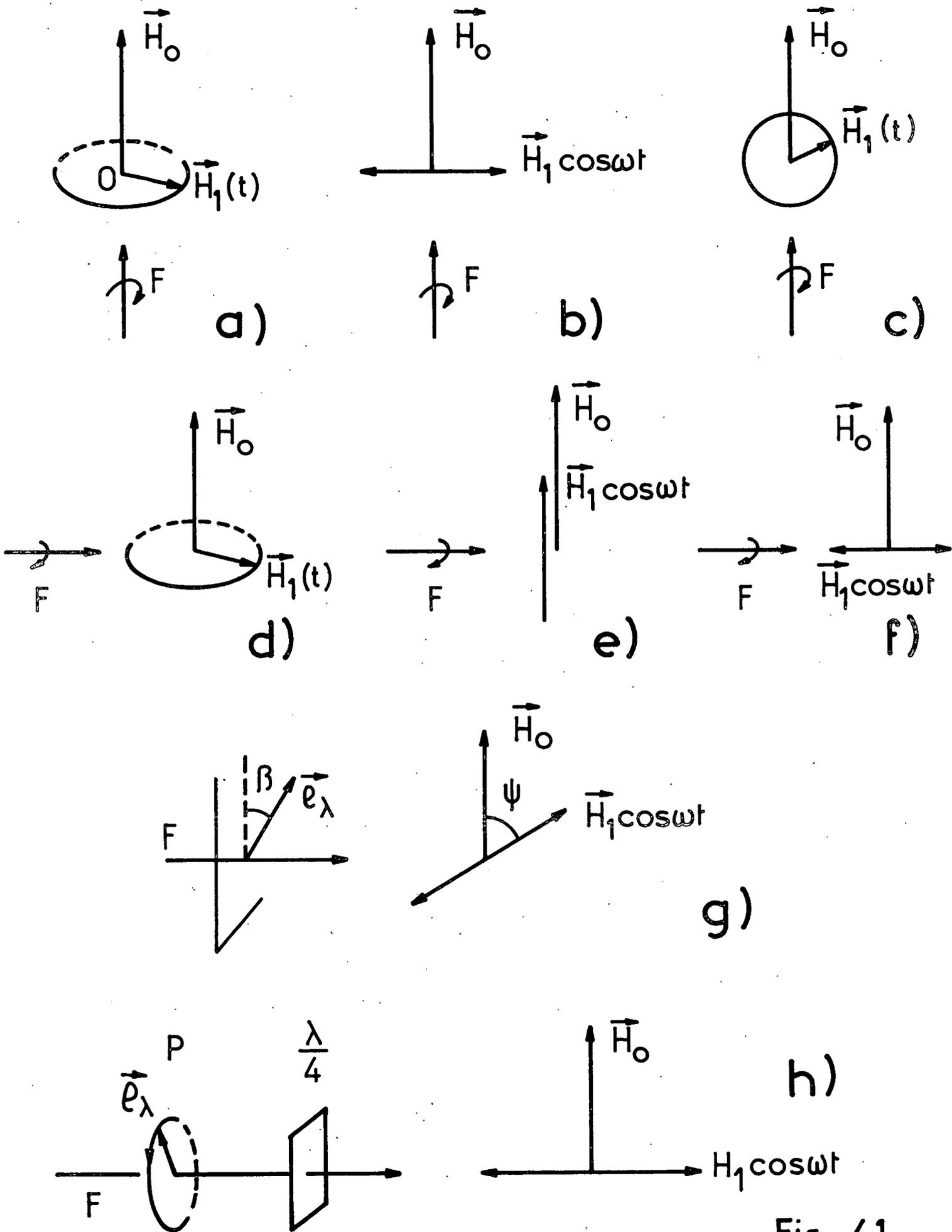
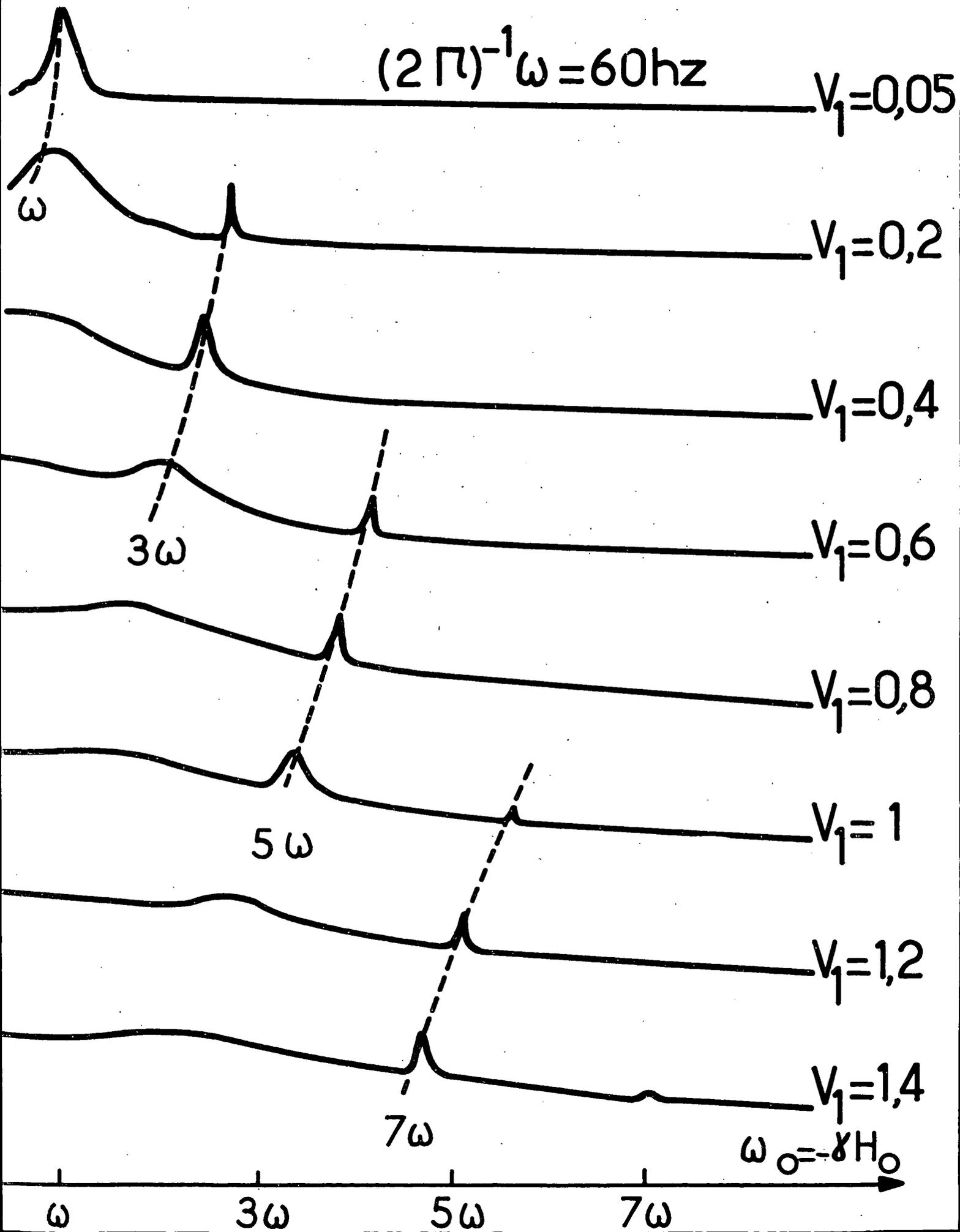


Fig. 41

Fig_42



La figure 43-a représente un réseau de courbes de résonances observées en champ nul pour des valeurs croissantes de l'intensité du champ tournant (le signal est détecté sur la lumière de fluorescence L_F). La largeur L (en Hz) de cette résonance, qui est associée à un anticroisement du deuxième ordre, doit être donnée par la relation suivante (cf. § I-D-1) :

$$L = 2 \sqrt{\Gamma^2 + A^2} \quad \text{avec } A = \frac{\omega_1^2}{2\omega} \quad (\text{force de l'anti-croisement en champ nul})$$

Nous avons reporté sur la figure 43-b le carré de la largeur en fonction de $(\frac{\omega_1}{\omega})^4$. Conformément aux prévisions théoriques, on trouve une droite dont l'ordonnée à l'origine dépend de la largeur naturelle du niveau atomique.

Pour une étude complète des diverses propriétés de cette résonance en champ nul, on se reportera aux références ⁽⁵⁰⁾(⁵²).

2) Résonances de cohérence de l'atome habillé observées en orientation

Si, dans les expériences précédentes, on tourne d'un angle $\pi/2$ le faisceau lumineux, on obtient un pompage purement transversal qui n'introduit plus aucune différence de population entre les sous-niveaux atomiques $+1/2$ et $-1/2$. Quelle que soit la polarisation de la radiofréquence, les résonances d'anticroisement ne sont dans ces conditions plus détectables. Les diverses résonances de cohérence, correspondant aux polarisations σ_+ , π et σ_- du champ habillant sont alors seules observables sur les modulations de la lumière transmise par le faisceau pompant.

a) Champ de radiofréquence en polarisation σ_+ ⁽⁵³⁾(⁵²) (dispositif expérimental de la figure 41-d)

On ne détecte alors, comme nous l'avons montré au § IV-C-1, que les deux résonances qui, à faible niveau de radiofréquence, tendent vers $\omega_0 = 0$ et $\omega_0 = 2\omega$. La détection transversale réalisée sur le faisceau de pompage ne permet d'observer qu'un signal statique et un signal modulé à 2ω . La figure 44-a présente l'ensemble des deux résonances détectées sur la modulation 2ω pour des amplitudes croissantes de la radiofréquence. On constate que les deux résonances, d'intensités égales, se rapprochent l'une de l'autre, puis viennent se confondre et disparaître pour $\omega_1 = \omega$. La position des résonances en fonction de ω_1/ω a été reportée sur la figure 44-b. Les points sont expérimentaux. La courbe qui représente un demi-cercle correspond à la formule théorique (III,A,14) :

$$\omega_0 = \omega \pm \sqrt{\omega^2 - \omega_1^2}$$

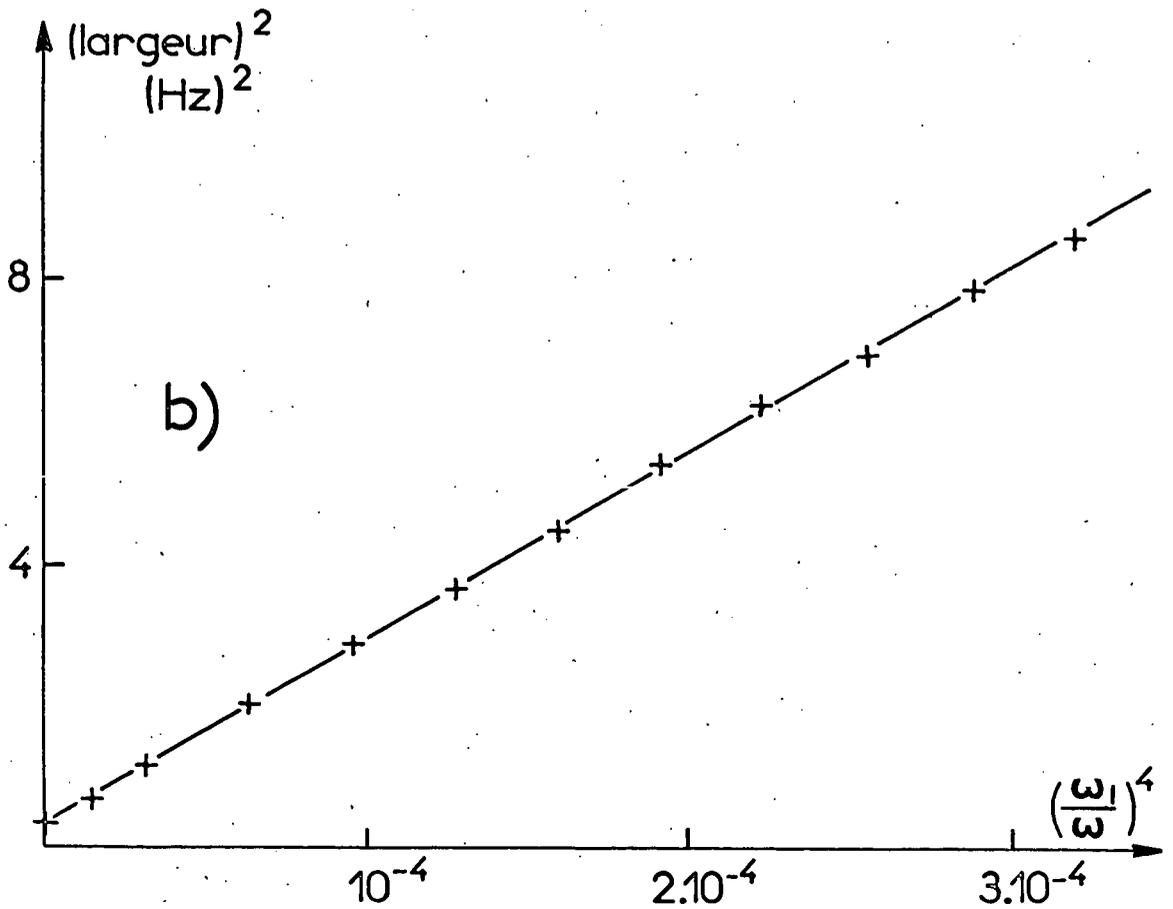
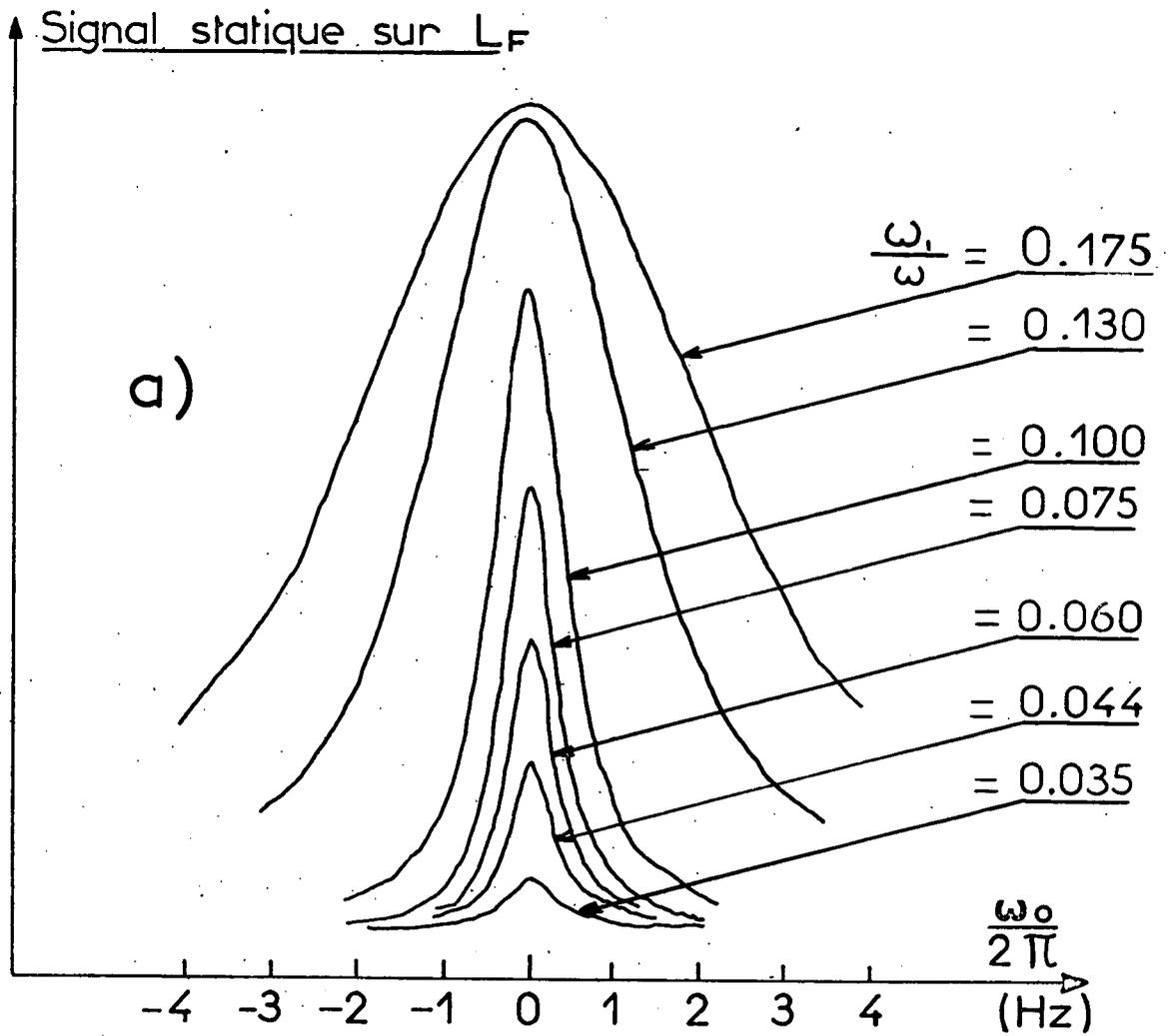
Enfin, sur la figure 44-c, nous avons reporté l'intensité des résonances en fonction de ω_1/ω telles qu'on la déduit de la formule théorique (IV,C,5) (courbe en traits pleins); les points expérimentaux correspondent aux résultats des mesures. On constate dans tous les cas un excellent accord entre la théorie et l'expérience.

REMARQUE :

Les résonances de la figure 44-a ne subissent un élargissement notable que lorsqu'elles se sont déjà considérablement déplacées. Cet élargissement, lié à la variation de la pente des niveaux de l'atome habillé est d'une nature totalement différente de celui des résonances d'anticroisement qui subissent, comme le montre la figure 42, une déformation beaucoup plus nette et rapide lorsque l'intensité de la radiofréquence augmente (cf. discussion du § I-D-3-d).

b) Champ de radiofréquence en polarisation π (⁴⁷)

On observe à l'aide du dispositif schématisé sur la figure 41-e les résonances de cohérence de l'atome habillé connues sous le nom de résonances paramétriques. D'après les résultats du § IV-C-2, toutes les modulations de la lumière absorbée sur le faisceau de pompage doivent subir des variations résonnantes au voisinage de tous les champs $\omega_0 = s\omega$ (voir formule (IV,C,7)). Nous avons représenté sur les figures 45-a et 45-b deux signaux en quadrature correspondant à la résonance $\omega_0 = \omega$ détectés sur la modulation ω . Conformément à (IV,C,7), ces deux signaux ont bien la forme de courbes d'absorption et de dispersion de Lorentz. Sur la figure 45-c a été reportée l'intensité des signaux en fonction de ω_1/ω pour la résonance $\omega_0 = \omega$ et diverses modulations détectées. Les courbes théoriques de la figure correspondent aux produits des fonctions de Bessel $J_s(\frac{\omega_1}{\omega}) J_{s\pm s}(\frac{\omega_1}{\omega})$ de la formule (IV,C,7) avec $s = 1$ et $s' = 1, 3$ et 5 ; les points sont expérimentaux : on constate que l'accord entre l'expérience et la théorie est satisfaisant. Enfin, il a été vérifié que les résonances ne subissent aucun déplacement ni élargissement avec l'intensité de la radiofréquence : les points expérimentaux de la figure 45-d représentent en effet la largeur mesurée des raies qui est bien indépendante de ω_1/ω . (Notons que si \vec{H}_1 était perpendiculaire à \vec{H}_0 , la largeur de ces courbes de résonance serait de l'ordre de $\omega_1/2\pi$, soit, pour la valeur maximum de ω_1 indiquée sur la figure 45-d, 4000 Hz au lieu de 5 Hz environ !).



Fig_43

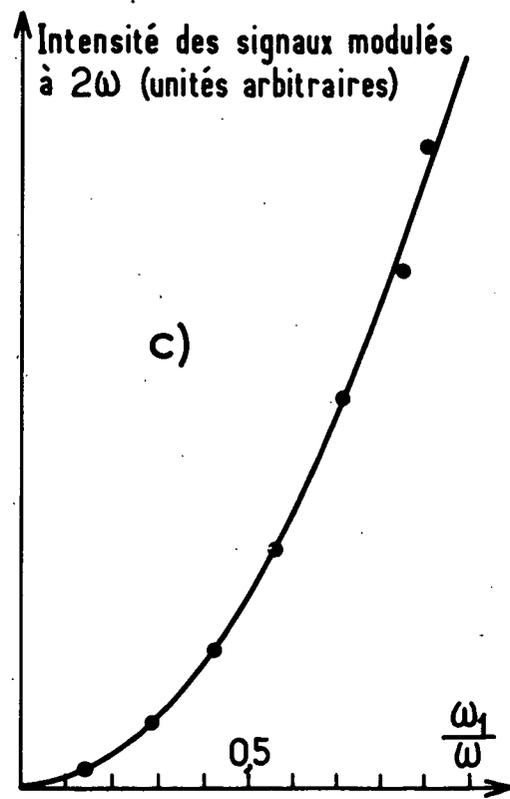
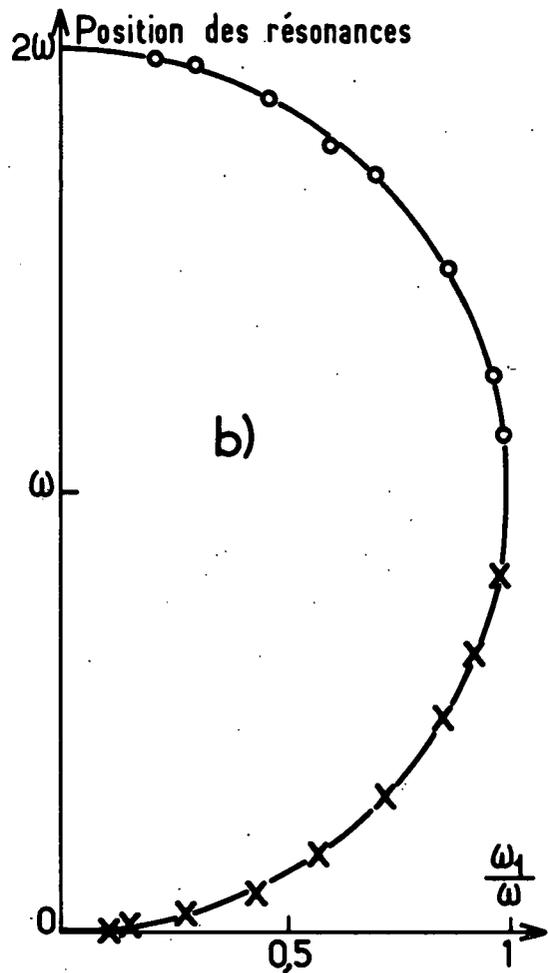
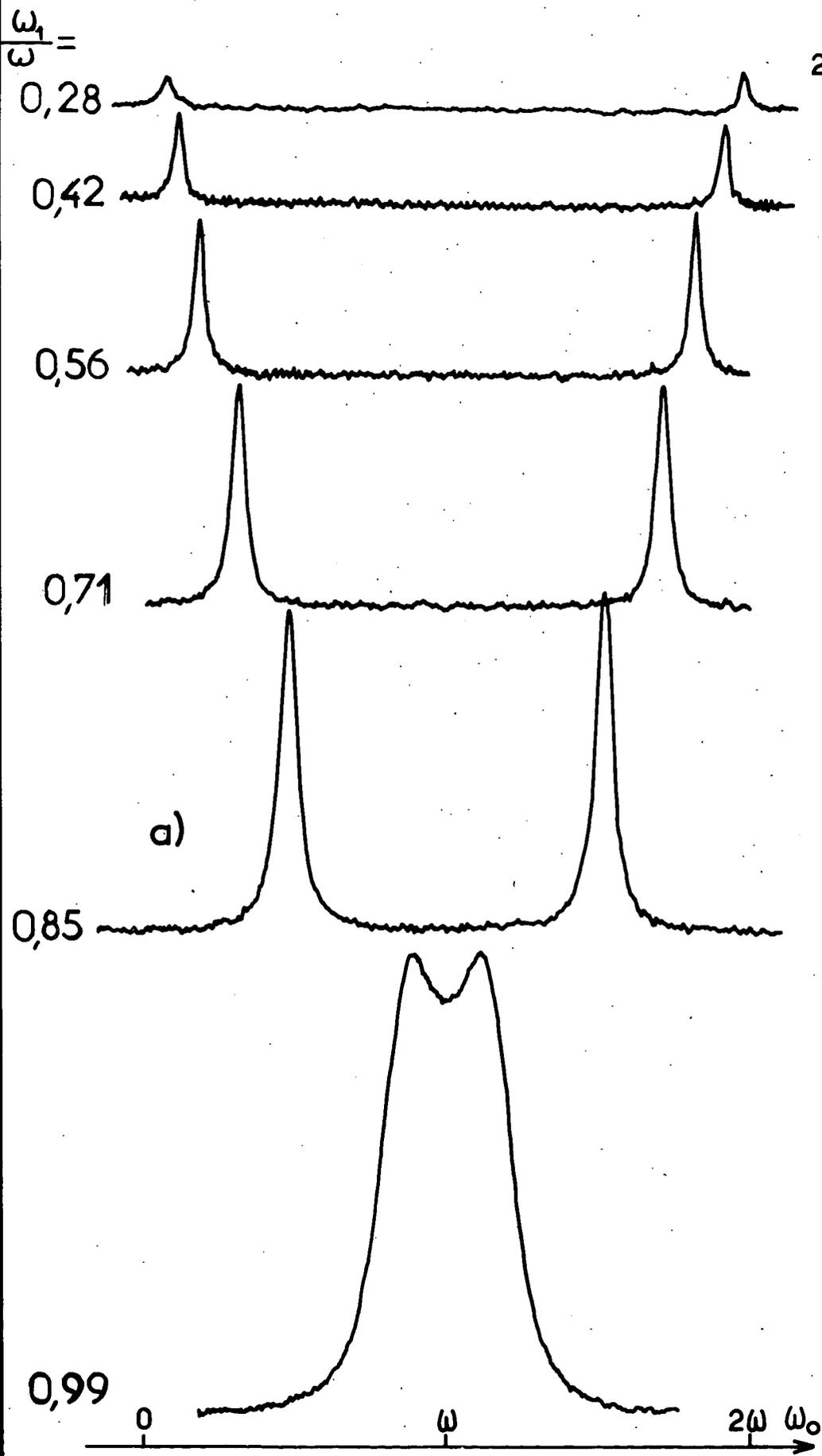


Fig. 44

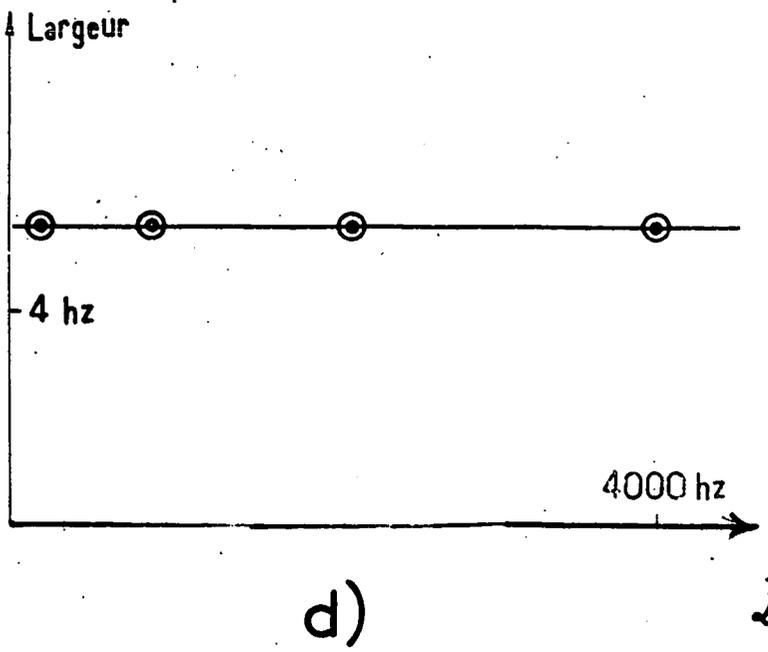
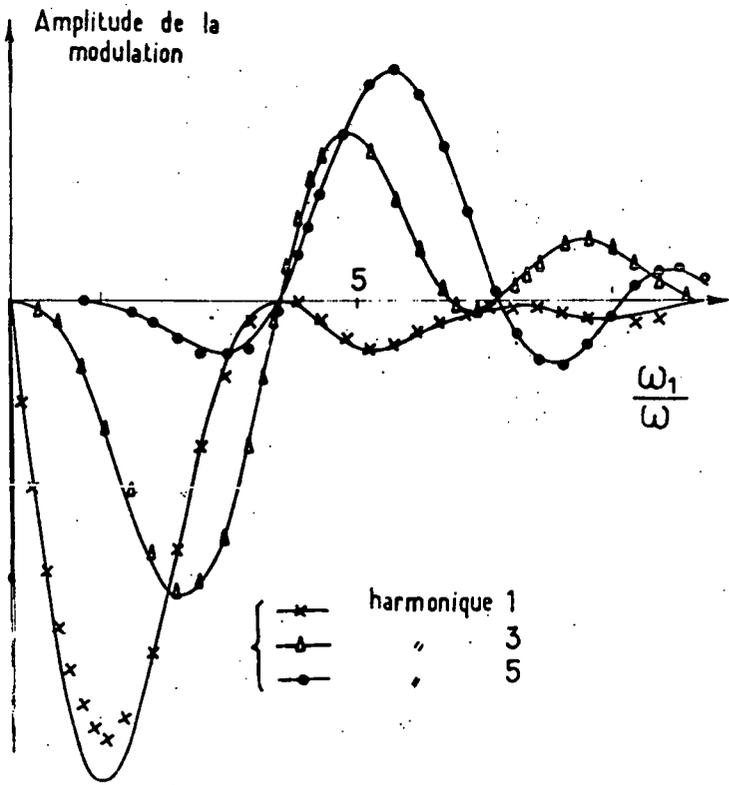
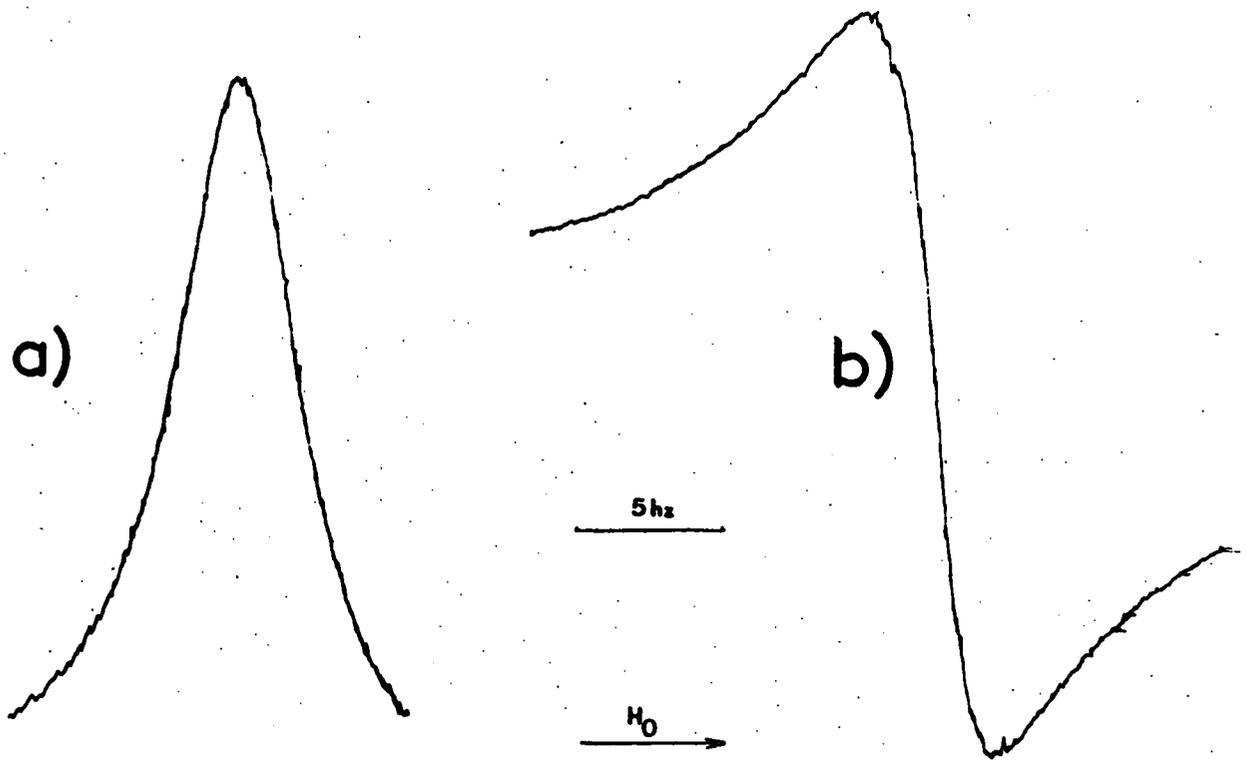


Fig.45

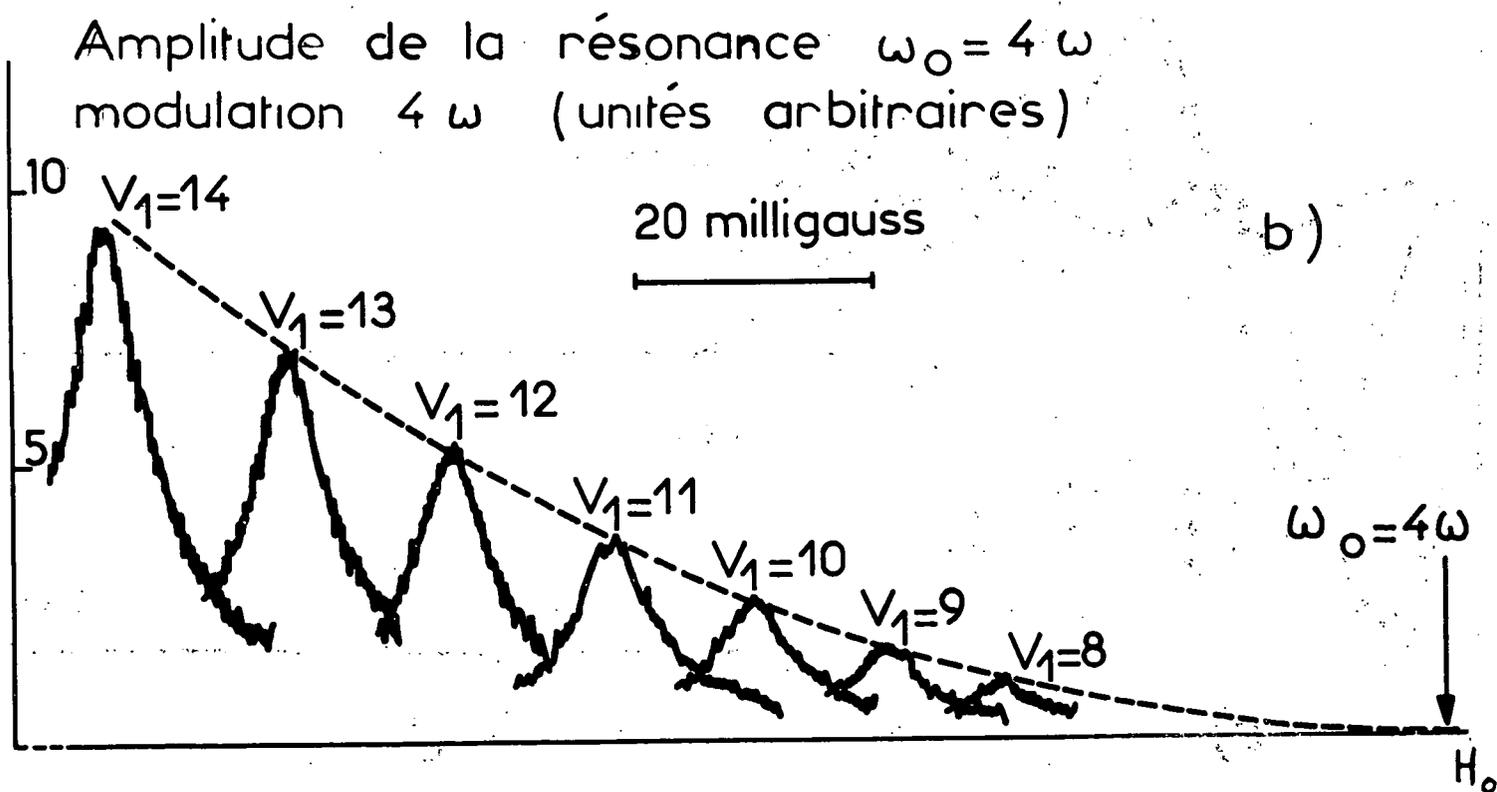
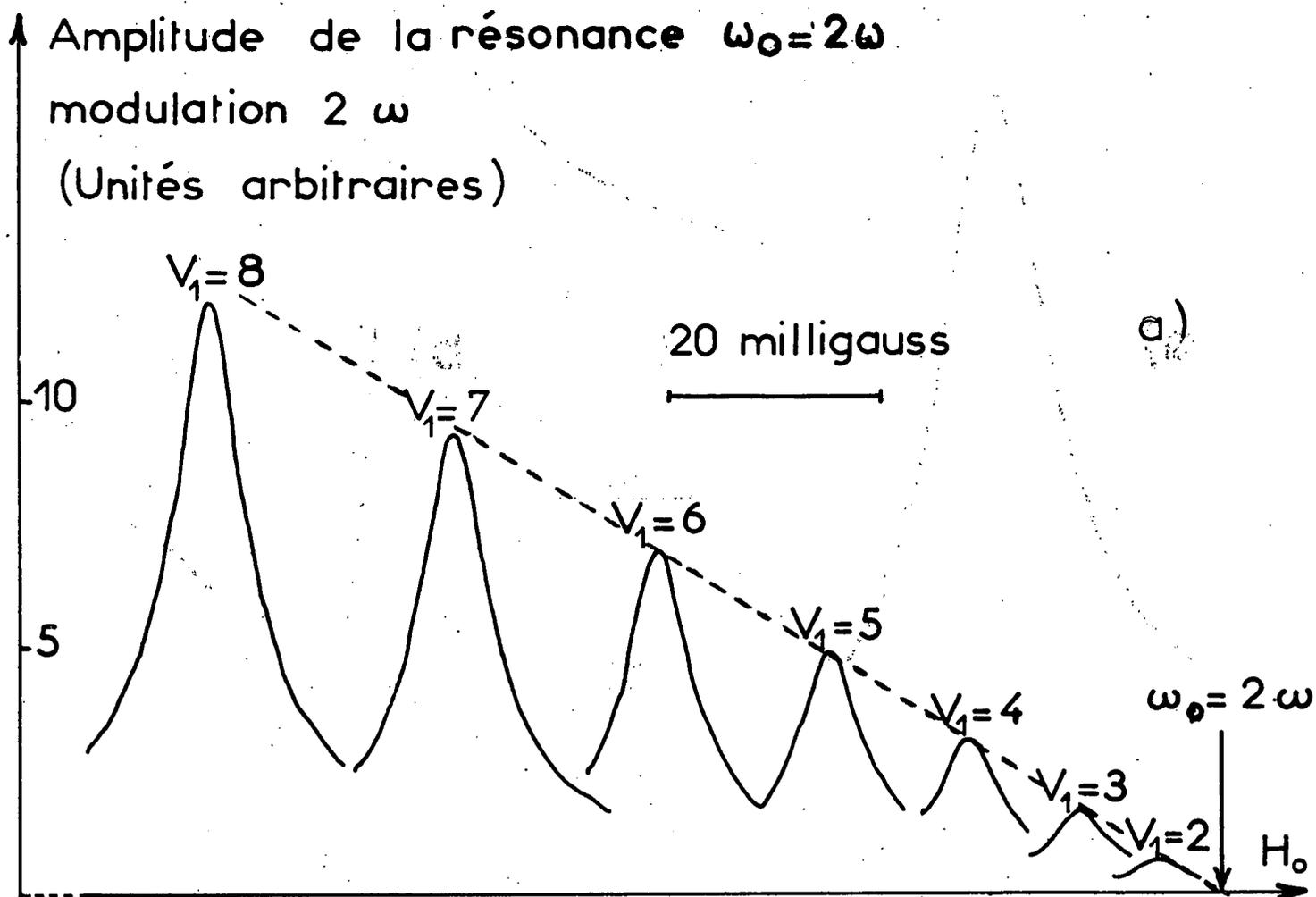


Fig. 46

REMARQUE :

Rappelons que la figure 40-b représente une résonance paramétrique $s = 0$, $s' = 1$ de même nature observée non sur ^{199}Hg , mais sur ^{87}Rb . La différence essentielle avec les résonances décrites précédemment réside dans la largeur de cette raie, environ mille fois plus fine : c'est, comme nous l'avons déjà indiqué, la détection de cette résonance en champ nul qui nous a permis de mettre au point un magnétomètre extrêmement sensible.

c) Champ de radiofréquence en polarisation σ (figure 41-f)

Si le champ habillant est en polarisation σ , on doit détecter sur le faisceau pompant des signaux formant un spectre pair de résonances, complémentaires du spectre impair de transitions à plusieurs quanta observé en pompage longitudinal avec la même polarisation de la radiofréquence (cf. figure 42). Comme on détecte sur le faisceau pompant une composante transversale de l'orientation, on n'observera dans le signal, d'après les résultats du § IV-C-3, que des modulations aux harmoniques pairs de la radiofréquence. Les diverses résonances doivent subir, sans élargissement notable à faible niveau de radiofréquence, des déplacements radiatifs en ω_1^2 vers les champs faibles : la figure 46-a représente la résonance $\omega_0 = 2\omega$ détectée sur la modulation 2ω pour des valeurs croissantes de l'amplitude de la radiofréquence repérées par le voltage V_1 aux bornes des bobines de radiofréquence. On constate que les sommets des diverses résonances sont alignés : en effet, déplacements et intensités de la résonance, tous deux en ω_1^2 (voir formule (IV,C,11) dans laquelle on fait $p = 1$ et $s' = 2$) sont alors proportionnels. La figure 46-b représente la résonance $\omega_0 = 4\omega$ détectée sur la modulation 4ω . Les sommets des résonances correspondant à des valeurs différentes de ω_1 se placent à présent sur une parabole, l'intensité en ω_1^4 des signaux variant comme le carré de leur déplacement (voir formule (IV,C,11) dans laquelle on prend $p = 2$ et $s' = 4$).

Toutes les propriétés de ces résonances ont été étudiées en détail par ailleurs (²²) et sont conformes aux prévisions théoriques du § IV-C-3.

REMARQUE :

La résonance en champ nul ($p = 0$) qui apparaît pour cette polarisation de la radiofréquence possède des caractéristiques intéressantes et sera étudiée plus loin (effet Hanle de l'atome habillé; § IX-B-1-c).

3) Les résonances de l'atome habillé en alignement (^{201}Hg) (21)(22)

Le schéma du dispositif expérimental est représenté sur la figure 41-g. Le faisceau de pompage se propage dans une direction perpendiculaire au champ statique et est polarisé linéairement dans une direction \vec{e}_λ faisant un angle β avec celle de \vec{H}_0 . Il introduit donc dans la vapeur atomique une composante T_0^2 de l'alignement par rapport à la direction \vec{e}_λ . Cette composante se projette en général sur toutes les composantes T_q^2 de l'alignement rapportées à la direction de \vec{H}_0 , si bien que, sauf pour certaines valeurs particulières de β (notamment $\beta = 0$), le pompage possède à la fois un caractère longitudinal et transversal. On obtiendra donc en général un spectre constitué de la superposition des résonances d'anticroisement et des résonances de cohérence de l'atome habillé : la figure 47 représente le spectre détecté sur la modulation 2ω , le signal étant constitué par les variations de l'intensité lumineuse transmise par la cellule. Le champ de radiofréquence est en polarisation σ , parallèle au faisceau de pompage ($\psi = \pi/2$ sur la figure 41-g). L'intensité du champ de radiofréquence est relativement élevée ($\frac{\omega_1}{\omega} = 0.78$); enfin l'angle β vaut 35° . On observe une résonance d'anticroisement $\omega_0 = \omega$ très élargie sur le profil de laquelle on distingue deux résonances beaucoup plus fines au voisinage des champs demi-entiers $\omega_0 = \omega/2$ et $\omega_0 = 3\omega/2$. On voit également apparaître une résonance de "croisement pair" au voisinage du champ $\omega_0 = 2\omega$. On notera les déplacements radiatifs des résonances par rapport aux positions extrapolées par des flèches à $\omega_1 = 0$. On remarquera également l'aspect très différent (largeur, intensité) des résonances d'anticroisement et de croisement qui apparaissent simultanément sur la figure 47 (cf. discussion du § I-D-3-d). Toutes les propriétés (largeurs, déplacement, intensité) des résonances observées en alignement avec un champ habillant en polarisation σ ont été étudiées en détail dans la référence (22) et sont conformes aux prévisions théoriques du § IV-D.

REMARQUE :

Comme nous l'avons montré au chapitre IV, certaines des résonances de cohérence de l'atome habillé peuvent, en alignement, être détectées en pompage purement longitudinal (résonances de croisements de niveaux de 2e espèce). C'est en particulier le cas des résonances du spectre demi-entier dans le cas où le champ de radiofréquence fait un angle ψ différent de 0 et $\pi/2$ avec \vec{H}_0 . Ces résonances ont été récemment observées dans ces conditions au laboratoire, les expériences correspondantes devant faire l'objet d'une publication prochaine (thèse de 3e cycle de G. GRYNBERG) : on a montré notamment que même pour un angle $\beta = 0$ entre \vec{e}_λ et H_0 (pompage purement longitudinal), il subsiste au voisinage du champ $\omega_0 = 3\omega/2$ une résonance dont les proprié-

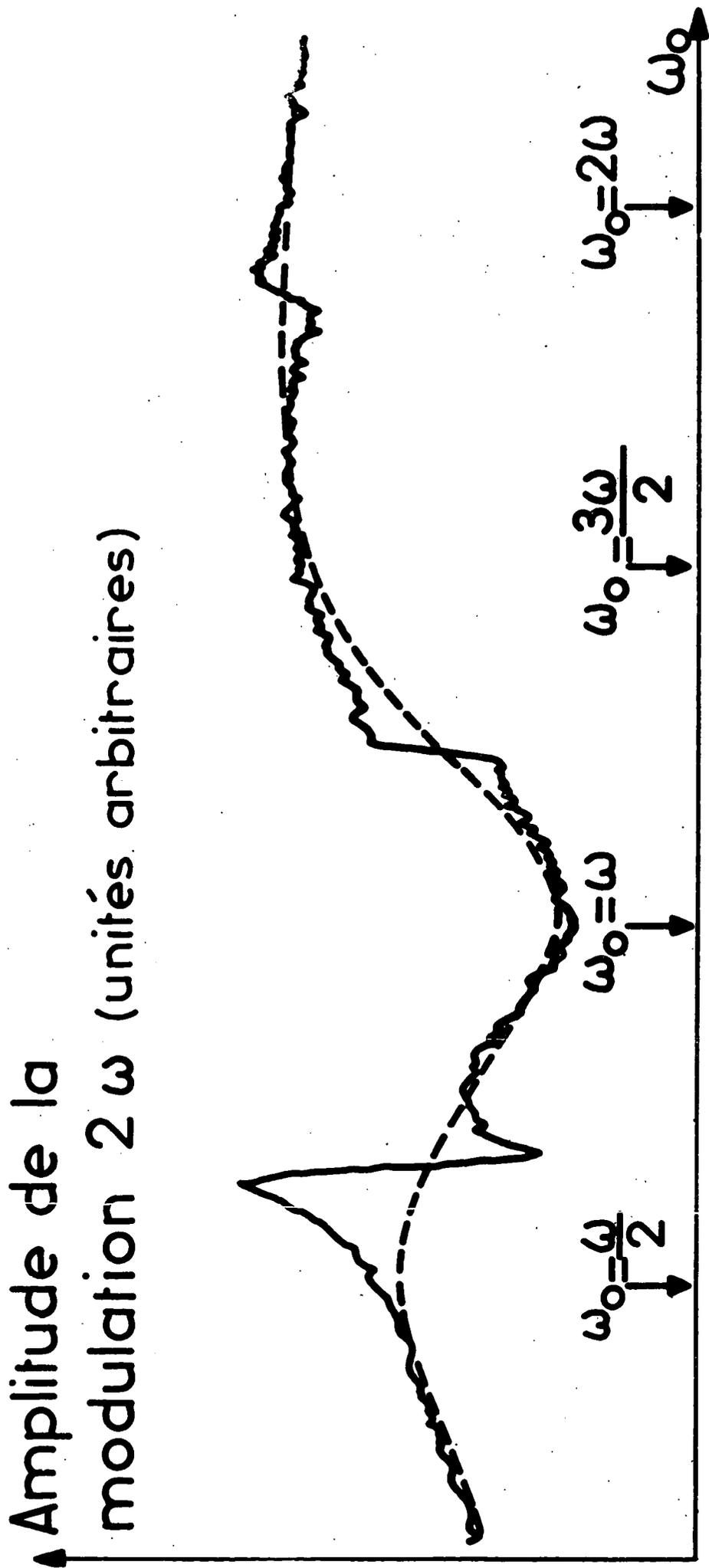


Fig-47

tés sont intermédiaires entre celles des résonances de croisements et d'anticroisements de niveaux ordinaires : elle s'observe en effet dans les conditions où l'on n'excite que des différences de population atomiques dans le système; elle possède par contre toutes les propriétés (largeurs, intensités) des résonances de cohérence (voir remarque de la page 138).

4) Les résonances en pompage modulé : exploration du diagramme d'énergie de l'atome habillé (³³)(⁴⁸)

Les expériences en pompage continu décrites plus haut nous ont fournies des renseignements sur certains points particuliers du diagramme d'énergie de l'atome habillé (croisements et anticroisements). Il est possible, par une expérience en pompage transversal modulé, de déterminer ce diagramme dans sa totalité. Le principe de l'expérience a été indiqué au § II-D-2 : le pompage modulé introduit dans la vapeur atomique des observables oscillant à la fréquence de modulation $\Omega/2\pi$, qui subissent des variations résonnantes lorsque cette fréquence correspond à une fréquence de Bohr de l'atome habillé.

Nous nous sommes limités au cas du pompage de ¹⁹⁹Hg pour un champ de radiofréquence en polarisation σ . Le schéma du montage est représenté sur la figure 41-h. Les signaux, détectés sur la lumière transmise ou de fluorescence, présentent une composante modulée à $\frac{2\Omega}{2\pi}$. En effet, l'aimantation transversale parallèle au faisceau possède une composante à la fréquence $\Omega/2\pi$; la polarisation du faisceau oscillant à la même fréquence, il est facile de voir que le signal de détection proportionnel à l'aimantation transversale induite dans la vapeur et qui dépend également du sens de polarisation (σ_+ ou σ_-) du faisceau sera modulé à $2\Omega/2\pi$.

L'expérience est réalisée de la façon suivante : on fixe l'intensité du couplage ω_1/ω et le champ statique H_0 à des valeurs connues et on détermine la fréquence $\Omega/2\pi$ de résonance en balayant lentement en fréquence le polariseur tournant; une détection synchrone dont le gain ne varie pas avec la fréquence détectée, à chaque instant, la modulation $2\Omega/2\pi$ de la lumière de fluorescence émise par la cellule.

En général, le pompage modulé induit de la cohérence Zeeman entre plusieurs couples de niveaux de l'atome habillé, si bien que plusieurs résonances sont observables à des fréquences différentes, pour une valeur donnée de ω_1/ω et ω_0 . Pour déterminer sans ambiguïté le diagramme d'énergie de l'atome habillé, il est nécessaire d'identifier les couples de niveaux auxquels correspond chaque résonance. La méthode utilisée dans ce but est décrite en détail dans la référence (⁴⁸). Contentons-nous

d'indiquer qu'il suffit de suivre par continuité, en augmentant progressivement ω_1/ω , une résonance identifiée sans ambiguïté pour une valeur faible du couplage. Les points des figures 48-a et b, donnant $E_{+n}(\omega_0, \frac{\omega_1}{\omega})$, correspondent aux résultats expérimentaux obtenus pour différents niveaux d'énergie de l'atome habillé appartenant à des multiplicités associées à des nombres de photons de plus en plus élevés (pour des raisons d'encombrement, nous avons superposé sur la figure 48 les niveaux correspondant aux différentes valeurs de ω_1/ω , et par suite à des valeurs de n extrêmement différentes). Les courbes sont théoriques et correspondent au calcul numérique des niveaux évoqué au § I-C-4. On voit que l'accord entre l'expérience et les prévisions théoriques est excellent et que nous avons pu ainsi explorer dans de grandes limites le diagramme d'énergie de l'atome habillé, donnant à ce concept une base expérimentale très solide. On notera en particulier sur la figure 48 la diminution puis l'annulation et l'inversion de la pente des niveaux d'énergie au voisinage du champ nul, que nous avons étudiés en détail dans la partie théorique de ce travail et dont nous allons décrire à présent les manifestations expérimentales en étudiant les propriétés magnétiques de l'atome habillé en champ faible.

IX-B. ETUDE EXPERIMENTALE DES PROPRIETES MAGNETIQUES DE L'ATOME HABILLE EN CHAMP STATIQUE FAIBLE

Les expériences ont été effectuées sur ^{199}Hg . Nous décrirons successivement celles qui ont été réalisées en présence d'un champ habillant linéaire (§ IX-B-1) puis tournant (§ IX-B-2).

1) Champ de radiofréquence linéaire : modification du facteur de Landé de l'atome habillé

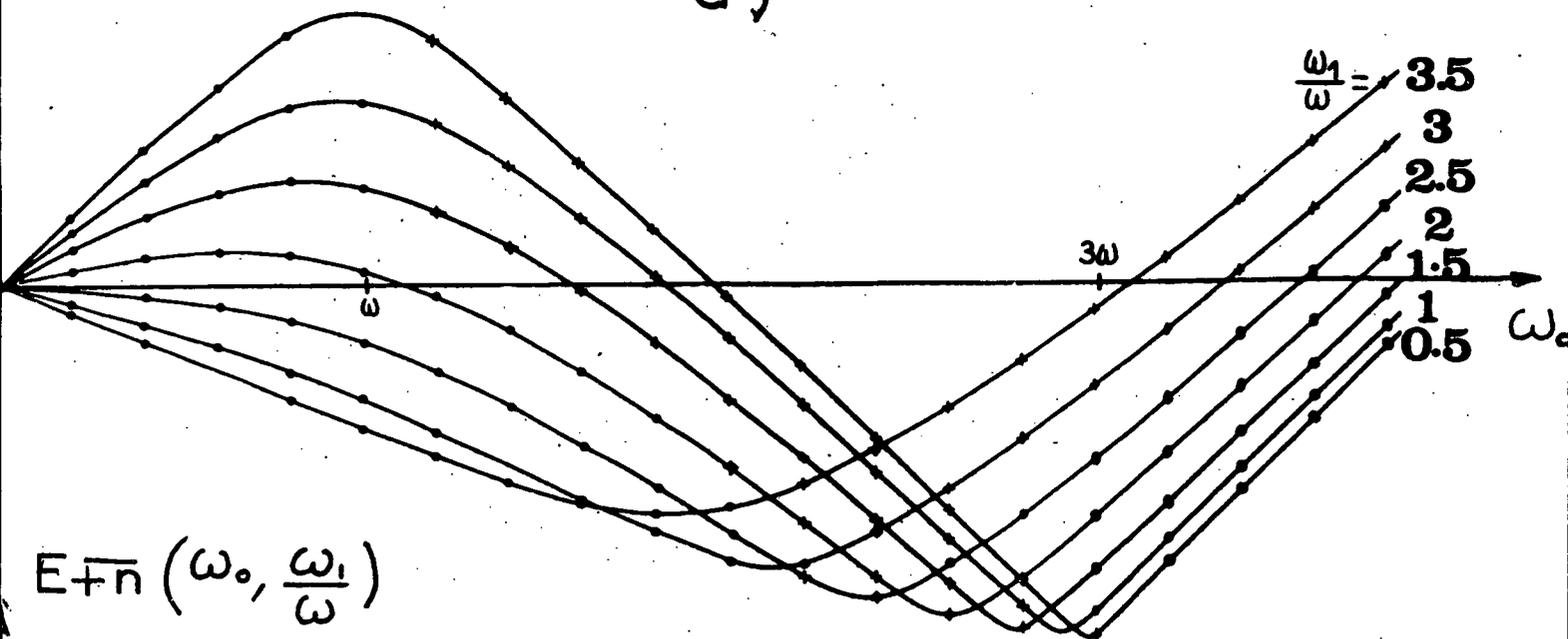
a) Etude expérimentale de la fréquence de Larmor et du tenseur de Landé de l'atome habillé (³⁰)

Il s'agit d'étudier la variation de la fréquence de Larmor des atomes en fonction de l'amplitude du champ de radiofréquence et de l'angle ψ entre le champ magnétique statique \vec{H}_0 et le champ habillant. Nous avons utilisé une méthode de transitoire, l'expérience étant réalisée à l'aide du dispositif schématisé sur la figure 49-a : les atomes sont orientés optiquement en champ statique nul par un fais-

$$E_{+n}(\omega_0, \frac{\omega_1}{\omega})$$

 $\frac{\omega}{2}$

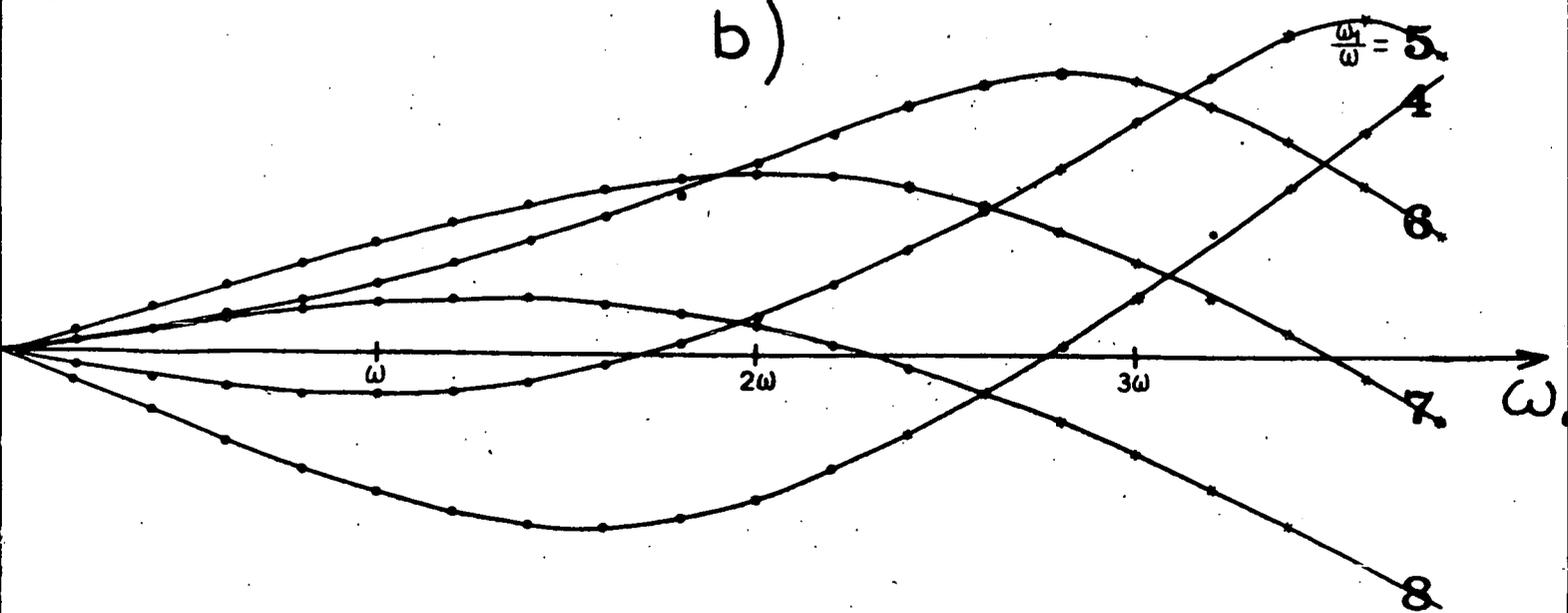
a)



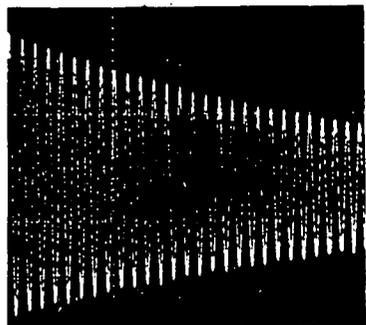
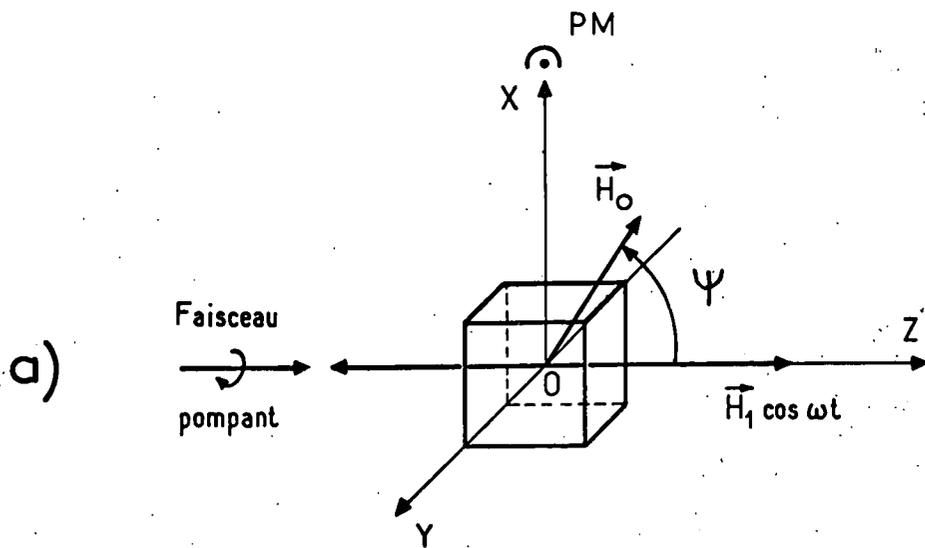
$$E_{+n}(\omega_0, \frac{\omega_1}{\omega})$$

 $\frac{\omega}{2}$

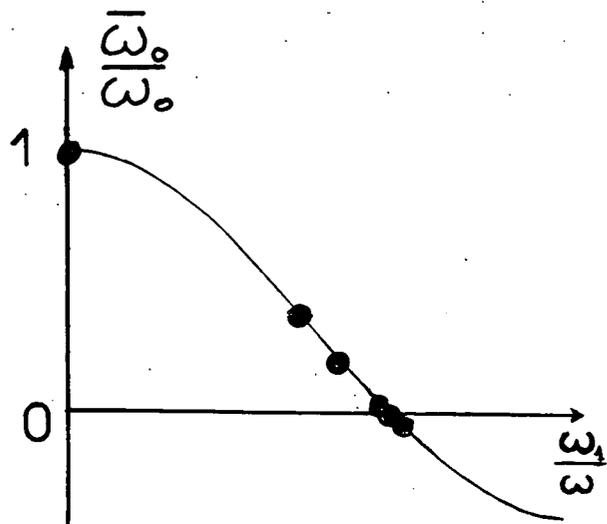
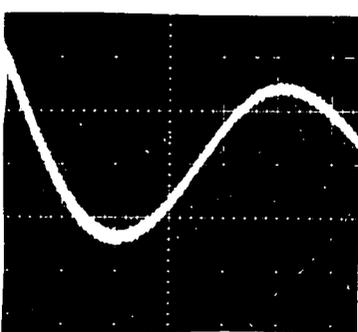
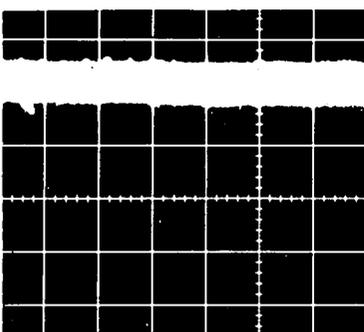
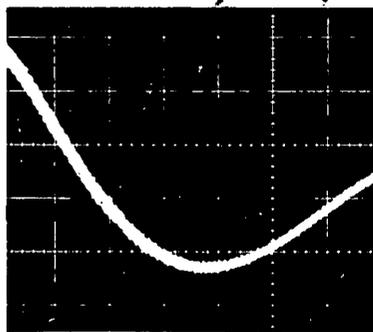
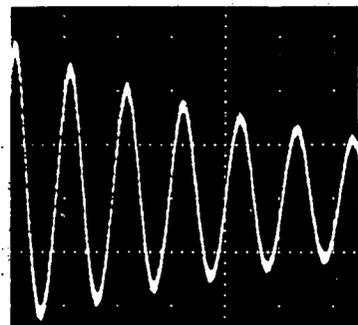
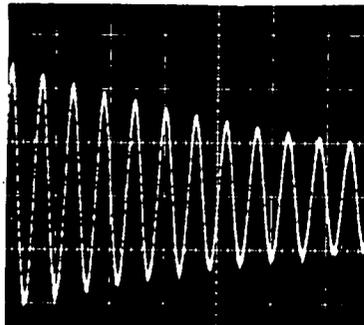
b)



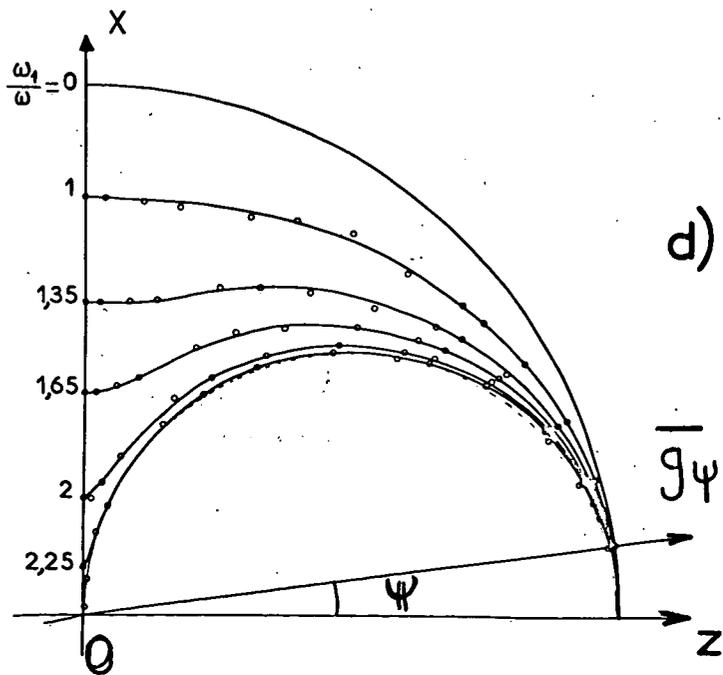
Fig_48



0.4s



Fig_49



ceau pompant dans la direction Oz du champ habillant (ou perpendiculairement à cette direction le long de Oy); puis on introduit brusquement \vec{H}_0 dans une direction faisant un angle ψ avec Oz; les atomes se mettent à précesser et cette précession se traduit par une modulation à la fréquence de Larmor de la lumière transmise ou de la lumière de fluorescence émise par la cellule de résonance le long de Ox. Le pulse de champ \vec{H}_0 est produit en introduisant brusquement dans des bobines d'axe Oz et Ox des courants i_z et i_x dont le rapport est déterminé par un pont diviseur. La mesure de ces courants et l'étalonnage des bobines permettent de connaître H_0 et ψ . H_0 étant fixé en module, on répète l'expérience pour diverses valeurs de ψ et ω_1/ω . On mesure à chaque fois la fréquence de la transitoire obtenue.

Les figures 49-b représentent ces transitoires pour $\psi = \pi/2$ et pour des valeurs croissantes du rapport ω_1/ω . Le pompage s'effectue le long de Oz et on détecte $\langle J_z \rangle$ en mesurant l'intensité totale de la lumière de fluorescence réémise par la cellule le long de Ox. On constate que la fréquence de précession diminue au fur et à mesure que l'intensité du champ habillant augmente, s'annule puis augmente à nouveau : nous avons reporté sur la figure 49-c les fréquences de Larmor correspondant aux enregistrements 49-b en fonction de ω_1/ω (en rapportant ces fréquences à la fréquence de Larmor de l'atome libre dans le même champ H_0); on constate bien que le facteur de Landé atomique pour un champ \vec{H}_0 perpendiculaire à \vec{H}_1 varie comme la fonction de Bessel $J_0(\frac{\omega_1}{\omega})$ représentée par la courbe en traits pleins de la figure. Nous avons pu observer ainsi plusieurs annulations de la fréquence de Larmor de l'atome habillé, correspondant aux zéros successifs de la fonction $J_0(\frac{\omega_1}{\omega})$.

Des transitoires analogues ont été obtenues pour diverses valeurs de ψ , différentes de $\pi/2$. Pour $20^\circ < \psi < 90^\circ$, on pompe comme pour $\psi = \pi/2$ dans la direction de Oz. Mais pour ψ petit ($\psi < 20^\circ$), \vec{H}_0 serait presque parallèle au pompage et au cours de la précession $\langle J_z \rangle$ varierait très peu. Il devient alors nécessaire de pomper dans une autre direction, Oy par exemple. L'efficacité du pompage, qui devient perpendiculaire au champ habillant, est alors réduite par un facteur $J_0(\frac{\omega_1}{\omega})$ (cf. § V-C-4-a). D'autre part, l'observable détectée $\langle J_y \rangle$ étant transversale par rapport à H_1 , comporte à présent des composantes modulées aux harmoniques de ω (cf. équ. (V,A,27)). Afin de ne détecter que la composante basse fréquence du signal, on dispose à la sortie du photomultiplicateur un filtre passe-bas. L'efficacité de la détection est alors réduite, comme le pompage, par le facteur $J_0(\frac{\omega_1}{\omega})$. La sensibilité des mesures effectuée diminue donc considérablement pour les valeurs de ω_1/ω voisines des zéros de $J_0(\frac{\omega_1}{\omega})$. Quoiqu'il en soit, la détermination des fréquences de précession permet, connaissant H_0 et ψ , d'obtenir expérimentalement le facteur de Landé \bar{g}_ψ correspondant à la valeur $\frac{\omega_1}{\omega}$

du couplage avec la radiofréquence. Les résultats des mesures sont présentés sur la figure 49-d. L'angle polaire ψ représente l'angle de H_0 avec le champ habillant. La longueur du rayon vecteur est proportionnelle au facteur de Landé dans cette direction. Les courbes sont théoriques, tracées pour diverses valeurs de ω_1/ω à partir de la formule (V,A,9) :

$$\bar{g}_\psi = g \sqrt{\cos^2\psi + J_0^2 \left(\frac{\omega_1}{\omega}\right) \sin^2\psi}$$

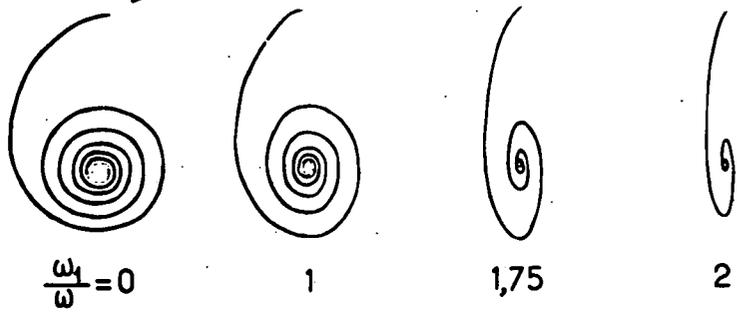
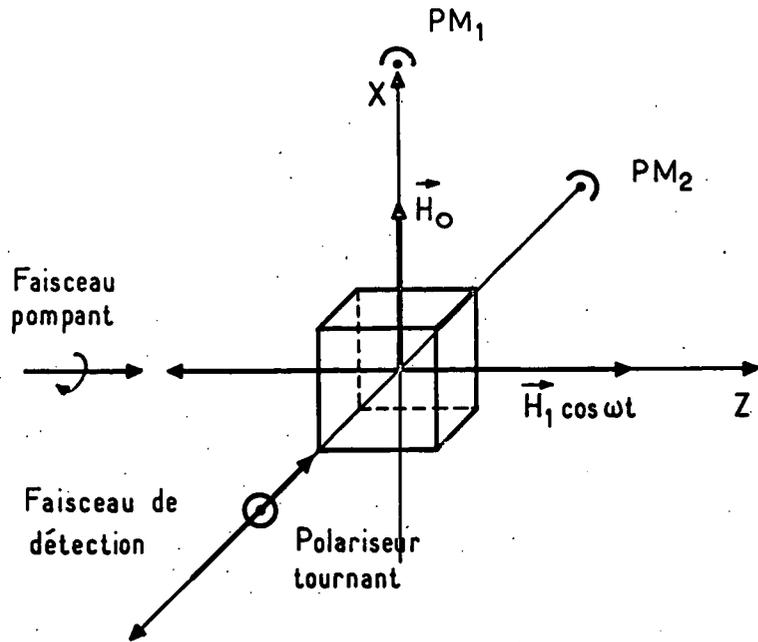
Les points sont expérimentaux. On peut constater que l'accord est excellent.

b) Etude expérimentale de la précession de Larmor de l'atome habillé (30)

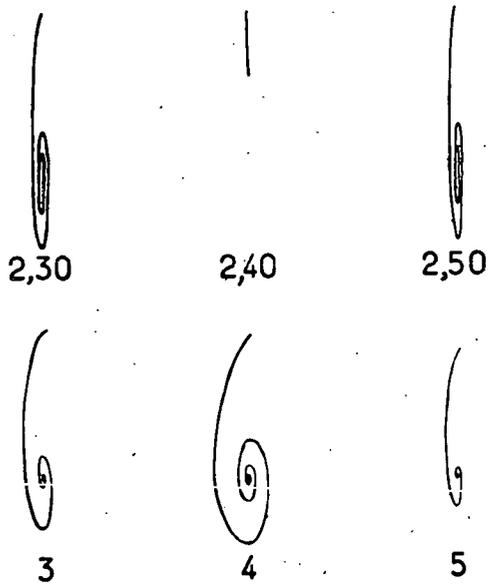
Le but de cette expérience est de mettre en évidence l'ellipticité du mouvement basse fréquence des spins quand ils précessent autour d'un champ perpendiculaire au champ habillant (voir § V-A-3). L'expérience est schématisée sur la figure 50-a. Les atomes sont orientés le long de la direction Oz du champ de radiofréquence par le faisceau de pompage. On applique brusquement un champ magnétique \vec{H}_0 dans la direction Ox et on suit la précession des spins dans le plan zOy. $\langle J_z \rangle$ est détecté au moyen de la lumière de fluorescence recueillie par le photomultiplicateur PM_1 dans la direction Ox, $\langle J_y \rangle$ au moyen de l'absorption d'un faisceau croisé de détection. En envoyant les deux signaux de détection sur un traceur XY, on reconstitue la précession des spins. L'enregistreur ne permet, en raison de son inertie, de détecter que la composante "lente" du mouvement des spins et élimine automatiquement les modulations haute fréquence présentes dans le mouvement de $\langle J_y \rangle$. Afin que le signal basse fréquence restant ne soit pas lui-même déformé, nous nous sommes limités à des fréquences de Larmor inférieures à 10 Hz. Enfin, pour minimiser la perturbation apportée par le faisceau croisé de détection et augmenter le rapport signal/bruit, on a modulé sa polarisation entre σ_+ et σ_- à une fréquence $\Omega/2\pi$ grande devant les temps de relaxation et de précession des atomes. Le dichroïsme de la vapeur le long de Oy, proportionnel à $\langle J_y \rangle$, se traduit par une modulation à la fréquence $\Omega/2\pi$ de la lumière du faisceau croisé transmise par la cellule. Une détection en phase de cette modulation donne un signal proportionnel à $\langle J_y \rangle$.

L'expérience proprement dite a été réalisée ainsi : faisant d'abord $\omega_1/\omega = 0$, nous avons réglé l'amplification sur les deux voies de l'enregistreur de façon à obtenir sur l'enregistrement un mouvement circulaire. En fait, par suite de la relaxation, l'extrémité de $\langle J \rangle$ décrit non pas un cercle, mais une spirale logarithmique (1ère courbe de la figure 50-b; en abscisse $\langle J_y \rangle$, en ordonnée $\langle J_z \rangle$). On établit ensuite le couplage avec la radiofréquence ($\frac{\omega_1}{\omega} \neq 0$) et on réalise la même expérience

a)



b)



c)

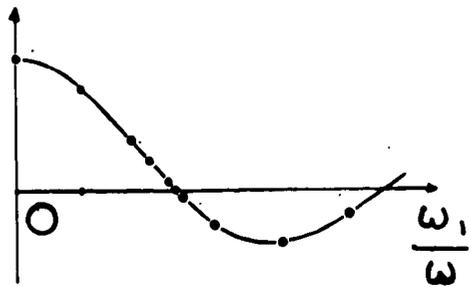


Fig. 50

pour diverses valeurs de ω_1/ω (courbes suivantes sur la figure 50-b; les valeurs correspondantes de $J_0(\frac{\omega_1}{\omega})$ sont reportées sur la courbe de la figure 50-c). On constate les phénomènes suivants :

- La précession des spins devient elliptique. L'ellipticité est d'autant plus marquée que $J_0(\frac{\omega_1}{\omega})$ est plus petit : à la limite $J_0 = 0$, l'ellipse devient un segment de droite. Le rapport mesuré des axes de l'ellipse est conforme aux prévisions théoriques (égal à $J_0(\frac{\omega_1}{\omega})$).

- Lorsque J_0 décroît, le nombre de tours réalisés par $\langle \vec{J} \rangle$ pendant le temps de relaxation décroît : ceci signifie que la vitesse de précession diminue (les trois enregistrements faits pour $\omega_1/\omega = 2,3 ; 2,4 ; 2,5$ ont été réalisés avec un pulse de champ H_0 vingt fois plus fort que pour les autres. En effet, sans cette précaution, on ne verrait aucune précession, la fréquence de Larmor $\omega_0 J_0(\frac{\omega_1}{\omega})$ devenant très inférieure à la largeur des niveaux).

- Enfin, le sens de rotation sur l'ellipse ne change pas lorsqu'on traverse un zéro de la fonction de Bessel. Ce résultat est conforme aux prévisions théoriques du § V-A-3.

Les deux expériences que nous venons de décrire (§ IX-B-1-a et b) nous ont permis de mettre en évidence les modifications de la fréquence et de la forme de la précession de Larmor de l'atome habillé en régime transitoire. Nous allons à présent décrire deux nouvelles expériences qui traduisent les mêmes modifications sur les signaux détectés en régime stationnaire.

c) Effet Hanle de l'atome habillé (²⁹)

On reprend l'expérience du § IX-B-1-a, mais au lieu d'appliquer le champ H_0 en pulse, on balaie ce champ lentement autour de zéro et on détecte les variations de la lumière de fluorescence, L_F , réémise par la cellule : c'est l'effet Hanle de l'atome habillé dont le principe a été exposé en détail au § V-A-4-b. Le dispositif expérimental est le même que celui de la figure 49-a : nous avons choisi un angle $\psi = \pi/2$ entre le champ statique et le champ habillant et un pompage parallèle à la direction de la radiofréquence pour que son efficacité soit maximale. Les variations de la lumière de fluorescence sont, dans ces conditions, proportionnelles à celles de $\langle J_z \rangle$ et l'efficacité de la détection est également maximale sur le signal statique. Ce signal est donné par la formule (V,A,32) :

$$\langle \overline{J_z} \rangle = \frac{\Gamma^2 \langle J_z \rangle_0}{\Gamma^2 + \omega_0^2 J_0^2(\frac{\omega_1}{\omega})}$$

La figure 51-a représente deux réseaux de courbes expérimentales correspondant à des valeurs croissantes de ω_1/ω . Ces courbes sont bien conformes à la théorie : ce sont des Lorentziennes d'amplitude constante, mais de largeur ΔH_0 inversement proportionnelle au facteur de Landé de l'atome habillé : nous avons reporté sur la figure 51-b l'inverse de la largeur en fonction de ω_1/ω (en prenant la largeur de l'effet Hanle de l'atome libre pour unité) : les points se placent avec une bonne précision sur la courbe théorique représentant les variations de la fonction de Bessel $J_0(\frac{\omega_1}{\omega})$.

REMARQUE :

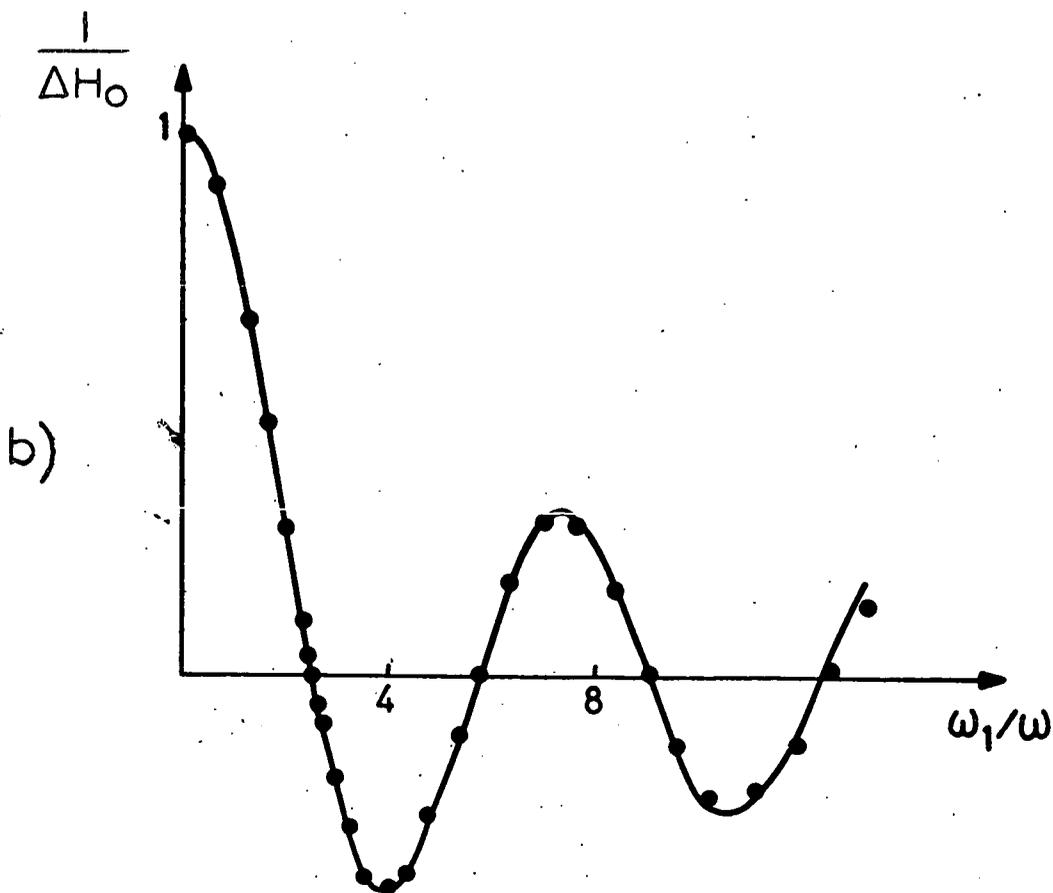
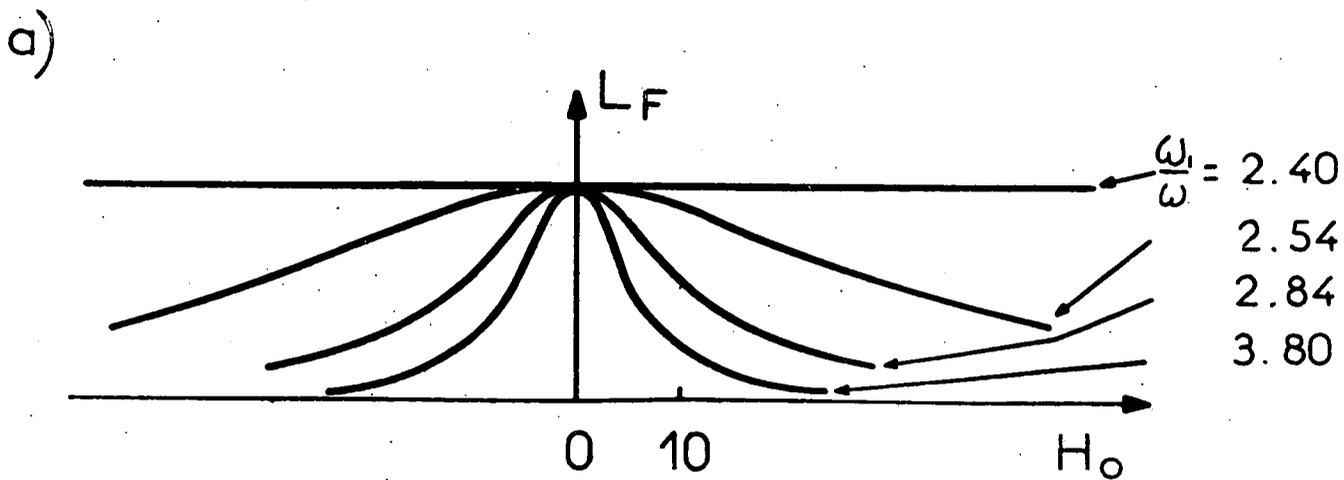
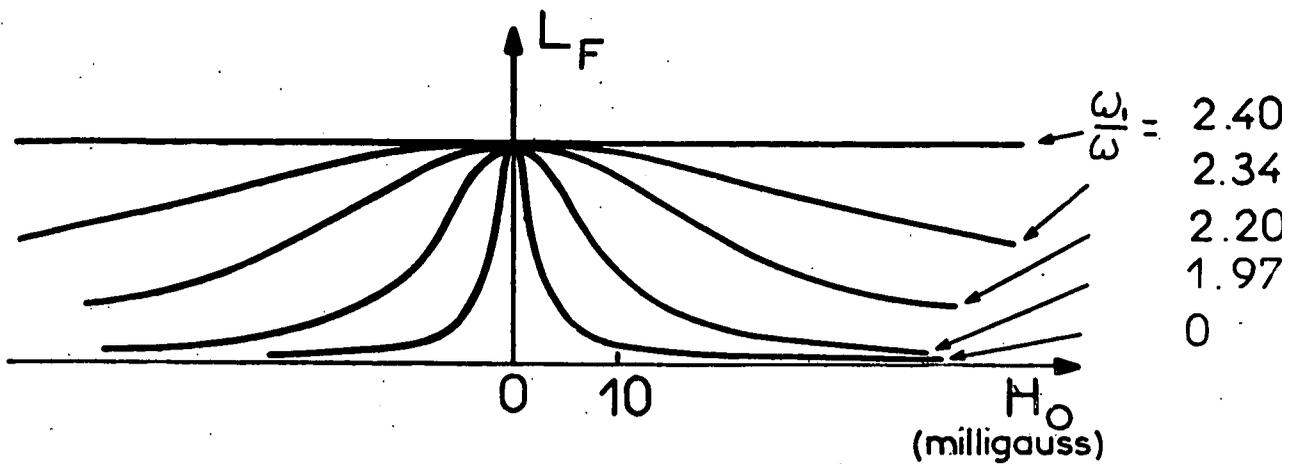
Nous venons de décrire l'effet Hanle de l'atome habillé observé en orientation sur ^{199}Hg . Le même effet a récemment été observé en alignement sur ^{201}Hg . Il possède, comme nous l'avons montré au § V-A-4-d, la caractéristique intéressante de pouvoir être détecté en pompage longitudinal. Les résultats des expériences correspondants seront prochainement publiés (thèse de 3e cycle de G. GRYNBERG).

d) Résonance magnétique de l'atome habillé (³⁰)

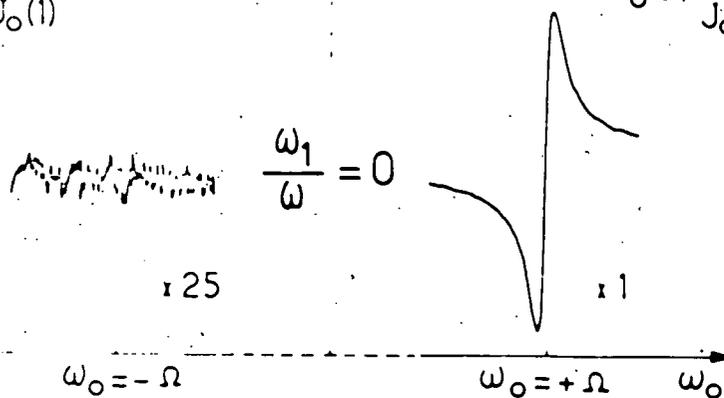
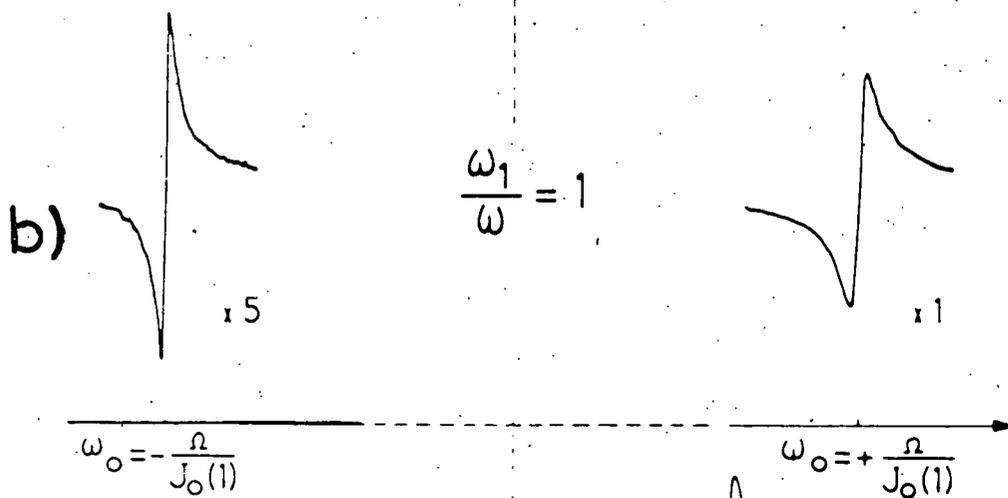
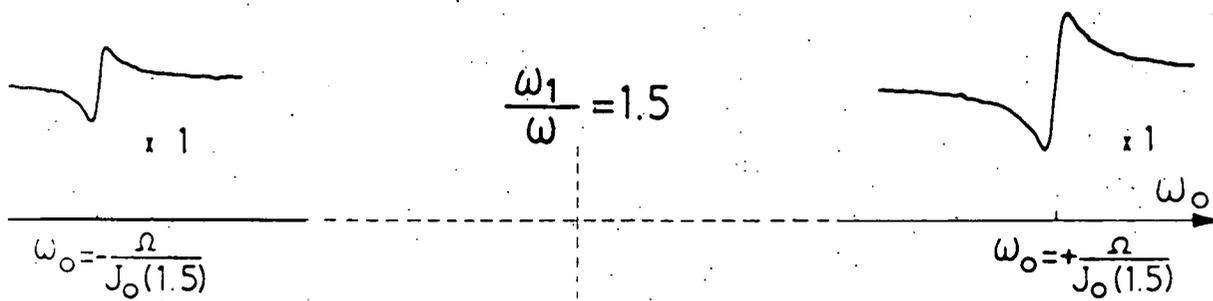
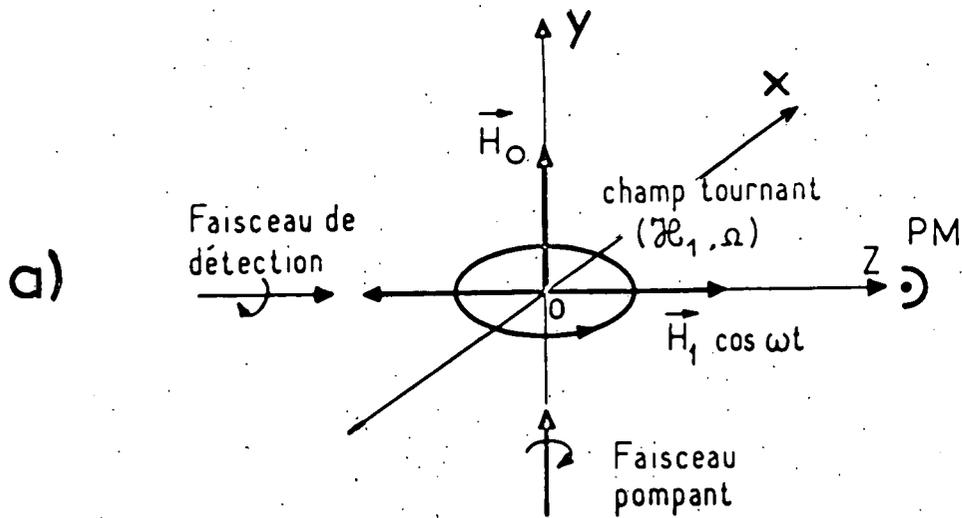
Il s'agit d'effectuer, à l'aide d'un second champ de radiofréquence "sonde" polarisé circulairement, d'amplitude \mathcal{H}_1 et de fréquence $\Omega/2\pi$, la résonance magnétique de l'atome habillé par le champ de radiofréquence "linéaire". Le principe de l'expérience a été décrit au § V-A-4-c : on doit observer un déplacement de la résonance magnétique ordinaire qui apparaît à présent dans un champ tel que $\omega_0 = \frac{\Omega}{J_0}$, et l'apparition d'une résonance "extraordinaire" dans le champ opposé $\omega_0 = -\frac{\Omega}{J_0}$, liée à l'ellipticité de la précession de Larmor de l'atome habillé.

Les détails du montage expérimental sont précisés sur la figure 52-a. Rappelons la disposition des divers champs magnétiques (cf. figure 23-g) : le champ habillant $\vec{H}_1 \cos \omega t$ aligné le long de Oz est perpendiculaire au champ H_0 balayé dans la direction Oy. Le champ sonde "tournant" est réalisé à l'aide de deux paires de bobines d'axes parallèles à Oz et Ox. Sa fréquence est très inférieure à celle du champ habillant. Le faisceau pompant se propage le long de Oy (pompage longitudinal). Un faisceau croisé de détection, parallèle à la direction Oz du champ habillant, permet d'observer l'aimantation transversale qui apparaît à la fréquence $\Omega/2\pi$ du champ sonde lorsqu'on passe à résonance.

Les résultats expérimentaux sont présentés sur la figure 52-b (pour chacune des résonances, on a indiqué la sensibilité de la détection utilisée). La procédure expérimentale est la suivante : on commence par étudier la résonance magnétique



Fig_51



10 cps

Fig. 52

en l'absence de champ habillant ($\frac{\omega_1}{\omega} = 0$). Seule la résonance $\omega_0 = \Omega$ doit apparaître dans ces conditions si le champ sonde est bien purement circulaire droit : c'est d'ailleurs en annulant la résonance $\omega_0 = -\Omega$ que l'on règle avec précision sa polarisation : on observe alors les signaux de la ligne inférieure de la figure 52-b. Puis l'on introduit le champ habillant pour des valeurs croissantes du rapport ω_1/ω (deuxième et troisième ligne de la figure 52-b). On constate alors les faits suivants :

- La résonance ordinaire est déplacée vers les champs forts et est bien centrée en $\omega_0 = \frac{\Omega}{J_0}$.
- Il apparaît comme prévu une résonance dans le champ $\omega_0 = -\frac{\Omega}{J_0}$.

L'évolution de ces deux résonances lorsqu'on varie ω_1/ω est conforme aux prévisions de la théorie établie au § V-A-4-c. La résonance ordinaire est induite par la composante circulaire droite $\mathcal{H}_1 (1+J_0) / 2$ du champ de radiofréquence fictif elliptique associé au champ sonde tournant. \mathcal{H}_1 est fixe, juste assez intense pour saturer la résonance de l'atome nu. Lorsqu'on augmente ω_1/ω , on constate une diminution de l'intensité de la résonance ordinaire liée à la décroissance de $\frac{1+J_0}{2}$ (en fait, la décroissance du signal est due également à la diminution en J_0 de l'efficacité du pompage, perpendiculaire à la direction du champ habillant). Au contraire, l'intensité de la résonance extraordinaire, induite par la composante circulaire gauche $\mathcal{H}_1 (1-J_0)/2$ du même champ de radiofréquence fictif croît rapidement avec ω_1/ω jusqu'à atteindre une intensité voisine de celle de la résonance ordinaire.

REMARQUE :

Il est possible, en modifiant la polarisation du champ sonde, d'observer d'autres types de résonance magnétique sur l'atome habillé par un champ de radiofréquence linéaire en champ statique faible. En particulier, si le champ sonde est linéaire et parallèle au champ H_0 (polarisation $\pi^{(S)}$), on peut observer les résonances paramétriques de l'atome habillé. Ces résonances ont été décrites en détail par ailleurs ⁽⁹⁶⁾ ⁽⁴⁸⁾.

- 2) Champ habillant polarisé circulairement : mise en évidence expérimentale du champ H_f équivalent à un champ de radiofréquence tournant ⁽⁵³⁾

Il s'agit de vérifier expérimentalement qu'en champ statique faible, l'effet d'un champ de radiofréquence tournant sur un spin est équivalent à celui d'un champ statique, perpendiculaire au plan de la radiofréquence, dont l'ampli-

tude est donnée en grandeur et en signe par la relation (V,C,6) :

$$H_f = g_\alpha \frac{\mu_B H_1^2}{2\omega}$$

En fait, le point de vue du champ équivalent permet d'interpréter, à l'aide d'images simples, certains des résultats expérimentaux établis aux § IX-A-1-b et IX-A-2-a.

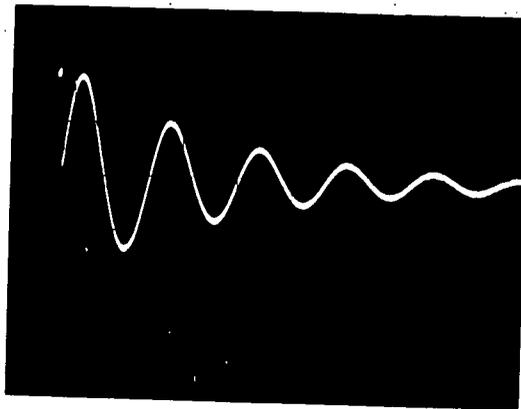
a) Précession de Larmor dans le champ équivalent

La résonance magnétique centrée en champ nul ^{et} induite par un champ tournant dans le plan de \vec{H}_0 traduit la variation lorsqu'on balaie H_0 de la direction du champ total $\vec{H}_0 + \vec{H}_f$ "vu" par les spins (cf. § I-D-3-c). On peut compléter l'expérience de résonance en régime stationnaire décrite au § IX-A-1-b par une expérience de transitoire qui met mieux en évidence le concept de champ équivalent : le montage expérimental est toujours schématisé par la figure 41-c. Au lieu d'appliquer le champ tournant de façon permanente sur la cellule de résonance, on l'introduit en pulse, le champ statique H_0 étant nul; on détecte alors sur la lumière de fluorescence la précession des spins dans le champ équivalent, qui n'est autre que le phénomène de nutation de RABI associé à la résonance en champ nul. Nous avons notamment vérifié expérimentalement la validité de l'expression (V,C,6) du champ équivalent en mesurant, en fonction de ω_1 , la fréquence de précession des spins dans H_f ; cette fréquence est bien proportionnelle à ω_1^2 , tant que l'amplitude du champ habillant n'est pas trop grande (il faut que l'on ait $\omega_1 < \omega$ pour que la formule (V,C,6) soit valable; voir § V-C-1). Nous avons également vérifié que le sens de la précession change avec le sens de rotation du champ de radiofréquence (si $\omega \rightarrow -\omega$, $H_f \rightarrow -H_f$). Nous avons procédé de la façon suivante : les spins étant orientés dans la direction Oz par le pompage optique, un pulse de champ statique les amène dans la direction Ox en un temps très court devant leur temps de relaxation. Le champ habillant dans le plan xOz est alors brusquement introduit : les figures 53-a et b montrent la précession des spins dans le champ équivalent H_f , observée sur la lumière transmise, pour deux sens de rotation opposés du champ tournant; on observe bien une inversion du sens de la précession d'une expérience à l'autre.

b) Déplacement de la résonance Hanle dans le champ équivalent

La résonance de croisement de niveaux apparaissant au voisinage du champ nul pour un champ de radiofréquence en polarisation σ_+ (cf. § IX-A-2-a et dispositif expérimental de la figure 41-d) correspond au cas où le champ réel \vec{H}_0 est balayé parallèlement au champ équivalent H_f . Nous avons montré, sur la figure 44-a, que cette résonance, qui apparaît en particulier sur la modulation 2ω , subit un dépla-

a)



0,4s

b)

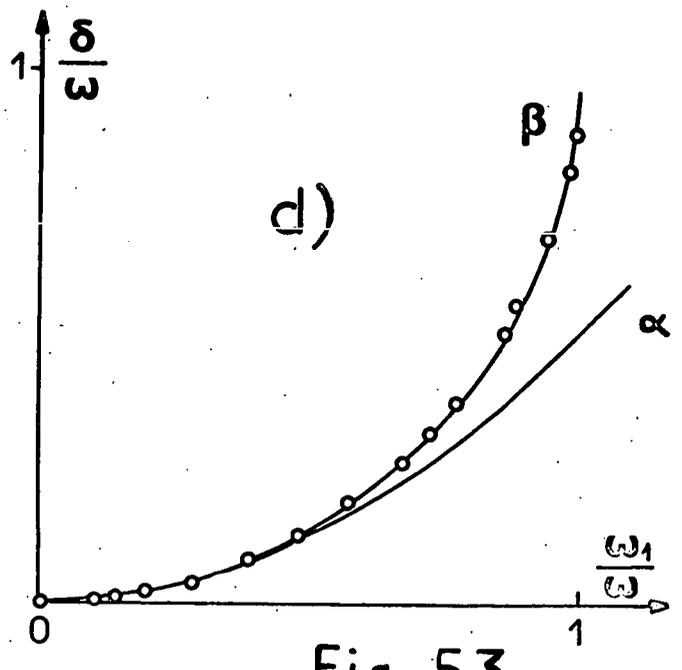
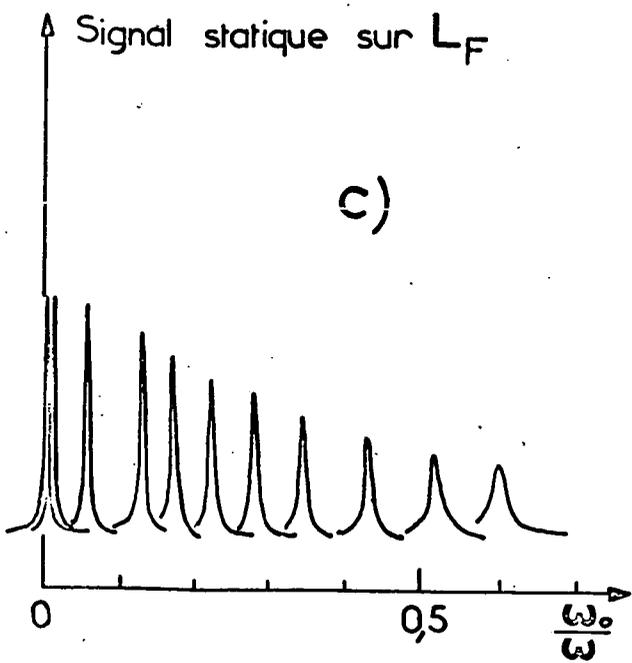
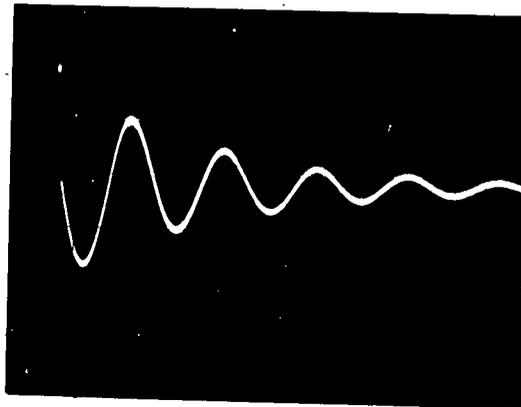


Fig. 53

cement important lorsque l'intensité de la radiofréquence augmente (figure 44-b).

Au lieu d'étudier cette résonance sur un signal modulé (qui s'annule avec l'intensité de la radiofréquence), on peut la détecter sur un signal statique : elle apparaît alors simplement comme l'effet Hanle de l'atome libre déplacé par la présence du champ équivalent H_f : nous avons, sur la figure 53-c, représenté cette résonance (observée sur la lumière de fluorescence L_f) pour des valeurs croissantes de ω_1/ω , donc de l'amplitude du champ H_f : tout se passe bien comme si l'on observait la résonance de croisement des niveaux d'un atome libre en présence d'un champ statique (parallèle au champ balayé H_0) dont l'amplitude augmente d'une courbe à l'autre (on observe en fait également une diminution de l'intensité de la résonance et un élargissement de celle-ci lorsque l'amplitude ω_1 de la radiofréquence n'est plus très faible devant ω ; l'image du champ équivalent \vec{H}_f cesse alors d'être valable; cf. § V-C-1).

Sur la figure 53-d, nous avons enfin, pour mémoire, reporté (points expérimentaux) le déplacement δ (rapporté à ω) de la résonance en fonction de ω_1/ω ; les points se placent évidemment sur un arc de cercle (courbe β) qui constitue la moitié $\omega_0 < \omega$ de la courbe théorique de la figure 44-b; si le couplage avec le champ habillant est faible ($\frac{\omega_1}{\omega} \ll 1$), le déplacement varie bien comme $\frac{\omega_1^2}{2\omega}$ (courbe α qui représente convenablement les variations expérimentales du champ équivalent H_f).

C H A P I T R E X

ETUDE EXPERIMENTALE DES COLLISIONS D'ECHANGE DE SPINS
ENTRE ATOMES ALCALINS HABILLES.

Nous nous proposons de vérifier expérimentalement que le transfert de cohérence entre deux niveaux atomiques peut être considérablement modifié si ces niveaux interagissent avec un champ de radiofréquence de polarisation et d'amplitude convenables.

Les expériences ont été réalisées dans l'état fondamental d'atomes alcalins, le transfert de cohérence étant dû aux collisions d'échange de spin entre deux variétés atomiques différentes (^{87}Rb et ^{133}Cs) ou entre atomes identiques (collisions ^{87}Rb - ^{87}Rb). Dans le premier cas (§ X-A), nous étudierons le transfert résonnant d'orientation transversale entre le césium et le rubidium habillés par un champ de radiofréquence polarisé linéairement; ce transfert résonnant a lieu lorsque le champ habillant a une amplitude correspondant à l'égalisation de fréquences de Larmor des deux espèces atomiques (cf. § V-B). Dans le second cas, (§ X-B), nous décrirons la circulation de cohérence apparaissant entre les deux niveaux hyperfins du rubidium lorsque cet atome interagit avec un champ de radiofréquence polarisé circulairement dont l'action est équivalente à celle de deux champs statiques opposés H_f et H'_f agissant dans chacun des niveaux; nous mettrons notamment en évidence l'allongement sensible du temps de relaxation de l'orientation transversale prévu par la théorie (cf. § V-C).

X-A. ETUDE EXPERIMENTALE DU TRANSFERT DE COHERENCE ENTRE ^{133}Cs ET ^{87}Rb HABILLES PAR UN CHAMP DE RADIOFREQUENCE POLARISE LINEAIREMENT

Pour réaliser l'expérience d'échange de cohérence entre atomes habillés, il faut pouvoir préparer à un instant initial $t = 0$ une orientation transversale sur les atomes de césium uniquement (alcalin 2); puis, introduisant brusquement un champ habillant d'amplitude convenable, il faut pouvoir mesurer la cohérence transférée par collisions d'échange à partir du césium en détectant sélectivement l'orientation transversale des atomes de rubidium (alcalin 1). La procédure expérimentale est donc assez délicate et nécessite une succession d'opérations destinées à agir séparément sur les deux espèces atomiques différentes. Nous commencerons par décrire les différentes étapes de l'expérience au § X-A-1, puis nous analyserons ses résultats et les comparerons aux

prévisions théoriques au § X-A-2.

1) Principe de l'expérience et description générale du dispositif utilisé

- Le montage expérimental est schématisé sur la figure 54-a : une cellule de 6 cm de diamètre, dont les parois sont enduites de paraffine deutérée, contient le mélange d'atomes de ^{87}Rb et ^{133}Cs . La densité du Césium est environ dix fois plus élevée que celle du rubidium. La température de la cellule est régulée grâce à un courant d'air chaud à environ 45°C ; à cette température, les collisions d'échange l'emportent largement sur toutes les autres causes de relaxation : en effet le temps d'échange Rb-Cs, T_{12} , de l'ordre de 0,005 sec est beaucoup plus court que les temps de relaxation sur les parois des deux variétés atomiques (de l'ordre de 0,2 sec. dans la cellule utilisée).

- Un faisceau lumineux F_1 polarisé circulairement, produit par une lampe à Cs, pompe les atomes de Cs dans la direction Oy du champ statique \vec{H}_0 (la disposition des champs dans le trièdre $Oxyz$ est la même que celle du § V-B). Par collision d'échange, les atomes de rubidium acquièrent automatiquement une orientation dans la même direction. Afin que seuls les atomes de Cs soient orientés, un champ de radiofréquence résonnant pour les atomes de rubidium, $\vec{h}_{\text{Rb}}(t)$, est appliqué perpendiculairement à \vec{H}_0 ; ce champ (non représenté sur la figure 54-a) désoriente le rubidium sans affecter directement les atomes de Cs. Son intensité est suffisamment grande pour qu'il n'introduise pas une orientation transversale appréciable sur le rubidium (la résonance est saturée).

- Dans la première phase de l'expérience, on réalise ainsi une orientation longitudinale (par rapport à \vec{H}_0) sur les atomes de césium uniquement. Cette orientation se trouve répartie entre les deux niveaux hyperfins de cet alcalin; elle résulte de l'effet compétitif du pompage optique et des divers processus de relaxation (principalement dus aux collisions Cs-Cs puisque le Cs est beaucoup plus abondant que le Rb); on montre en Appendice V que les orientations électroniques stationnaires obtenues dans ces conditions à la limite des faibles pompages ont des sens opposés dans les deux sous-niveaux hyperfins et obéissent à la relation :

$$\langle (\alpha_2)_{S_y} \rangle = -\frac{15}{7} \langle (\alpha_4)_{S_y} \rangle \quad (\text{X,A,1})$$

(on rappelle qu'avec les notations du § V-B-3, les indices α_2 et α_4 représentent respectivement les niveaux hyperfins supérieurs et inférieurs de l'alcalin 2).

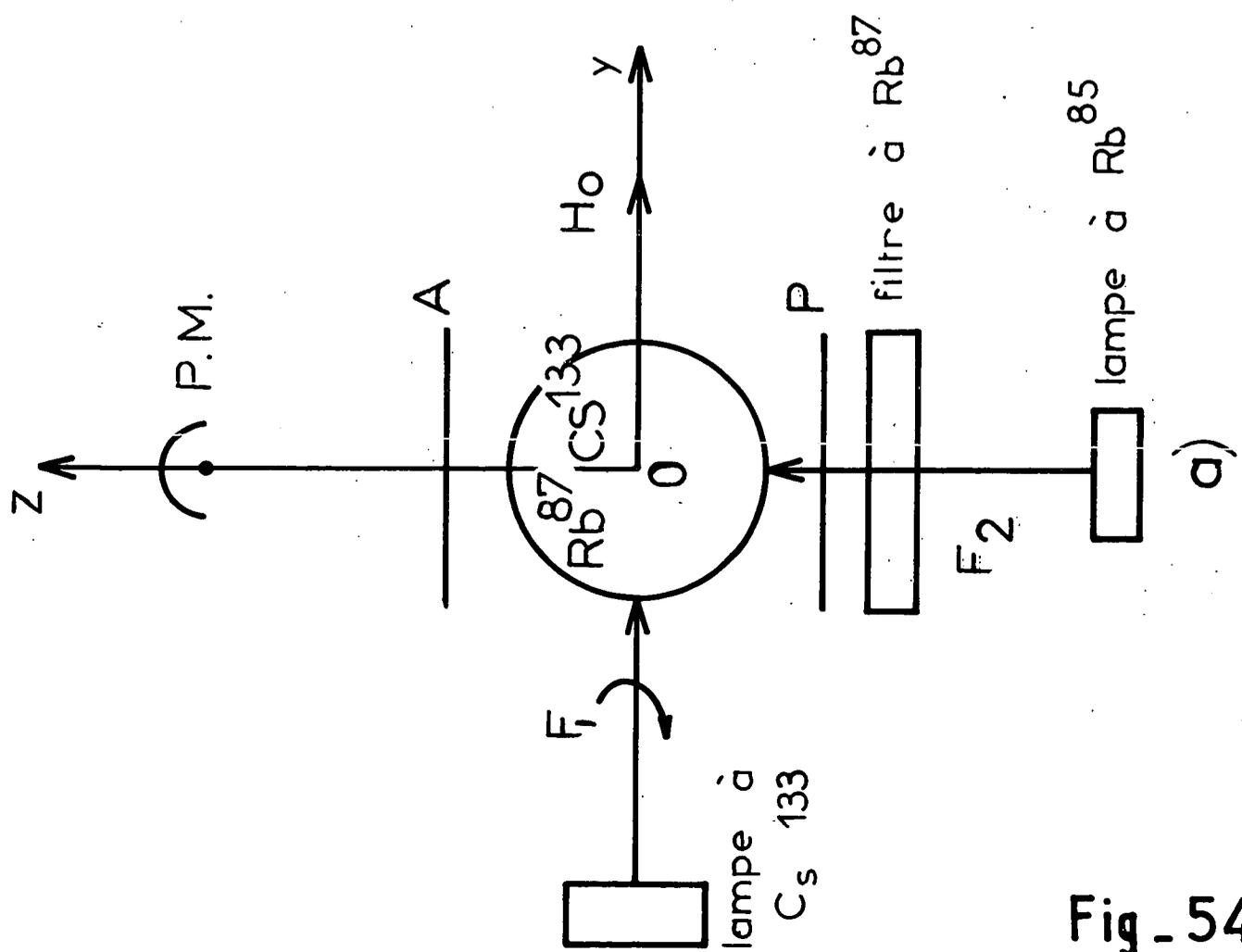
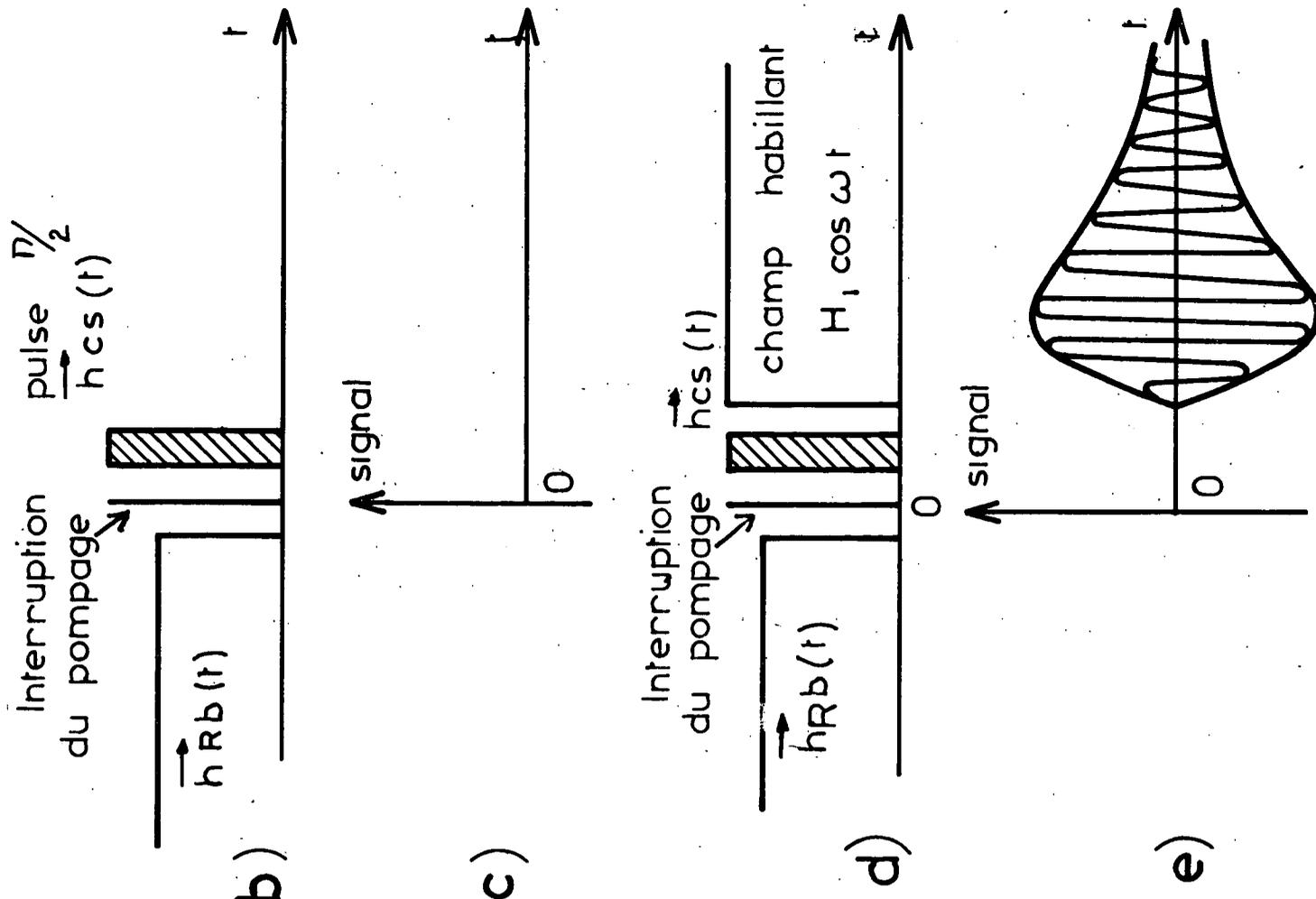


Fig. 54

- A l'instant $t = 0$, le champ de radiofréquence $\vec{h}_{Rb}(t)$ est supprimé, le faisceau de pompage est coupé par un obturateur puis, immédiatement après, un pulse de radiofréquence $h_{Cs}(t)$, résonnant pour le césium et de durée convenable est appliqué aux atomes afin de transformer l'orientation longitudinale présente sur le Cs le long de Oy en une orientation transversale par rapport à \vec{H}_0 (pulse $\pi/2$). La succession des opérations correspondantes est schématisée sur la figure 54-b. Le champ $h_{Cs}(t)$ est appliqué le long de Ox, dans la direction perpendiculaire au plan de la figure 54-a. Comme il s'agit d'un champ linéaire, résultant de la superposition de deux champs tournants en sens inverse dans le plan xOz, il se trouve résonnant pour les deux niveaux hyperfins du Cs à la fois (de facteurs de Landé opposés) dont les orientations deviennent ainsi simultanément transversales. La phase du champ $\vec{h}_{Cs}(t)$ est réglée de façon à ce qu'à l'issue du pulse les orientations des deux niveaux soient alignées le long de Oz. Il est facile de montrer par de simples arguments de symétrie que ces orientations, dont les signes sont opposés le long de Oy avant le pulse, pointent à l'issue de celui-ci dans le même sens le long de Oz. On a ainsi préparé juste après le pulse des composantes transversales de l'orientation sur le Cs (alcalin 2) seulement, qui obéissent à la relation :

$$\langle \alpha_2 \rangle S_z(0) = + \frac{15}{7} \langle \alpha_4 \rangle S_z(0) \neq 0 \quad (X,A,2)$$

l'alcalin (1) ne possédant, quant à lui, à l'instant $t=0$ aucune orientation (ni longitudinale, ni transversale).

Afin d'étudier comment l'orientation du Cs se transfère au rubidium, on utilise un faisceau non résonnant de lumière F_2 , produit par une lampe à ^{85}Rb filtrée par une cellule à ^{87}Rb , qui permet de détecter par rotation Faraday de son plan de polarisation, le moment transversal du ^{87}Rb dans la direction Oz (rappelons que la cellule doit alors être placée entre un polariseur, P, et un analyseur, A, linéaires à 45° l'un de l'autre). Le signal détecté par cette méthode est en fait une combinaison linéaire des orientations $\langle \alpha_1 \rangle S_z$ et $\langle \alpha_3 \rangle S_z$ des deux niveaux hyperfins du Rb; les coefficients de cette combinaison linéaire dépendent de la composition spectrale de la lumière du faisceau F_2 . Compte tenu du profil spectral de la lampe à ^{85}Rb utilisée et du décalage isotopique des transitions hyperfines de ^{85}Rb et ^{87}Rb , on peut montrer que la détection de l'orientation $\langle \alpha_1 \rangle S_z$ du niveau de F maximum sur le Rb est environ deux fois plus efficace que celle de l'autre niveau. De plus, les orientations des deux niveaux sont détectées avec des signes différents, si bien que l'on peut mettre le signal sous la forme :

$$S \approx k [2 \langle \alpha_1 \rangle S(t) - \langle \alpha_3 \rangle S(t)] \quad (X,A,3)$$

Remarquons enfin que le faisceau non résonnant de détection utilisé n'est pas une cause de relaxation pour les spins de Rb (ni, a fortiori, pour le Cs). Il peut donc rester présent pendant toute l'expérience.

Afin de bien mettre en évidence le rôle du champ habillant dans le transfert de cohérence entre les deux alcalins, on commence par réaliser une expérience "témoin" sans introduire ce champ : l'orientation transversale créée à l'instant $t=0$ sur le Cs va se mettre à précesser autour de \vec{H}_0 à sa fréquence de Larmor propre (350 KHz/Gauss) et va décroître sous l'effet des divers processus de relaxation (collisions parois et échange de spin ; le faisceau de pompage F_1 étant supprimé dans cette phase de l'expérience, il n'y a pas de relaxation d'origine optique). La fréquence de Larmor du Rb (700 KHz/Gauss) étant différente de celle du Cs, il n'y aura pas de transfert de cohérence appréciable en l'absence de champ habillant et l'on s'attend à ne détecter aucun signal sur le faisceau détecteur F_2 ; (voir figure 54-c). C'est bien ce que l'on constate expérimentalement; cette expérience permet d'ailleurs de vérifier qu'aucune cohérence n'est introduite accidentellement sur le rubidium avant l'instant $t = 0$.

Reprenons à présent la même expérience, mais juste après le pulse $h_{Cs}(t)$, appliquons brusquement le long de Oz un champ habillant $\vec{H}_1 \cos \omega t$ dont l'amplitude correspond à celle d'un des points A, B, C ou A', B', C' de croisement des fonctions de Bessel de la figure 24 (voir la séquence des opérations sur la figure 54-d). Il apparaît alors des composantes à la même fréquence dans les précessions de Larmor des deux espèces atomiques et l'on s'attend à observer un signal oscillant à la fréquence commune des deux atomes habillés (voir figure 54-e). Si l'amplitude du champ habillant ne correspond pas exactement à l'abscisse de l'un des points A,B,C,A',B',C', on observera une modulation résultant du battement des orientations transversales de fréquences légèrement différentes sur les deux atomes.

L'expérience telle que nous venons de la décrire permet de contrôler et de déterminer les paramètres nécessaires au calcul théorique du signal observé : ainsi, comme on connaît les valeurs initiales (X,A,2) des orientations présentes sur le Cs, on peut reporter ces valeurs dans l'équation (V,B,37) et calculer numériquement l'expression (X,A,3) du signal détecté. On est donc capable de comparer de façon précise la théorie et l'expérience comme le montre l'analyse suivante des résultats expérimentaux.

2) Analyse des résultats expérimentaux

a) Forme générale du signal détecté

Les figures 55-a à 55-g représentent les enregistrements à l'oscilloscope du courant photoélectrique provenant du photomultiplicateur qui reçoit la lumière du faisceau F_2 . Les différentes photographies correspondent à diverses valeurs de l'amplitude du champ habillant \vec{H}_1 proches de la valeur H_{1A} du 1er point de croisement A des fonctions de Bessel de la figure 24 (les valeurs de H pour chacun des enregistrements sont indiquées par des flèches sur la figure 55-h qui représente un agrandissement du point de croisement A). L'amplitude du champ statique H_0 utilisé dans cette expérience est de 3,35 mG (les fréquences propres du Rb et du Cs en absence de champ habillant sont respectivement de 2350 et 1175 Hz). Le champ habillant possède une fréquence $\omega/2\pi = 6400$ Hz bien supérieure aux fréquences de précessions atomiques dans le champ H_0 . On observe sur la figure 55 les phénomènes expérimentaux suivants :

- A résonance (figure 55-d), le signal présente les variations caractéristiques schématisées sur la figure 54-e et décrites en détail au § V-B : il commence par croître, à partir de l'instant où le champ habillant est introduit, sous l'effet du transfert résonnant de moment transversal entre les deux espèces atomiques, puis il finit par décroître sous l'effet des divers processus de relaxation.
- Hors de résonance, on observe des battements dans le signal dont la fréquence augmente avec le désaccord de fréquence des précessions de Larmor des atomes habillés.
- On constate également que l'amplitude du signal de transfert présente une variation résonnante lorsque le désaccord de fréquences $\overline{\omega}_{\alpha_1} - \overline{\omega}_{\alpha_2}$ passe par zéro.
- Enfin la durée de vie de la cohérence transférée sur le Rb est d'autant plus longue que l'on est plus proche de la condition de résonance.

Tous ces résultats sont en parfait accord avec les prévisions théoriques du § V-B. La forme des courbes correspond à celles que prévoit la résolution numérique des équations (V,B,37). Cette résolution conduit, comme nous l'avons déjà signalé (§ V-B-3-c) à des résultats très proches de ceux que donne la théorie simple du § V-B-1 qui ne tient compte que du couplage résonnant de deux niveaux. On remarque en effet une grande similitude entre les courbes expérimentales 55-d à 55-g correspondant à des désaccords de fréquence croissants et les courbes théoriques des figures 26-a à 26-d correspondant au modèle simple à deux niveaux. Cette similitude se comprend d'ailleurs très bien, si l'on remarque que dans la situation expérimentale où nous nous trouvons, le niveau hyperfin supérieur du Cs est plus orienté que l'autre à l'instant $t = 0$ (équation (X,A,2)) et que le transfert par collision d'échange couple surtout l'orientation du Cs à celle du niveau hyperfin de F maximum sur le Rb (cf. Appendice V). Ainsi, en première approximation tout au moins, on peut considérer que seuls intervien-

nent les deux niveaux de F maximum sur les deux alcalins, ce qui explique finalement l'analogie entre les courbes théoriques des figures 55 et les courbes expérimentales de la figure 26.

Après cette description qualitative du phénomène, nous allons passer à une vérification expérimentale plus quantitative de la théorie.

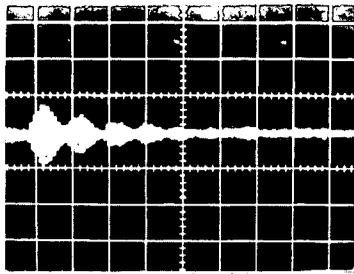
b) Etude du battement dans le signal de transfert

Nous avons, sur la figure 55-i, reporté la fréquence de battement mesurée sur les différents enregistrements en fonction de la différence des fréquences de Larmor des deux atomes habillés au voisinage du point A (la détermination de ces fréquences de Larmor est immédiate puisque l'on connaît la valeur du champ H_0 et l'amplitude du champ H_1 qui permet de calculer le facteur de Landé des deux atomes habillés pour chaque enregistrement). On constate que la fréquence de battement 2Ω correspond exactement au désaccord des fréquences propres des deux niveaux. L'égalité entre 2Ω et $\bar{\omega}_{\alpha_1} - \bar{\omega}_{\alpha_2}$ provient du fait que la densité du Cs est beaucoup plus grande que celle du Rb si bien que la "réaction" de l'orientation du Rb sur le Cs est négligeable. Si ce n'était pas le cas, la correspondance entre 2Ω et $\bar{\omega}_{\alpha_1} - \bar{\omega}_{\alpha_2}$ serait plus compliquée et impliquerait les différentes constantes de couplage entre les deux niveaux (voir formule (V,B,15-a) et figure 25-a).

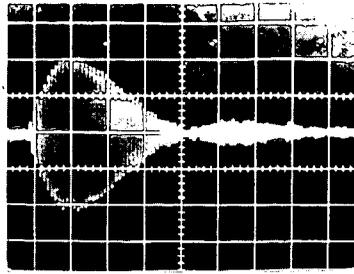
c) Etude comparée des diverses résonances de transfert

Si l'on augmente l'amplitude du champ habillant au delà de la valeur correspondant à l'enregistrement 55-g, le signal de transfert continue à diminuer, puis devient inobservable. Il réapparaît ensuite lorsque l'amplitude du champ habillant approche de la valeur H_{1A} , correspondant au point de croisement A' des fonctions de Bessel de la figure 24, passe par un maximum résonnant pour $H_1 = H_{1A}$, puis diminue à nouveau en présentant des battements au voisinage de cette valeur et ainsi de suite. Nous avons ainsi pu mettre en évidence successivement les 6 premières résonances dans le transfert correspondant aux points AA'BB'C'C. L'allure du signal pour chacune de ces résonances est identique à celle que nous avons décrite plus haut pour la résonance A. Les signaux diffèrent cependant par leur intensité maximale ainsi que par leur fréquence d'oscillation qui doit correspondre à la valeur commune de précession de Larmor des deux espèces atomiques aux différents points de croisement.

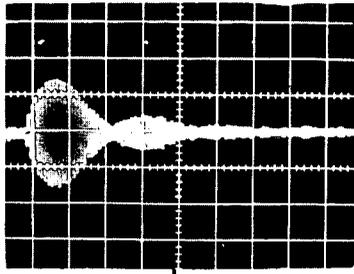
Sur la figure 56-a, nous avons associé à chacune des résonances un point expérimental dont l'abscisse correspond à la valeur du champ habillant H_1 à résonance et l'ordonnée à la fréquence des oscillations résonnantes. On constate que ces points coïncident de façon satisfaisante avec les points d'intersection des courbes théoriques représentant les variations des fréquences de Larmor des atomes habillés.



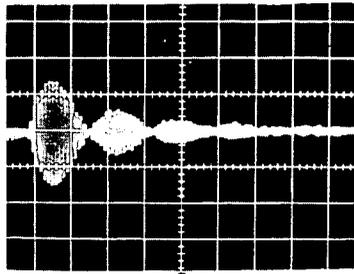
a



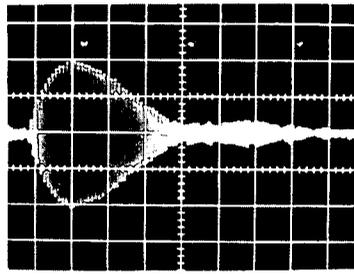
e



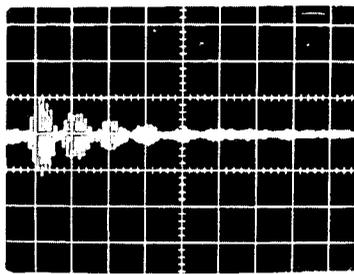
b



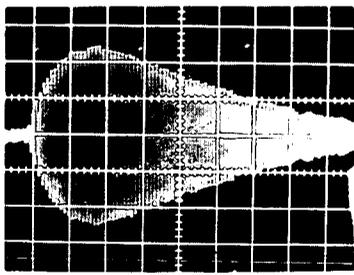
f



c



g



d

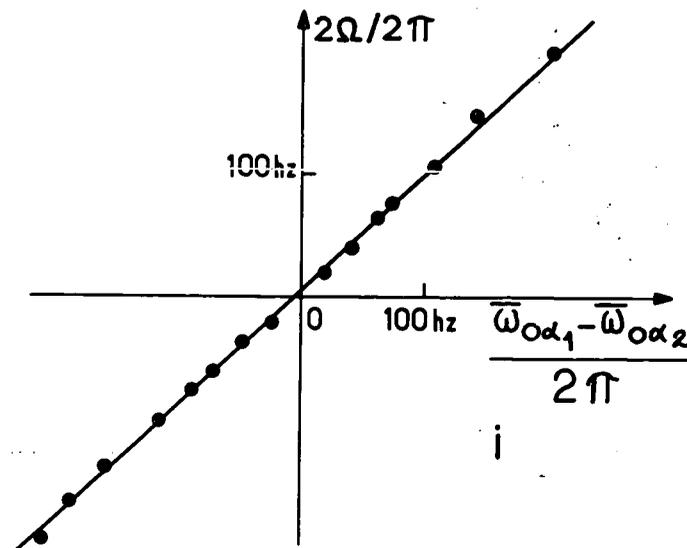
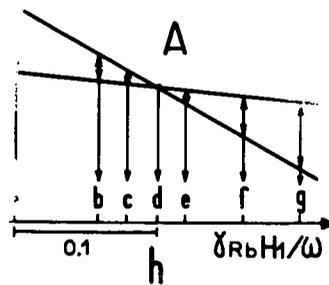
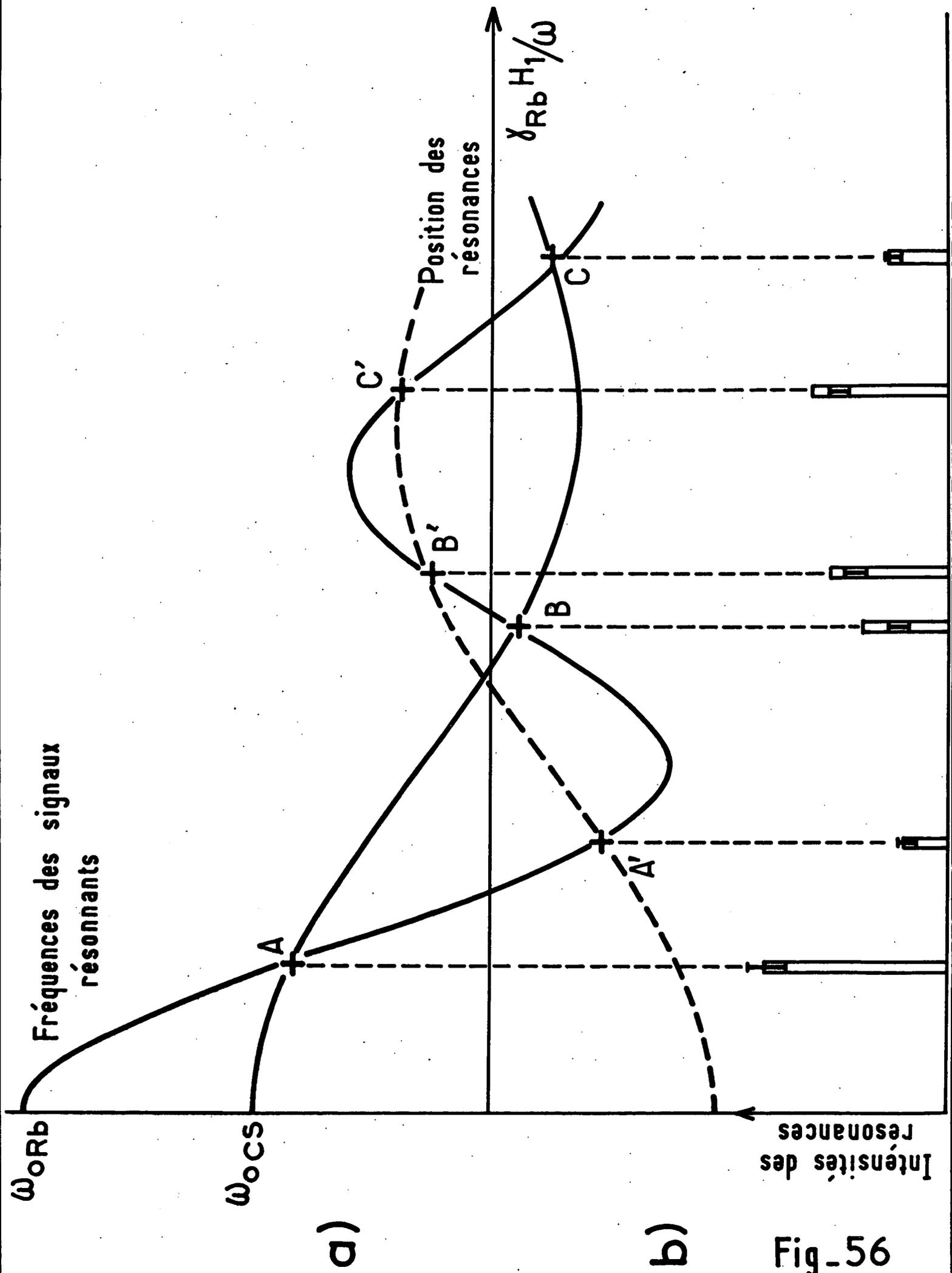


Fig - 55



Fig_56

Sur la figure 56-b, nous avons enfin reporté les intensités relatives des divers signaux résonnants (rapportées à l'intensité de la résonance A prise comme unité). Les barres correspondent aux résultats des mesures expérimentales et les rectangles verticaux aux intensités théoriques telles qu'elles résultent de la résolution des équations de transfert (V,B,37). Ici encore, l'accord entre l'expérience et la théorie est satisfaisant et constitue une vérification de la validité des équations décrivant le transfert par collision d'échange entre les atomes alcalins habillés.

X-B. ETUDE EXPERIMENTALE DE LA RELAXATION TRANSVERSALE D'ATOMES DE ^{87}Rb HABILLES PAR UN CHAMP DE RADIOFREQUENCE TOURNANT

Il s'agit de montrer expérimentalement que, pour une forte pression de la vapeur alcaline, le temps de relaxation de l'orientation transversale est beaucoup plus long en présence des champs équivalents \vec{H}_f et \vec{H}'_f associés à un champ de radiofréquence tournant qu'il ne l'est dans un champ réel \vec{H}_0 de même amplitude.

Rappelons que ce résultat est dû au fait que les fréquences de Larmor des deux niveaux hyperfins du Rb, qui sont opposées en présence d'un vrai champ statique, deviennent égales en grandeur et en signe dans les champs équivalents \vec{H}_f et \vec{H}'_f , ce qui rend possible une circulation de cohérence entre les deux niveaux.

De façon plus précise, nous appellerons $T_2(H_0)$ le temps de relaxation transversale dans le champ \vec{H}_0 du niveau hyperfin supérieur du ^{87}Rb et $T_2(H_f, H'_f)$ la constante de temps longue de la relaxation transversale dans le champ tournant. Conformément aux résultats du § V-C, nous devons vérifier que $1/T_2(H_0)$ est inversement proportionnel au temps de collisions d'échange Rb-Rb, T_{11} , alors que $1/T_2(H_f, H'_f)$ doit en être indépendant et n'être pratiquement déterminé que par les collisions sur les parois de la cellule.

1) Description de l'expérience

Le montage expérimental est représenté sur les figures 57-a et b : la cellule contenant les atomes de ^{87}Rb est plongée soit dans un champ réel \vec{H}_0 aligné le long de Oz (figure 57-a), soit dans un champ de radiofréquence tournant dans le plan xOy (figure 57-b), équivalent à deux champs opposés alignés le long de Oz :

$$H_f = -H'_f = \frac{\gamma_{Rb} H_1^2}{2\omega}$$

(l'intensité du champ tournant est réglée de façon que l'amplitude des champs équivalents soit identique à celle du champ H_0).

Le Rb est pompé optiquement dans la direction Oz (pompage longitudinal) par un faisceau résonnant F_1 polarisé circulairement. Il acquiert donc, dans chacun des niveaux hyperfins de son état fondamental une orientation longitudinale. A faible pompage, celle du niveau hyperfin supérieur est cinq fois plus grande que celle de l'autre niveau, les deux orientations ayant de plus des signes opposés (voir Appendice V) :

$$\langle F_1 S_z \rangle = -5 \langle F_2 S_z \rangle$$

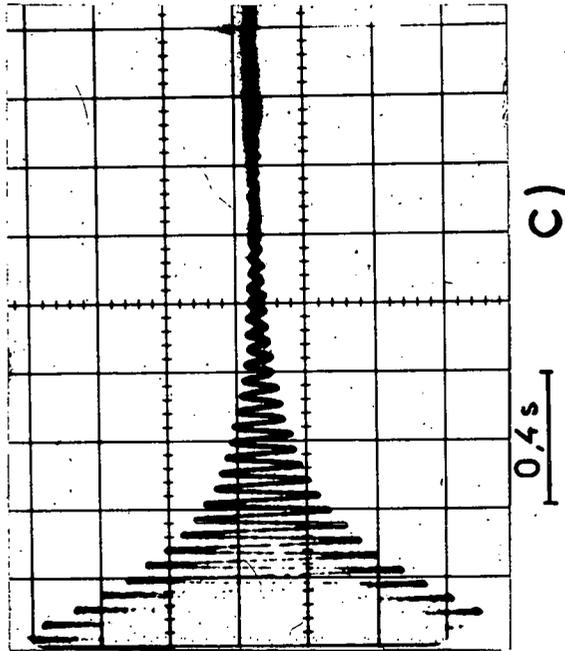
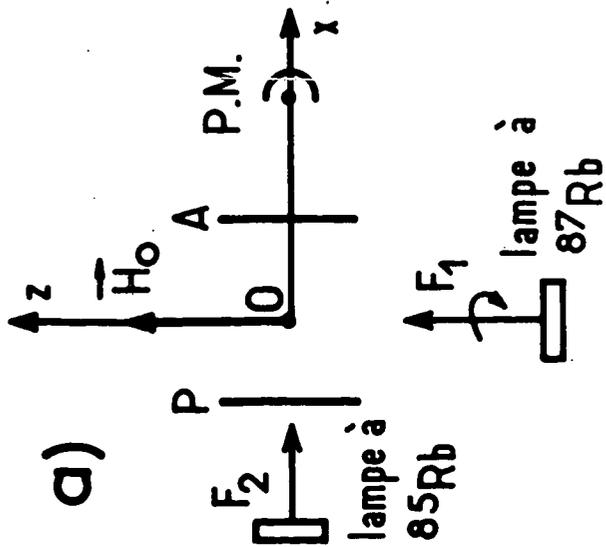
- A l'instant $t = 0$, le faisceau F_1 est obturé et un pulse $\pi/2$ est appliqué aux atomes de façon à transférer leur orientation dans la direction Ox. On crée ainsi une orientation transversale principalement dans le niveau hyperfins supérieur du Rb.

L'évolution de cette orientation est détectée par le faisceau non résonnant F_2 suivant la méthode décrite au paragraphe précédent. Cette détection étant deux fois plus sensible à l'orientation du niveau de F maximum (cf. équation (X,A,3), laquelle est par ailleurs, comme nous venons de le voir, beaucoup plus importante que celle de l'autre niveau, on peut finalement considérer que dans cette expérience on détecte pratiquement l'orientation du niveau hyperfin supérieur uniquement. On étudie l'évolution de l'orientation de ce niveau successivement en présence du champ \vec{H}_0 et des champs fictifs \vec{H}_f et \vec{H}'_f et on compare le signal transitoire détecté à l'oscilloscope dans ces deux expériences en mesurant les constantes de temps $T_2(H_0)$ et $T_2(H_f, H'_f)$.

2) Résultats de l'expérience

Les figures 57-c et 57-d montrent les enregistrements représentant la précession du moment transversal dans le niveau hyperfin supérieur du ^{87}Rb pour les deux expériences schématisées par les figures 57-a et 57-b. La température de la cellule est égale à 45°C . On constate immédiatement, conformément aux prévisions théoriques, un net allongement du temps de relaxation de l'orientation transversale lorsqu'on passe du montage 57-a au montage 57-b.

Champ magnétique réel



Champs magnétiques fictifs

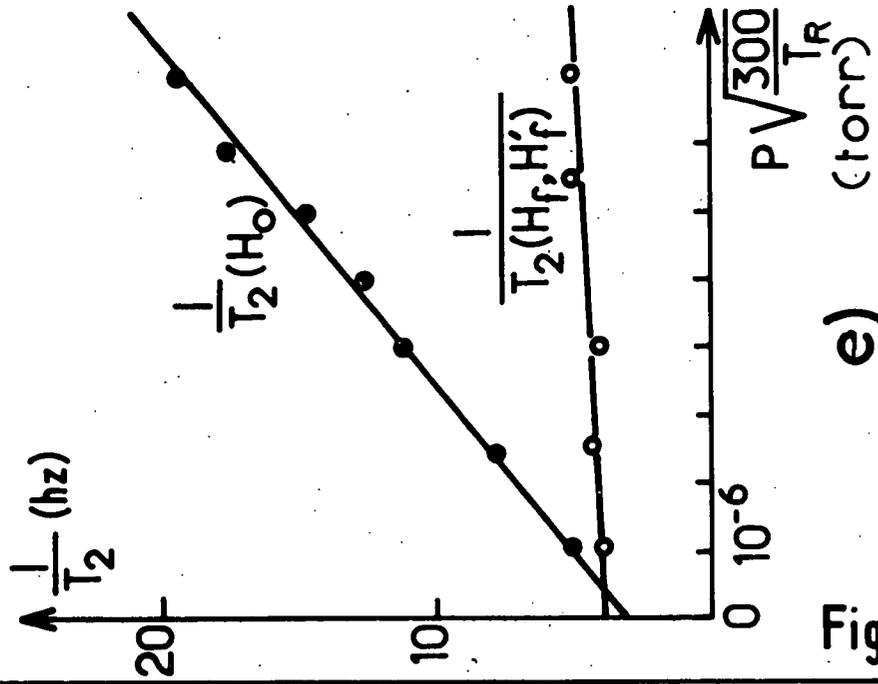
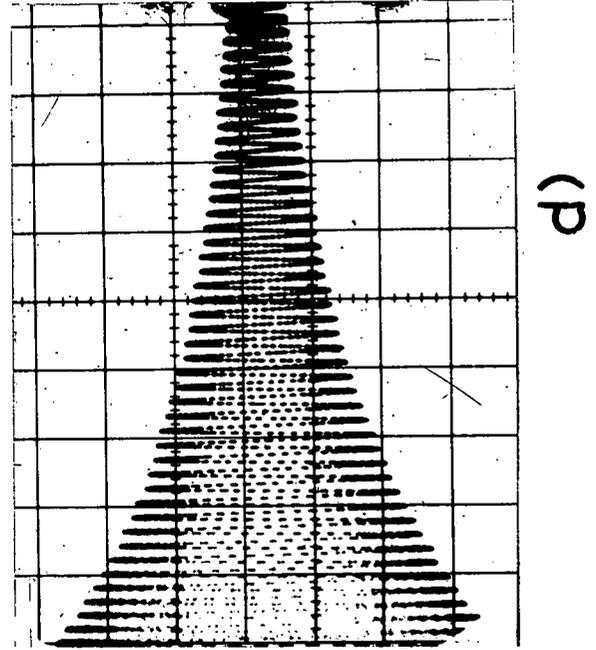
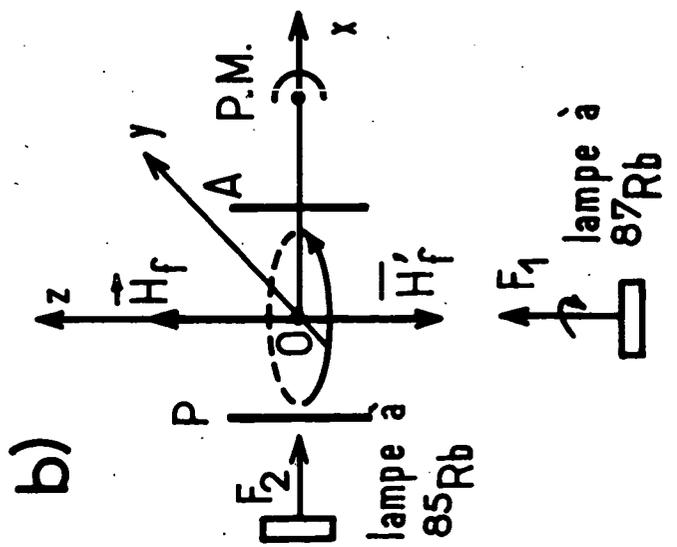


Fig. 57

e)

Nous avons recommencé la même expérience pour diverses valeurs de la température T_R de la cellule (donc du nombre d'atomes présents) et nous avons mesuré pour chacune des températures les constantes de temps $T_2(H_0)$ et $T_2(H_f, H'_f)$. Nous avons reporté sur la figure 57-e l'inverse de ces constantes de temps en fonction du paramètre $p\sqrt{\frac{300}{T_R}}$. p représente la pression de la vapeur saturante du rubidium que l'on peut déterminer à partir de T_R à l'aide de tables (⁹⁷). La pression étant proportionnelle au nombre N_1 d'atomes présents dans la cellule et $1/\sqrt{T_R}$ à la vitesse relative moyenne des atomes \bar{v} , la quantité $p\sqrt{\frac{300}{T_R}}$ est en fait proportionnelle à la constante d'échange de spin $\frac{1}{T_{11}} = N_1\sigma_e\bar{v}$. On constate sur la figure 57-e que $\frac{1}{T_2(H_0)}$ varie bien comme $\frac{1}{T_{11}}$ alors que $\frac{1}{T_2(H_f, H'_f)}$ reste sensiblement indépendant de la température et garde une valeur de l'ordre de 4 à 5 Hz correspondant à l'inverse du temps de relaxation sur les parois de la cellule. On vérifie ainsi l'ensemble des résultats théoriques établis au § V-C-2.

C H A P I T R E X I

LES RESONANCES HYPERFINES OBSERVABLES SUR DES ATOMES ^{87}Rb HABILLES PAR UN CHAMP DE RADIOFREQUENCE

Ce chapitre est consacré à l'étude expérimentale des transitions hyperfines d'atomes de ^{87}Rb interagissant avec un champ de radiofréquence. Nous commencerons par donner une description générale du montage expérimental et discuterons les principales caractéristiques des résonances hyperfines observables sur l'atome libre (§ XI-A). Puis nous étudierons le spectre hyperfin d'atomes ^{87}Rb habillés par un champ de radiofréquence polarisé linéairement (§ XI-B). Nous mettrons notamment en évidence la réduction de l'écartement Zeeman des raies lorsque le champ habillant est perpendiculaire au champ statique et nous vérifierons la dépendance de l'intensité des diverses raies en fonction de ω_1/ω tant sur la bande centrale que sur les premières bandes latérales. Au § XI-C, nous décrirons l'effet d'inhomogénéités magnétiques sur la largeur de la raie $0 \leftrightarrow 0$ d'atomes de ^{87}Rb habillés par un champ de radiofréquence en polarisation π . Nous vérifierons à cette occasion les principaux effets prévus théoriquement au chapitre VII (notamment la réduction de la sensibilité du système aux champs magnétiques perturbateurs lorsqu'on diminue, grâce au couplage avec le champ habillant, le moment magnétique de l'atome). Enfin, nous décrirons au § XI-D les principales caractéristiques du spectre hyperfin en présence d'un champ de radiofréquence tournant (étude du diagramme Zeeman en présence des champs équivalents opposés \vec{H}_f et \vec{H}'_f dans les deux niveaux hyperfins).

XI-A. DESCRIPTION GENERALE DU MONTAGE EXPERIMENTAL ET PRINCIPALES CARACTERISTIQUES DES RESONANCES HYPERFINES OBSERVEES

Le montage expérimental utilisé pour l'étude des transitions hyperfines du rubidium est classique (⁹⁸). Nous l'avons schématisé sur la figure 58-a : il se constitue essentiellement d'un appareillage hyperfréquence destiné à produire le champ induisant les transitions hyperfines à la fréquence 6834,683 MHz du ^{87}Rb et d'un dispositif de pompage optique permettant de réaliser une différence de populations hyperfines dans l'état fondamental et de détecter les modifications de population produites à résonance par le champ hyperfréquence.

1) La réalisation du champ hyperfréquence.

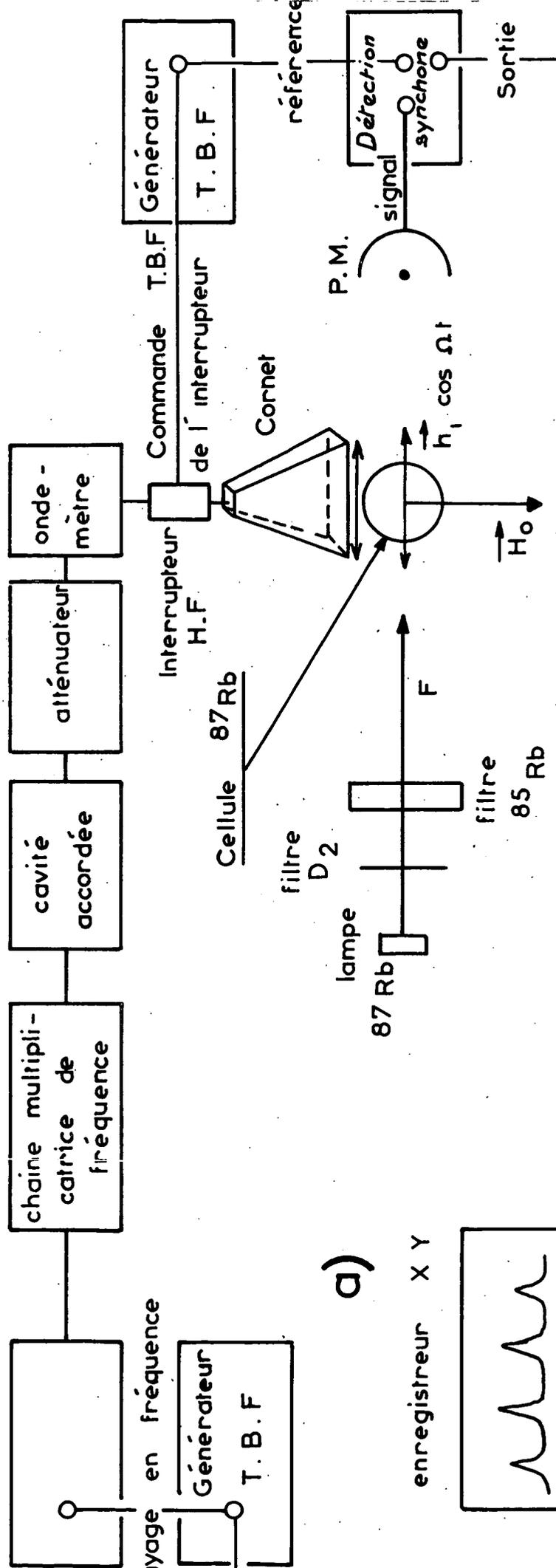
Il est produit à partir d'un oscillateur à quartz de fréquence 4.996113 MHz, stabilisé en température par un thermostat (oscillateur PHS 108A de la C.S.F.). Une chaîne multiplicatrice de fréquence permet d'obtenir, à partir de cet oscillateur, la fréquence de résonance hyperfine du ^{87}Rb : un premier étage multiplicateur à transistor multiplie la fréquence initiale par un facteur 12; le champ ainsi obtenu à 60 MHz est amplifié avant d'attaquer une diode "Snap-off" (Hewlett-Packard) qui fournit un très grand nombre d'harmoniques à des fréquences multiples de 60 MHz. L'harmonique 114 qui correspond à la fréquence de résonance du Rb est isolé des autres à l'aide d'une cavité résonnante accordée. Un atténuateur hyperfréquence assure ensuite le réglage de l'amplitude du champ qui sera envoyé sur les atomes. Un ondemètre de type Hewlett-Packard (modèle J 532A) permet de contrôler grossièrement la fréquence de ce champ et de vérifier notamment qu'il oscille sur le bon harmonique de la fréquence initiale. Enfin, le signal ainsi produit est envoyé sur un cornet hyperfréquence à l'aide duquel on réalise une onde progressive irradiant la cellule de résonance. Cette onde est polarisée linéairement, ses champs électriques et magnétiques étant respectivement parallèles au petit et au grand côté de la section rectangulaire du cornet (voir figure 58-a).

La puissance d'hyperfréquence disponible, de l'ordre du mWatt, est très largement suffisante pour saturer les transitions hyperfines du Rb (une atténuation du champ de l'ordre de 25 à 30 db est nécessaire si l'on veut éviter un élargissement radiatif des résonances). La stabilité en fréquence du champ doit être très bonne car, comme nous le verrons plus loin, la largeur des raies atomiques est très faible. Une stabilité de l'ordre du Hz sur quelques secondes à la fréquence finale est indispensable. Cela correspond à une stabilité relative de l'ordre de 10^{-10} pour le pilote à quartz à l'origine de la chaîne, qui est largement assurée par le constructeur.

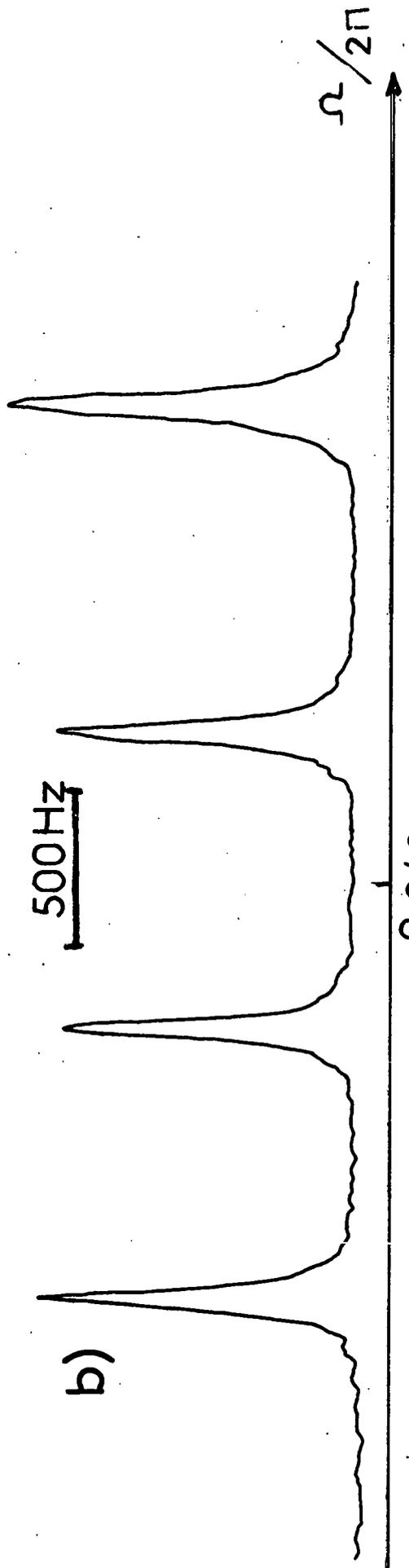
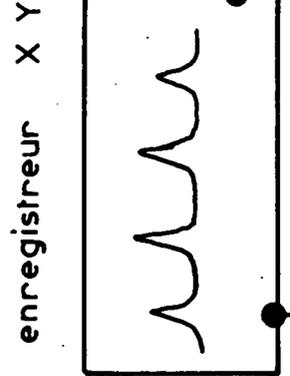
La fréquence $\Omega/2\pi$ du champ hyperfréquence est mesurée à l'aide d'un convertisseur de fréquence suivi d'un compteur de fréquence Hewlett-Packard. La fréquence de l'oscillateur à quartz peut être réglée sur une plage de quelques Hz en appliquant une tension extérieure sur une Varicap en série avec le quartz de l'oscillateur. En attaquant cette Varicap à l'aide d'un signal en dent de scie ayant une période d'environ 1.000 sec et produit par un générateur TBF, on réalise un balayage très lent de l'hyperfréquence sur une plage de quelques KHz autour de la fréquence $\Omega_0/2\pi$ de la transition $0 \leftrightarrow 0$ du ^{87}Rb .

Oscillateur a

Quartz 5 MHz



a)



b)

Fig-58

2) Le pompage hyperfin du ^{87}Rb (⁹⁸)

Le faisceau de pompage est produit par une lampe à ^{87}Rb . La composante D_2 de la lumière résonnante est isolée à l'aide d'un filtre interférentiel. Le faisceau traverse ensuite une cellule à ^{85}Rb portée à une température de l'ordre de 80°C qui réabsorbe la composante hyperfine correspondant au niveau hyperfin supérieur de l'état fondamental du ^{87}Rb . La lumière transmise par le filtre à ^{85}Rb pompe donc plus efficacement le niveau hyperfin inférieur des atomes contenus dans la cellule de résonance et on réalise ainsi une inversion des populations des deux niveaux hyperfins.

Le faisceau F n'est pas polarisé. En plus de la différence de population globale entre les niveaux hyperfins, il crée également dans chacun de ces niveaux un alignement longitudinal dans sa direction de propagation qui se traduit par une inégalité des populations des sous-niveaux de $|m_F|$ différents. Il faut tenir compte de cet alignement pour calculer avec précision les intensités des différentes raies du spectre Zeeman hyperfin.

3) La détection des résonances hyperfines

La cellule placée dans un champ magnétique \vec{H}_0 et pompée optiquement par le faisceau F est irradiée par le champ hyperfréquence décrit plus haut. Lorsque $\Omega/2\pi$ correspond à l'une des fréquences des transitions hyperfines dans \vec{H}_0 , la différence de populations induite par le pompage entre les niveaux hyperfins est modifiée, ce qui se traduit par une variation de l'intensité de la lumière transmise par la cellule de résonance. On détecte cette lumière à l'aide d'un photomultiplicateur. Afin d'augmenter le rapport signal/bruit de la détection, on "hache" l'hyperfréquence à l'aide d'un interrupteur hf commandé par un générateur T.B.F.; on réalise ainsi des "créneaux" d'hyperfréquence à une fréquence de répétition très basse (2 Hz). La période des créneaux doit en effet être très longue devant les diverses constantes de temps de relaxation atomique afin que les atomes puissent "suivre" les variations du champ hyperfréquence sans que les signaux ne soient déformés par la technique de détection employée. Les signaux optiques, modulés à la fréquence des créneaux, sont analysés à l'aide d'une détection synchrone dont la référence est alimentée par le signal T.B.F. commandant l'interrupteur hf (voir figure 58-a); la sortie de cette détection synchrone est envoyée à la voie Y d'un enregistreur tandis que sa voie X est reliée à la sortie du générateur T.B.F. commandant le balayage en fréquence du pilote à quartz.

On obtient ainsi directement l'enregistrement du spectre hyperfin du ^{87}Rb avec un excellent rapport signal/bruit : la figure 58-b représente le signal obtenu lorsque le champ hyperfréquence est en polarisation $\sigma^{(S)}$ (\vec{H}_0 et \vec{h}_1 perpendiculaires); on observe bien les quatre raies de résonance équidistantes $\Delta m_F = \pm 1$ prévues par la théorie (figure 31-b'). Avant de décrire ce que devient ce spectre en présence d'un champ habilitant, nous allons donner quelques précisions sur la largeur des résonances observées.

4) La largeur des résonances hyperfines détectées

A la limite où l'intensité du faisceau de pompage et du champ hf est suffisamment faible, la largeur des résonances reste liée à deux causes de natures très différentes : elle dépend d'une part du temps de relaxation de la cohérence hyperfine entre les niveaux concernés par la transition; d'autre part, elle peut être affectée par l'effet Doppler dû au déplacement des atomes dans la cellule de résonance.

Nous avons utilisé, comme pour les expériences décrites au chapitre précédent, des cellules contenant uniquement la vapeur alcaline, sans gaz tampon. On peut montrer que dans de telles conditions, l'élargissement Doppler est "rétréci par le mouvement" à condition que le diamètre d de la cellule soit inférieur à la longueur d'onde $\lambda = \frac{2\pi c}{\Omega} \sim 5 \text{ cm}$ du champ hyperfréquence (⁸⁶); plus précisément, le profil d'une raie atomique doit présenter un "socle" ayant la largeur Doppler (de l'ordre de 10 KHz) auquel vient s'ajouter un "pic" central non élargi par effet Doppler. L'intensité du pic central rapportée à celle du "socle" est d'autant plus grande que le rapport d/λ est plus petit. Nous avons donc, pour nos expériences, été amenés à utiliser de petites cellules de 3 cm de diamètre seulement, au lieu des cellules de 6 cm des expériences décrites au chapitre X. Pour de telles cellules, le "socle" est très faible et l'on peut considérer que l'effet Doppler est pratiquement supprimé.

Seule subsiste alors la largeur intrinsèque de la résonance due à la relaxation de la cohérence hyperfine atomique sur les parois de la cellule. La théorie de la relaxation sur des parois paraffinées prévoit des largeurs de raie extrapolées à intensité d'hyperfréquence nulle de l'ordre de quelques Hz seulement; des raies aussi fines n'ont pu être obtenues expérimentalement : la figure 58-b montre que les largeurs de raies observées sont typiquement de l'ordre de 60 Hz. Compte tenu des diverses causes d'élargissement connues (largeur liée à l'excitation optique ou à la saturation du champ hf), on arrive à des largeurs extrapolées de l'ordre de 40 à 50 Hz, bien supérieures aux valeurs attendues. Il semble donc qu'un mécanisme de re-

laxation d'une origine inconnue affecte la cohérence hyperfine du Rb dans nos expériences. Quoiqu'il en soit, les largeurs des raies que nous avons obtenues restent, dans l'absolu, très faibles et ne peuvent s'observer qu'en raison des précautions particulières que nous avons prises pour éviter l'effet des perturbations magnétiques de toutes sortes (blindage magnétique). Les raies sont en particulier suffisamment fines pour permettre la réalisation de l'ensemble des expériences prévues sur l'atome habillé.

XI-B. LE SPECTRE HYPERFIN D'ATOMES DE ^{87}Rb HABILLES PAR UN CHAMP DE RADIOFREQUENCE LINEAIRE

Irradions à présent la cellule de résonance simultanément avec le champ hf décrit au paragraphe précédent et un champ radiofréquence $\vec{H}_1 \cos \omega t$ polarisé linéairement dont la fréquence ω , typiquement de l'ordre de quelques KHz, est très faible devant Ω_0 tout en étant très supérieure à la fréquence de Larmor ω_0 des atomes. Nous nous proposons de vérifier expérimentalement les principaux effets théoriques prévus au § VI-B : modification de la position des résonances hyperfines sous l'effet du couplage avec le champ habillant, variation des probabilités de transitions hyperfines, apparition de nouvelles résonances sur des bandes latérales, etc.

1) Etude du spectre sur la bande d'absorption centrale

a) Réduction de l'effet Zeeman pour un champ habillant en polarisation σ

Supposons tout d'abord que le champ habillant soit en polarisation σ (perpendiculaire à \vec{H}_0) : on doit alors observer une réduction de l'écartement Zeeman des raies atomiques liée à la diminution simultanée du facteur de Landé dans les deux niveaux hyperfins (voir § VI-B-3-c) : nous avons, sur la figure 59, représenté le spectre observé dans le cas où le champ hyperfréquence $\vec{h}_1 \cos \Omega t$ est parallèle au champ habillant (voir le dispositif expérimental sur la figure 59-a) : l'enregistrement 59-b est relatif au spectre de l'atome libre; il est identique à celui de la figure 58-b; nous appellerons $s_0 = 2\omega_0$ l'écartement de deux raies consécutives de ce spectre. Les enregistrements des figures 59-c, d, e, f, g correspondent à des amplitudes croissantes du champ habillant, le champ statique H_0 étant maintenu constant : on constate

bien que l'écartement $s = 2\bar{\omega}_0$ des raies devient inférieur à s_0 , les différentes résonances se rapprochant les unes des autres et venant se confondre pour la valeur de ω_1/ω correspondant à la première annulation du facteur de Landé de l'atome habillé (figure 59-f). Les raies se séparent ensuite à nouveau lorsque le facteur de Landé change de signe, etc.

Sur la figure 60, nous avons reporté les points expérimentaux correspondant aux valeurs du rapport s/s_0 déduit de ces enregistrements. On constate que les points coïncident bien avec la courbe théorique représentant les variations de $J_0(\gamma H_1/\omega)$. (Sur cette figure, les triangles correspondent aux valeurs de s/s_0 mesurées d'après une expérience analogue réalisée sur les transitions hyperfines de l'hydrogène par C. AUDOIN et J.P. SCHERMANN (³¹) : les points expérimentaux relatifs à ^{87}Rb et à ^1H tombent bien sur la même courbe théorique.)

Nous avons recommencé la même expérience dans le cas où, le champ habillant étant toujours en polarisation σ , le champ hyperfréquence est parallèle à \vec{H}_0 (polarisation $\sigma, \pi^{(S)}$). On observe alors sur la bande centrale un spectre de trois raies équidistantes dont l'écartement varie encore comme $J_0(\gamma H_1/\omega)$.

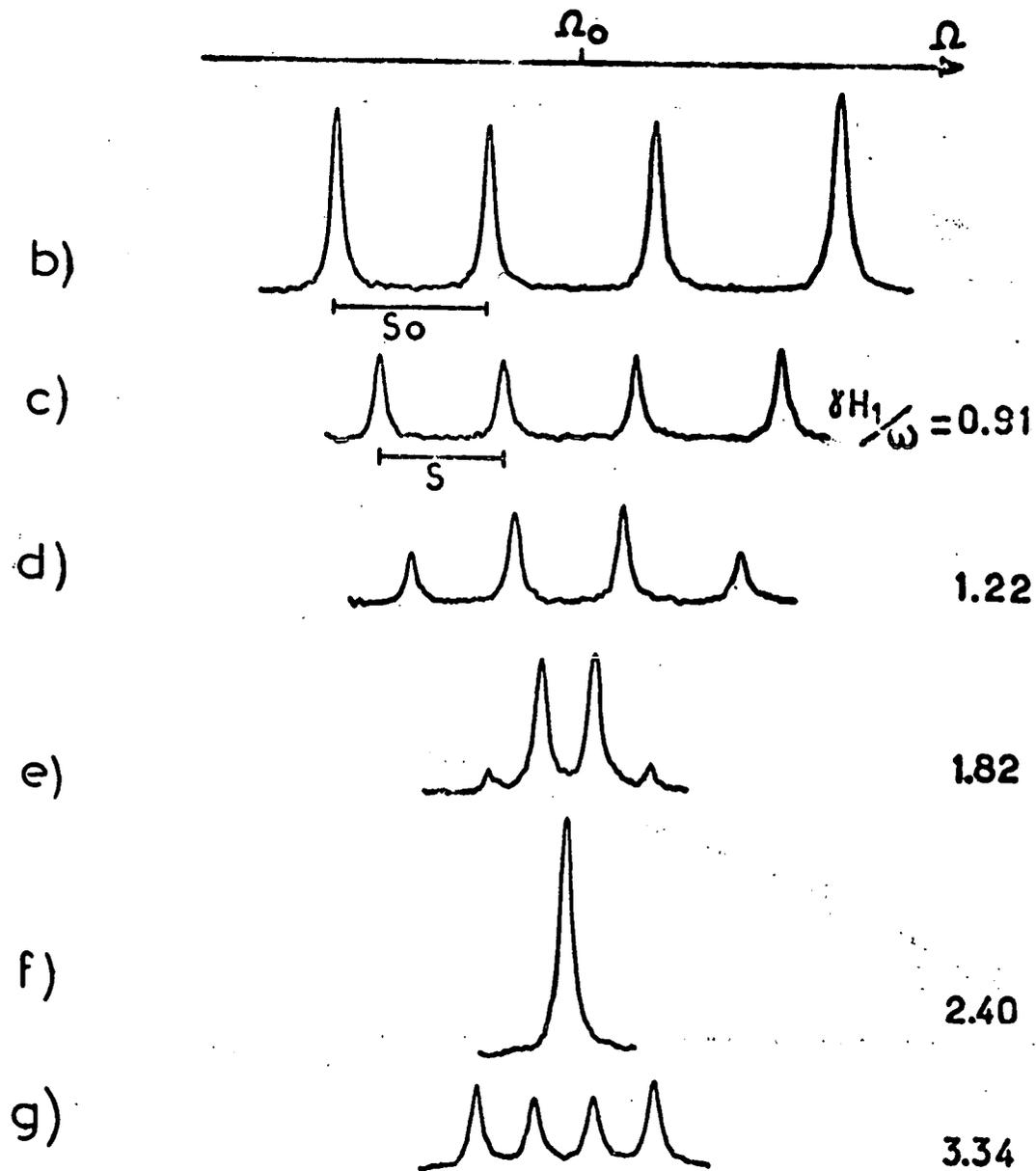
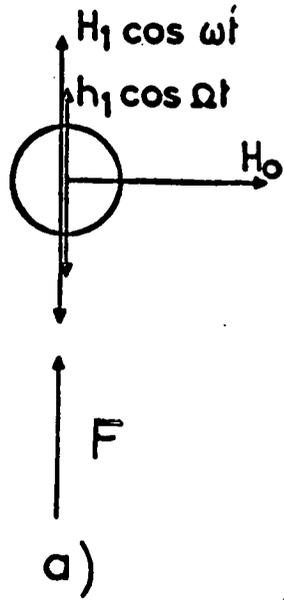
Par contre, nous avons vérifié que lorsque le champ habillant est en polarisation π , l'écartement des raies du spectre demeure indépendant du couplage avec le champ habillant (le facteur de Landé n'est alors pas modifié; cf. § V-A-2).

b) Intensité des raies sur la bande d'absorption centrale

La théorie de l'atome habillé prévoit non seulement une modification éventuelle de la séparation des raies atomiques, mais aussi une altération de leur intensité due à la "renormalisation" des états propres sous l'effet du couplage avec le champ habillant. Cette altération apparaît clairement sur la figure 59 où l'on voit les intensités des diverses raies se modifier lorsque ω_1/ω augmente. Nous avons cherché, en mesurant les intensités de ces raies, à vérifier la dépendance vis-à-vis de ω_1/ω des probabilités de transition données pour l'atome habillé par les tableaux de l'Appendice VI.

Nous devons remarquer que l'intensité des résonances dépend non seulement de ces probabilités de transition, mais aussi des différences de populations induites par le pompage optique entre les différents niveaux atomiques habillés. Or, ce pompage dépend lui-même du couplage avec le champ habillant, à moins que le faisceau F ne soit parallèle à ce champ (voir par exemple l'équation (V,A,34) relative au pompage en alignement sur l'atome habillé). Nous avons donc toujours réalisé un pompage parallèle à $\vec{H}_1 \cos \omega t$ de façon à bien mettre en évidence un effet lié à la variation des probabilités de transitions atomiques, à l'exclusion de tout effet dû à la modification du pompage.

Fig_59



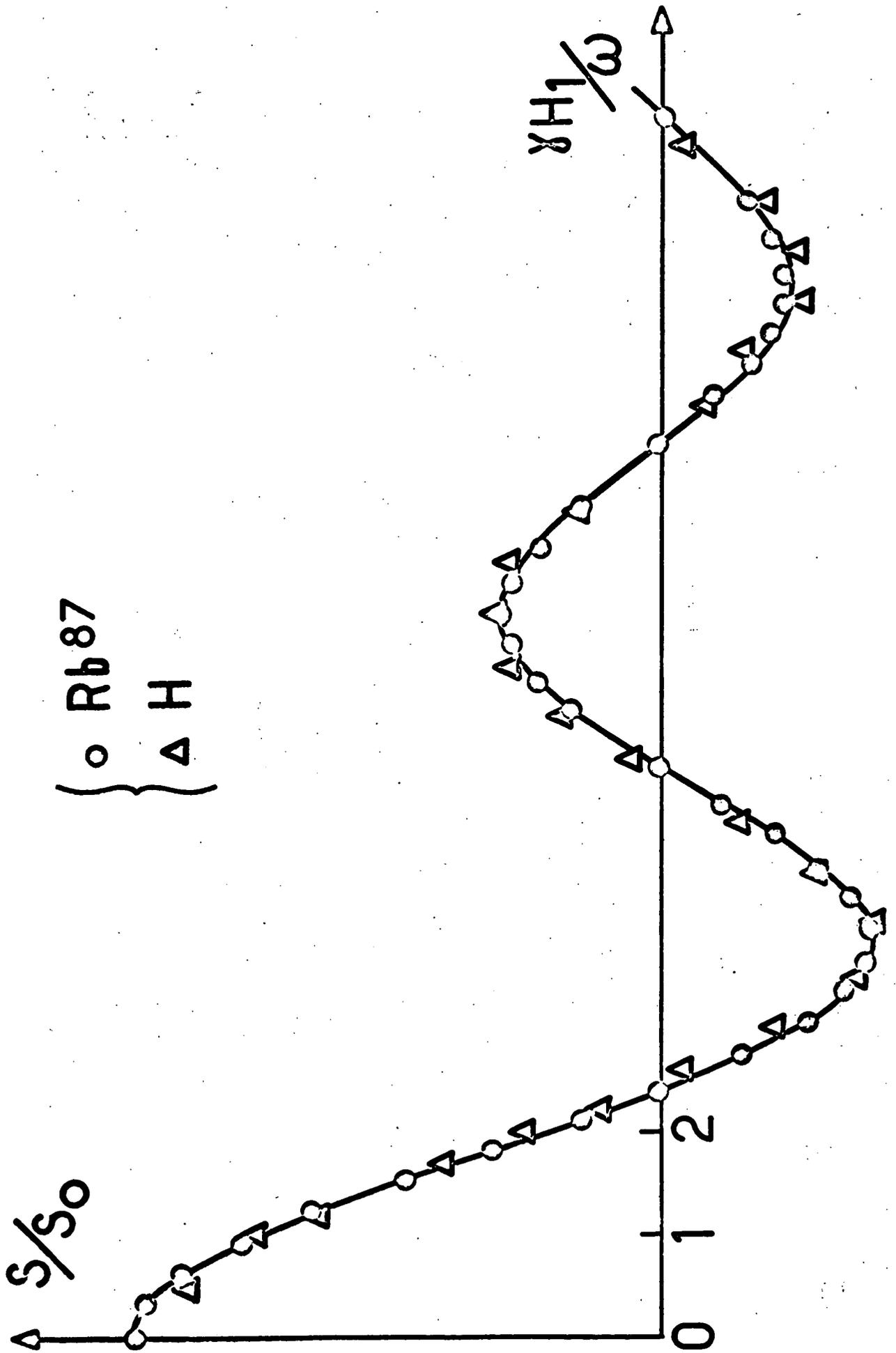


Fig. 60

Les expériences ont été réalisées de la façon suivante : fixant l'hyperfréquence à un niveau tel que la résonance hyperfine étudiée n'est pas saturée, on détermine l'intensité de cette résonance en l'absence de champ habillant; on mesure ensuite l'intensité de la même résonance en présence du champ de radiofréquence pour des amplitudes croissantes de ce champ; on effectue ensuite le rapport entre l'intensité de la raie en présence et en absence du champ habillant et on obtient ainsi une quantité I sans dimension que nous appellerons l'intensité relative de la résonance de l'atome habillé; on compare enfin les variations théoriques et expérimentales de cette intensité relative. L'expérience est réalisée sur chacune des résonances apparaissant dans le spectre pour les quatre cas de configuration de champs $(\pi, \pi^{(S)})$, $(\pi, \sigma^{(S)})$, $(\sigma, \sigma^{(S)})$ et $(\sigma, \pi^{(S)})$.

α) Configuration $(\pi, \pi^{(S)})$

Le champ habillant et le champ "sonde" sont alors parallèles au champ \vec{H}_0 (figure 61-a). Le spectre est constitué d'une raie centrale $0 \leftrightarrow 0$ (appelée α sur la figure) et de deux raies $1 \leftrightarrow 1$ (appelée β) et $-1 \leftrightarrow -1$ d'égales intensités. Nous avons, sur les figures 61-b et c, reporté les intensités relatives I_α et I_β de ces raies en présence d'un champ habillant d'amplitude croissante. I_α et I_β doivent être respectivement proportionnelles aux probabilités de transition $|\overline{t}_{00}^{(0)}(\pi, \pi^{(S)})|^2$ et $|\overline{t}_{11}^{(0)}(\pi, \pi^{(S)})|^2 = |\overline{t}_{-1,-1}^{(0)}(\pi, \pi^{(S)})|^2$ du tableau n° 1 de l'Appendice VI : on vérifie bien que l'intensité de la raie $0 \leftrightarrow 0$ (figure 61-b) est indépendante du couplage avec le champ habillant, comme le prévoit la théorie (voir § VI-B-3-d); par contre, l'intensité I_β de la raie $1 \leftrightarrow 1$ varie conformément à la théorie comme la fonction $J_0^2(2 \frac{\omega_1}{\omega})$ représentée en traits pleins sur la figure 61-c.

β) Configuration $(\pi, \sigma^{(S)})$

On tourne à présent le champ sonde de $\pi/2$ de façon à le rendre perpendiculaire à \vec{H}_0 (figure 62-a). Le spectre est alors constitué de quatre raies, symétriques deux à deux par rapport à la fréquence $\Omega = \Omega_0$. La raie α correspond aux deux transitions $0 \leftrightarrow 1$ et $1 \leftrightarrow 0$. L'intensité I_α de la résonance de l'atome habillé (toujours rapportée à celle de la résonance correspondante de l'atome libre) doit à présent être une combinaison linéaire

$$I_\alpha = \alpha_{01} |\overline{t}_{01}^{(0)}(\pi, \sigma^{(S)})|^2 + \alpha_{10} |\overline{t}_{10}^{(0)}(\pi, \sigma^{(S)})|^2$$

des probabilités de transitions déduites du tableau n° 2 de l'Appendice VI. Or il se trouve que ces probabilités de transition varient toutes deux comme $J_0^2(\frac{\omega_1}{\omega})$. L'intensité relative I_α de la résonance doit donc être précisément égale à $J_0^2(\frac{\omega_1}{\omega})$. C'est bien ce

qu'on vérifie sur la figure 62-b où les points sont expérimentaux et la courbe théorique.

La raie β correspond, quant à elle, à la transition simple $1 \leftrightarrow 2$. Son intensité relative doit être proportionnelle à $|\bar{t}_{12}^{(0)}(\pi, \sigma^{(S)})|^2$, c'est-à-dire, d'après le tableau n° 2 de l'Appendice VI, égale à $J_0^2(3 \frac{\omega_1}{\omega})$. La figure 62-c représente les variations théoriques (courbes en traits pleins) et expérimentales de I_β : l'accord entre la théorie et l'expérience est encore satisfaisant.

γ) Configuration $(\sigma, \sigma^{(S)})$

Revenons au cas où le champ habillant et le champ "sonde" sont parallèles entre eux et perpendiculaires à \vec{H}_0 (figure 63-a). Les deux raies médianes du spectre correspondent à présent à la somme de trois contributions (voir § VI-B-3-c) : par exemple à la raie α sont associées les transitions $-1 \leftrightarrow 2$, $0 \leftrightarrow 1$ et $1 \leftrightarrow 0$. Il est facile de voir sur le tableau n° 3 de l'Appendice VI que chacune des probabilités de transition correspondantes a une dépendance différente en ω_1/ω : on a

$$\frac{1}{4\mu_B^2 h_1^2} |\bar{t}_{-1,2}^{(0)}(\sigma, \sigma^{(S)})|^2 = \frac{3}{64} \left[1 - J_0\left(2 \frac{\omega_1}{\omega}\right) \right]^2$$

$$\frac{1}{4\mu_B^2 h_1^2} |\bar{t}_{01}^{(0)}(\sigma, \sigma^{(S)})|^2 = \frac{3}{32} J_0^2\left(2 \frac{\omega_1}{\omega}\right)$$

$$\frac{1}{4\mu_B^2 h_1^2} |\bar{t}_{10}^{(0)}(\sigma, \sigma^{(S)})|^2 = \frac{1}{32}$$

L'intensité relative I_α de la raie α , dans ces conditions, être une fonction compliquée de ω_1/ω constituée par une combinaison linéaire des trois probabilités de transitions précédentes

$$I_\alpha = \alpha_{-1,2} |\bar{t}_{-1,2}^{(0)}(\sigma, \sigma^{(S)})|^2 + \alpha_{01} |\bar{t}_{01}^{(0)}(\sigma, \sigma^{(S)})|^2 + \alpha_{10} |\bar{t}_{10}^{(0)}(\sigma, \sigma^{(S)})|^2$$

Les coefficients $\alpha_{-1,2}$, α_{01} et α_{10} qui interviennent dans l'expression de I_α dépendent des poids respectifs des trois transitions, c'est-à-dire des différences de populations induites par le pompage entre les niveaux concernés. Nous avons, sur la figure 63-b, reporté les valeurs expérimentales de I_α et dessiné, en traits pleins, la courbe théorique correspondante en ajustant les paramètres $\alpha_{-1,2}$, α_{01} et α_{10} à l'aide de deux points (en plus du point $\frac{\omega_1}{\omega} = 0$).



Intensité des raies sur la bande centrale ($r=0$)
Configuration $(\pi, \pi^{(S)})$

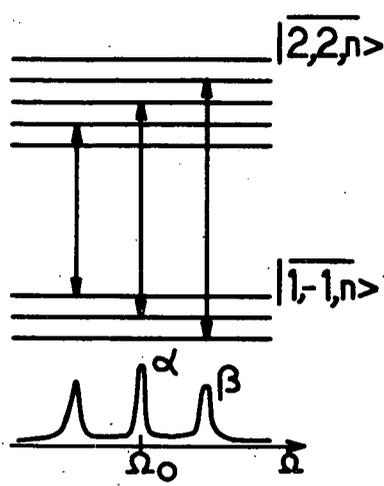
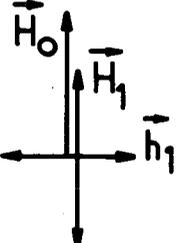
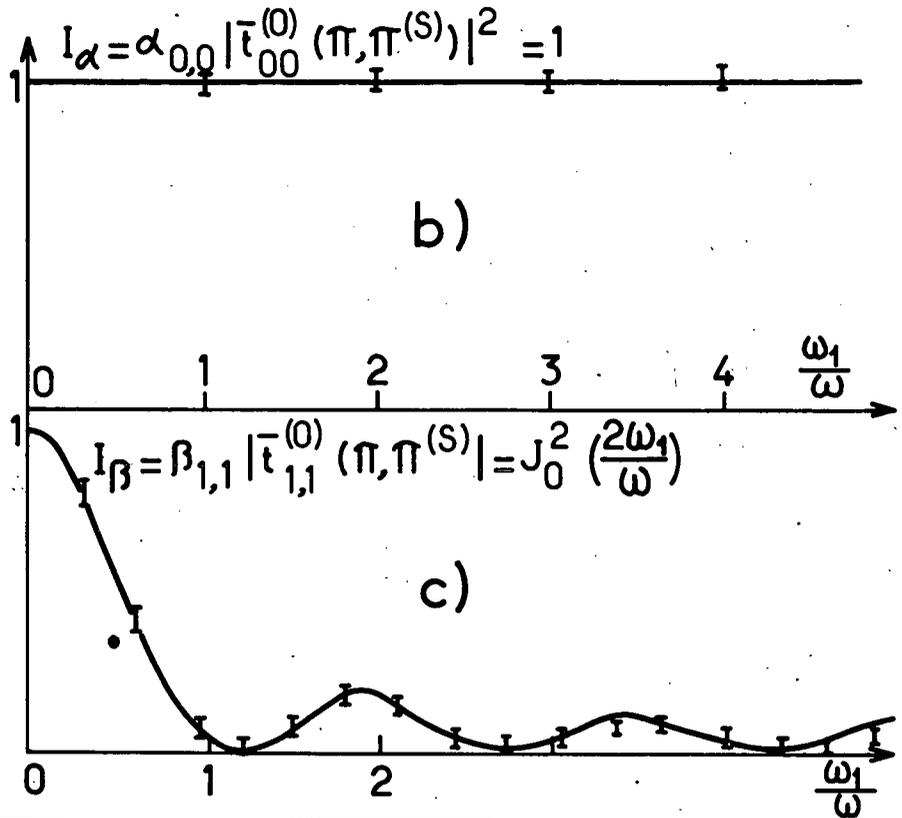


Fig - 61



Intensité des raies sur la bande centrale ($r=0$)
Configuration $(\pi, \sigma^{(S)})$

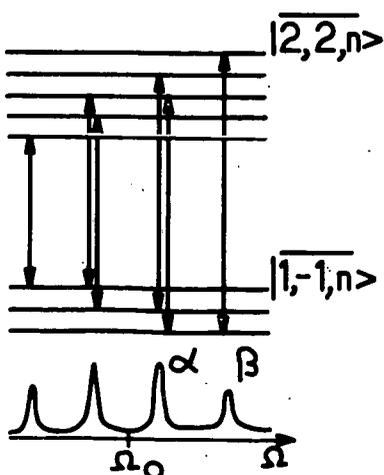
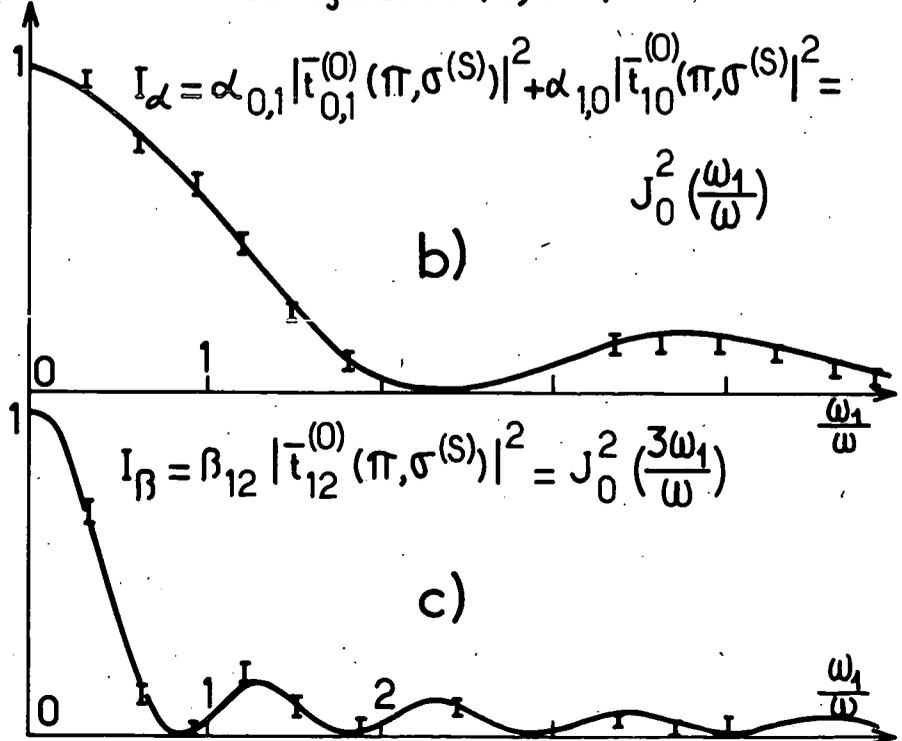
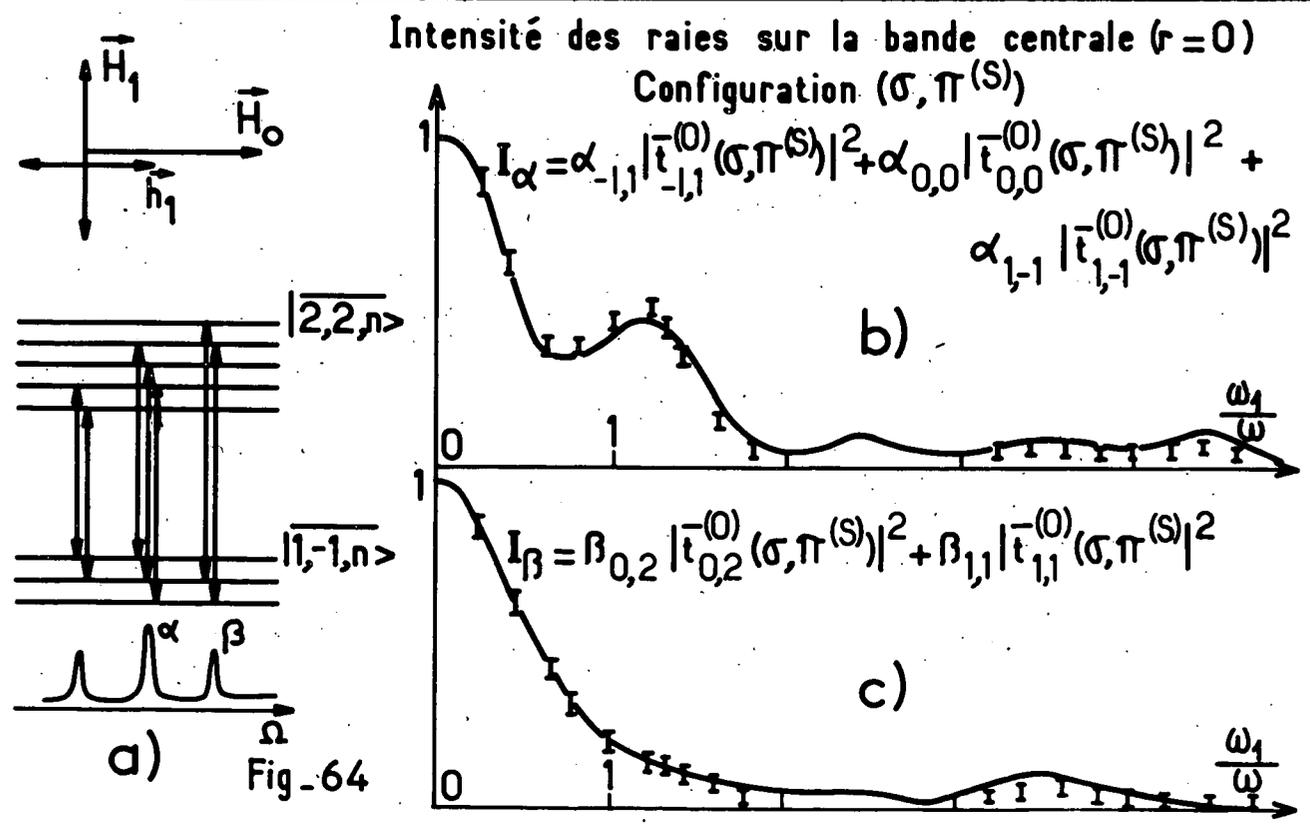
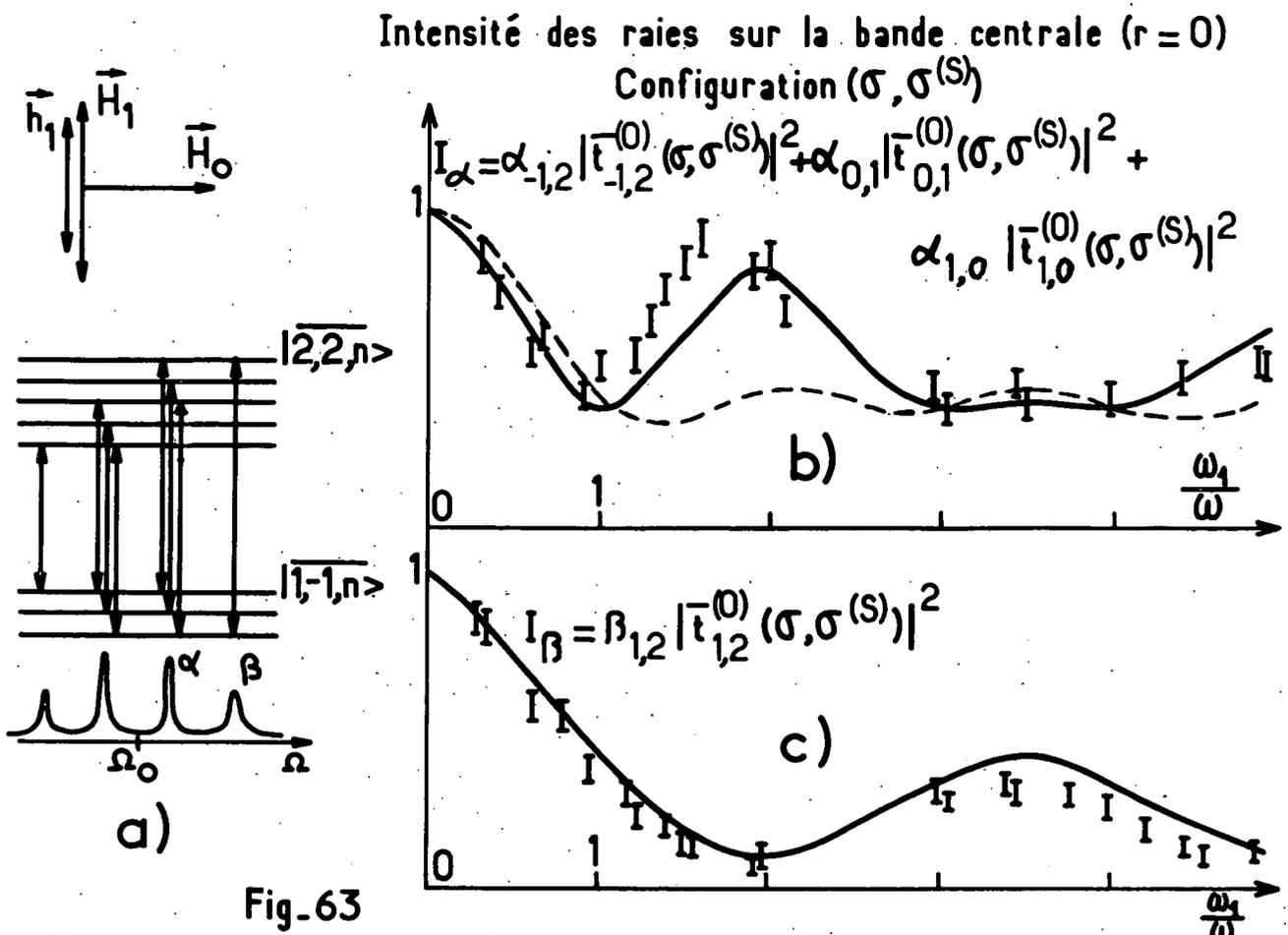


Fig - 62





Compte tenu des imprécisions que comporte une telle méthode, l'accord entre l'expérience et la théorie est satisfaisant.

Afin de bien mettre en évidence l'apparition de la transition $-1 \rightarrow 2$ interdite sur l'atome libre (voir § VI-B-3-c), nous avons également essayé d'ajuster les points expérimentaux à l'aide des deux seuls paramètres α_{01} et α_{10} en faisant $\alpha_{-1,2} = 0$, c'est-à-dire en négligeant la contribution de la transition $\Delta m = 3$. La courbe en pointillé de la figure 63-b, ajustée avec les points $\frac{\omega_1}{\omega} = 0$ et $\frac{\omega_1}{\omega} = 3$ diffère très appréciablement de la courbe en traits pleins et ne traduit plus correctement les variations expérimentales de I_α : en particulier, le maximum de I_α observé au voisinage de $\frac{\omega_1}{\omega} = 2$ peut être attribué à l'existence de la transition "interdite" $\Delta m = 3$ dont la probabilité est alors très importante.

Enfin, la raie extrême β du spectre de la figure 63-a est simple et son intensité I_β doit être proportionnelle à la probabilité de transition $|\overline{t}_{12}^{(0)}(\sigma, \pi^{(S)})|^2$. C'est bien ce que montre la figure 63-c sur laquelle les points sont expérimentaux et la courbe théorique.

δ) Configuration $(\sigma, \pi^{(S)})$

Le spectre est, dans ce cas, constitué de trois raies : la raie centrale α est triple et l'on peut écrire I_α comme une combinaison linéaire de $|\overline{t}_{-1,1}^{(0)}(\sigma, \pi^{(S)})|^2$, $|\overline{t}_{00}^{(0)}(\sigma, \pi^{(S)})|^2$ et $|\overline{t}_{1,-1}^{(0)}(\sigma, \pi^{(S)})|^2$. La figure 64-b représente les variations expérimentales et théoriques de I_α , la courbe théorique en traits pleins étant ajustée à l'aide d'un seul point en plus du point $\omega_1/\omega = 0$ (on a en effet $\overline{t}_{-1,1}^{(0)}(\sigma, \pi^{(S)}) = \overline{t}_{1,-1}^{(0)}(\sigma, \pi^{(S)})$ d'après le tableau n° 4 de l'Appendice VI et I_α ne dépend donc finalement que de deux paramètres ajustables).

Enfin, la raie latérale β a une intensité relative I_β qui se présente comme une combinaison linéaire de $|\overline{t}_{02}^{(0)}(\sigma, \pi^{(S)})|^2$ et $|\overline{t}_{11}^{(0)}(\sigma, \pi^{(S)})|^2$. Sur la figure 64-c ont été représentés les points expérimentaux et la courbe théorique ajustée à l'aide d'un seul point (en plus de l'origine) Ici encore, l'accord entre l'expérience et la théorie est satisfaisant.

Remarques :

Terminons cette étude de l'intensité des raies sur la bande d'absorption centrale par les remarques suivantes :

i) pour construire les courbes théoriques des figures 63 et 64, nous avons toujours supposé que les diverses transitions éventuellement confondues ajoutaient simplement leurs contributions au signal résonnant. Ce résultat n'est pas rigoureux et l'on sait bien

que dans le cas où plusieurs cohérences hyperfines sont excitées à la même fréquence, ces cohérences peuvent être couplées entre elles et les résonances correspondantes "interagir mutuellement", ce qui conduit à une intensité globale du signal résonnant différente de la somme des intensités associées à chaque transition. Nous avons, pour simplifier notre étude, négligé un tel effet. La coïncidence, généralement satisfaisante, entre les points expérimentaux et les courbes théoriques constatée sur les figures 63 et 64 montre que cet effet doit d'ailleurs être très faible; il permettrait peut-être d'expliquer cependant certains petits désaccords systématiques entre les résultats théoriques et expérimentaux observés sur ces figures.

ii) Signalons enfin une autre cause possible d'écart systématique entre l'expérience et la théorie : lorsque le champ de radiofréquence habillant devient intense, les inhomogénéités de ce champ peuvent devenir appréciables et constituer une cause de relaxation non négligeable des niveaux d'énergie de l'atome habillé (voir remarque, page 314). Il en résulte un élargissement parasite des raies de l'atome habillé, dépendant de l'amplitude de la radiofréquence; cet élargissement peut affecter l'intensité des raies pour des valeurs élevées de ω_1/ω . Afin de minimiser un tel effet, nous avons utilisé dans nos expériences des champs habillants de fréquence assez basse ($\omega/2\pi = 2700$ Hz) pour que la condition $\frac{\omega_1}{\omega} > 1$ puisse être réalisée avec des intensités relativement faibles de radiofréquence; les inhomogénéités du champ restent alors peu importantes et l'élargissement parasite des raies est, dans ces conditions, négligeable.

2) Etude du spectre sur les bandes latérales

Nous avons également étudié le spectre de l'atome habillé apparaissant sur les deux premières bandes latérales, autour des fréquences $\Omega = \Omega_0 + r\omega$ (avec $r = \pm 1, \pm 2$). Rappelons que ce spectre est associé soit à des transitions à plusieurs quanta impliquant l'absorption d'un photon du champ sonde et de r photons du champ habillant ($r > 0$), soit à des transitions Raman associées à l'absorption d'un photon du champ sonde et à l'émission induite simultanée de r photons habillants ($r < 0$) (cf. § VI-B-3).

a) Position des raies observables sur les bandes latérales pour les diverses configurations de champs

Sur la figure 65 ont été reportés les enregistrements des deux bandes latérales centrées autour des fréquences $\Omega = \Omega_0 - \omega$ et $\Omega = \Omega_0 - 2\omega$ pour les quatre configurations de champ étudiées. Conformément aux prévisions théoriques résumées sur la figure 33, on observe des doublets dans le cas de la configuration $(\pi, \pi^{(S)})$, des

$$\frac{\omega}{2\pi} = 2700 \text{ hz}$$

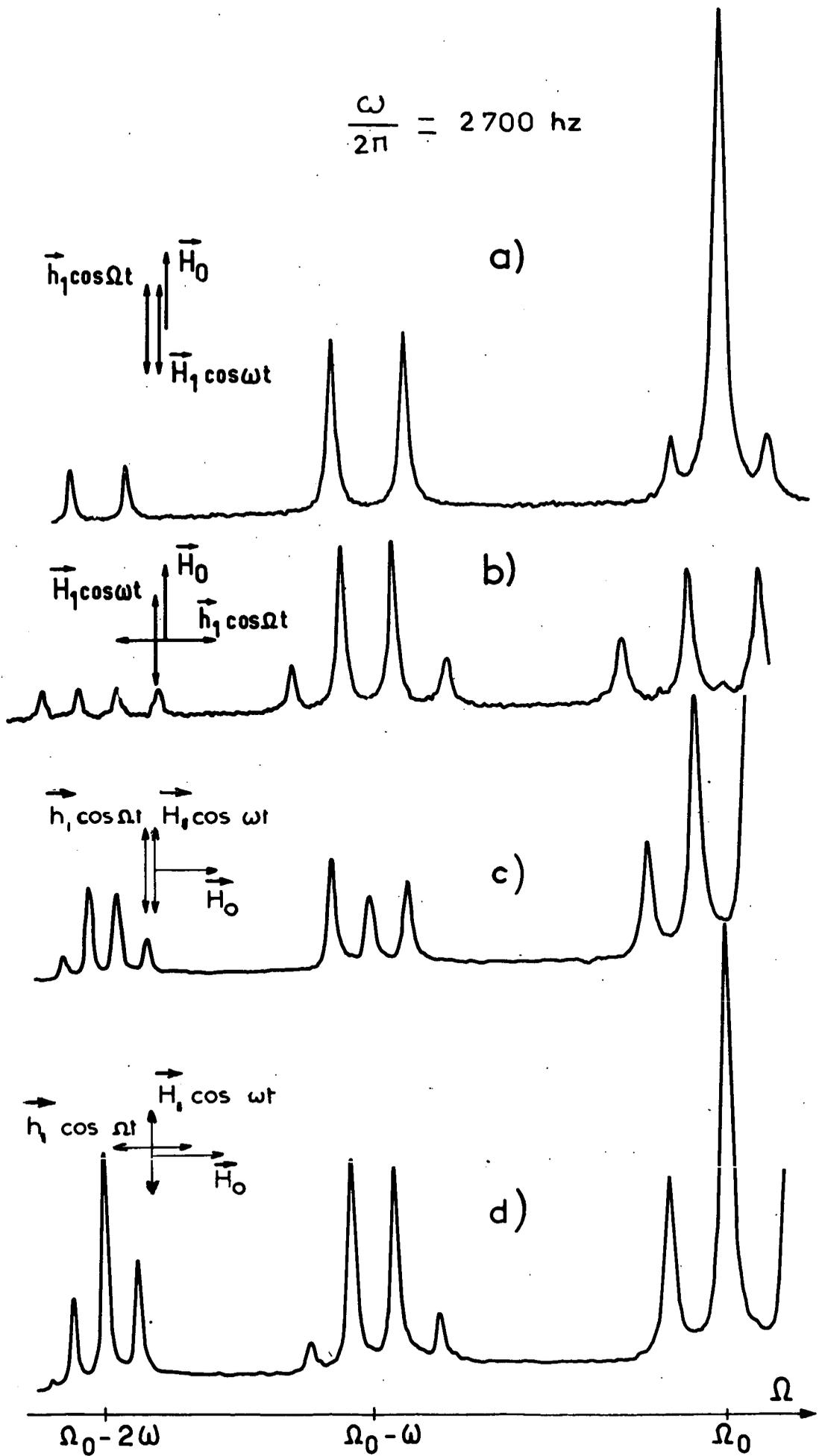
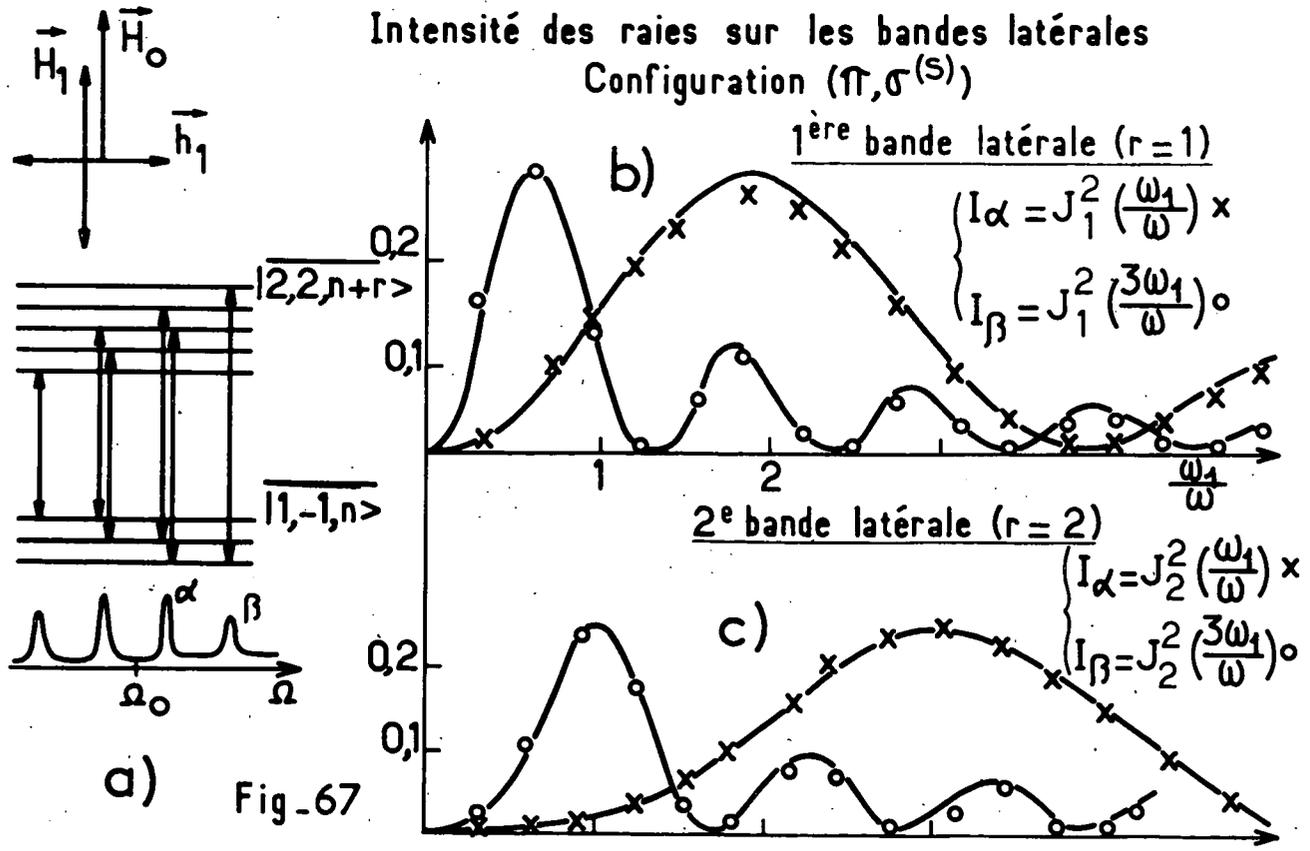
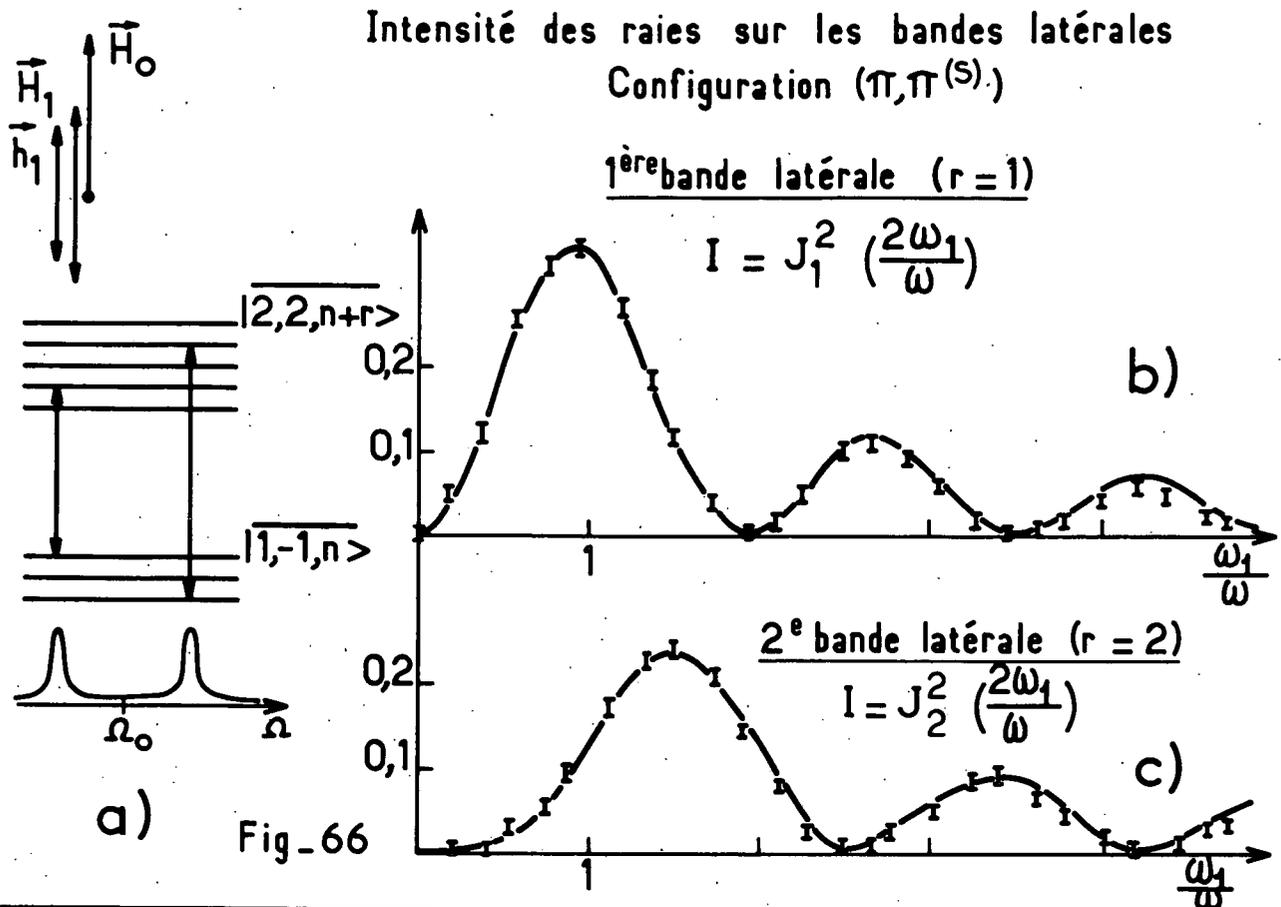


Fig-65



quadruplets dans le cas de la configuration $(\pi, \sigma^{(S)})$; pour une polarisation $(\sigma, \sigma^{(S)})$, on a un triplet sur la première bande latérale et un quadruplet sur la seconde, ces conclusions sont inversées pour la configuration $(\sigma, \pi^{(S)})$.

Rappelons que tous ces résultats s'interprètent simplement en terme de conservation du moment cinétique global du système "atome + champ habillant + champ sonde" (cf. § VI,B,3).

b) Intensités des résonances sur les bandes latérales

Nous avons également étudié expérimentalement la dépendance en ω_1/ω des probabilités de transitions relatives aux deux premières bandes latérales, dans le cas d'un champ habillant en polarisation π : sur les figures 66-b et c et 67-b et c, ont été reportées les différentes intensités des résonances correspondant aux transitions représentées sur les figures 66-a et 67-a. Il n'est plus possible de rapporter ces intensités à celles des mêmes résonances relatives à l'atome libre, pour lequel les probabilités de transition correspondantes sont évidemment nulles; aussi la hauteur des résonances est-elle mesurée en unités arbitraires. Les courbes en traits pleins représentent les variations théoriques des intensités en fonction de ω_1/ω (telles qu'on peut les déduire des tableaux 1 et 2 de l'Appendice VI). Ces courbes théoriques sont ajustées à l'aide d'un seul point expérimental. On constate que l'accord entre l'expérience et la théorie est encore très satisfaisant. Ainsi, en mesurant la position et l'intensité des résonances hyperfines du ^{87}Rb en interaction avec un champ de radiofréquence linéaire, nous avons pu effectuer une vérification détaillée de la théorie de l'atome habillé : l'étude du spectre sur la bande centrale nous a permis de tester les résultats théoriques relatifs à la "renormalisation" des énergies et des fonctions d'onde du système atomique sous l'effet du couplage avec le champ habillant; l'étude des bandes latérales a permis une vérification expérimentale précise des propriétés des transitions à plusieurs quanta impliquant deux types de photons ou encore de l'effet Raman inverse dont le formalisme de l'atome habillé permet de rendre compte à tous les ordres du couplage avec le champ habillant ...

XI-C. RELAXATION MAGNETIQUE D'ATOMES DE ^{87}Rb HABILLES. LARGEUR DE LA RAIE HYPERFINE $0 \leftrightarrow 0$

Nous avons vu, au chapitre VII, que la relaxation induite entre les niveaux d'énergie atomiques par le mouvement des atomes dans un champ magnétique inhomogène peut être considérablement modifiée si l'atome est couplé à un champ de radio-

fréquence linéaire parallèle au champ statique. Nous avons montré en particulier que la largeur $\bar{\Gamma}$ de la résonance hyperfine $0 \leftrightarrow 0$ (dont la fréquence est indépendante du champ magnétique statique) s'écrit, en présence du champ habillant (équation (VII,B,6)) :

$$\bar{\Gamma} = (A_{F0} + A_{F'0}) \gamma_F^2 \sum_r J_r^2\left(\frac{\omega_1}{\omega}\right) f(\omega_0 + r\omega)$$

Nous nous proposons de vérifier ici les prévisions théoriques contenues dans cette équation et de montrer en particulier qu'en champ statique faible ($\omega_0 \tau_c \ll 1$) et à fréquence élevée ($\omega \tau_c \gg 1$), l'effet du couplage avec le champ habillant revient simplement à réduire le moment magnétique atomique dans les deux niveaux hyperfins et donc à diminuer la largeur de raie due aux inhomogénéités perturbatrices (§ XI-C-1); nous montrerons également que si la fréquence du champ est plus petite ($\omega \tau_c \lesssim 1$), la réduction du processus de relaxation directe se trouve partiellement compensée par l'apparition de processus de relaxation indirects impliquant l'absorption et l'émission réelle de photons de radiofréquence par l'atome (§ XI-C-2); nous mettrons enfin en évidence ces processus indirects dans le cas où le champ statique est élevé ($\omega_0 \tau_c \gg 1$; § XI-C-3).

Les inhomogénéités de champ sont produites dans nos expériences par deux fils conducteurs parcourus dans le même sens par un courant continu; ces fils sont parallèles à la direction commune de \vec{H}_0 et de \vec{H}_1 ; ils créent donc un gradient de champ magnétique dans le plan perpendiculaire à \vec{H}_0 . Les composantes du champ inhomogène induisent, dans ces conditions, des transitions réelles entre les sous-niveaux Zeeman atomiques et le terme adiabatique de la relaxation magnétique est négligeable (puisque les composantes du gradient le long de \vec{H}_0 sont nulles).

Afin de déterminer la densité spectrale $f(\omega_0)$ qui intervient dans l'expression (VII,B,6) de $\bar{\Gamma}$, nous avons, dans une expérience préliminaire, étudié la largeur de la raie $0 \leftrightarrow 0$ de l'atome libre : fixant le gradient de champ à une valeur donnée (de l'ordre de 0.2 mG/cm), nous avons mesuré la largeur L de cette raie en fonction de l'amplitude du champ statique. Nous avons ainsi obtenu la forme exacte de la fonction $f(\omega_0)$ schématisée sur la figure 38-a. En particulier, nous avons déterminé dans notre cellule de résonance le temps de corrélation de la perturbation magnétique et trouvé :

$$\frac{1}{\tau_c} = 3150 \text{ Hz}$$

(la valeur correspondante de τ_c est bien de l'ordre du temps de vol des atomes d'une paroi à l'autre de la cellule).

Nous avons ensuite recommencé la même expérience en présence d'un champ habillant, comme nous le décrivons maintenant en détail.

1) Champ statique faible : réduction de la largeur due aux inhomogénéités magnétiques en présence d'un champ habillant haute fréquence ($\omega \tau_c \gg 1$)

Fixons le champ statique H_0 à une valeur telle que $\omega_0 = 960$ Hz suffisamment faible pour que la condition

$$\omega_0 \tau_c < 1$$

soit remplie et suffisamment grande pour que la raie hyperfine $0 \leftrightarrow 0$ soit bien séparée des deux raies $1 \leftrightarrow 1$ et $-1 \leftrightarrow -1$ apparaissant aux fréquences $\Omega = \Omega_0 \pm 2\omega_0$. Dans ces conditions, la relaxation magnétique de l'atome libre est importante : la figure 68-a représente la raie $0 \leftrightarrow 0$ observée en présence d'un gradient de champ d'environ 0.2 mG/cm : la résonance est considérablement élargie et son intensité est très faible. Ajoutons alors parallèlement à \vec{H}_0 et à $\vec{h}_1 \cos \Omega t$ un champ habillant $\vec{H}_1 \cos \omega t$ dont la fréquence $\omega/2\pi = 7500$ Hz est nettement supérieure à $1/\tau_c$. La fréquence du champ habillant est alors suffisamment grande pour que les processus de relaxation indirects entre multiplicités différentes de l'atome habillé ($r \neq 0$ dans l'équation (VII,B,6)) soient négligeables; la relaxation est alors dominée par les transitions directes ($r = 0$) induites par le champ perturbateur à l'intérieur de chaque multiplicité de l'atome habillé (flèches n° 1 sur la figure 37); l'élargissement dû aux inhomogénéités de champ doit, dans ces conditions, être proportionnel à $J_0^2(\frac{\omega_1}{\omega})$; nous avons également interprété cet effet au § VII-C-2-a- α en remarquant que les atomes voient, dans ces conditions, pendant le temps τ_c , un champ habillant véritablement oscillant dont le rôle principal est de réduire par un facteur $J_0(\frac{\omega_1}{\omega})$ le rapport gyromagnétique des niveaux pour la perturbation magnétique transversale.

Afin de vérifier ce phénomène, nous avons fixé l'intensité du champ habillant à une valeur telle que la condition $J_0(\frac{\omega_1}{\omega}) = 0$ soit remplie : la figure 68-b montre l'enregistrement de la raie $0 \leftrightarrow 0$ observée dans ces conditions : on constate un affinement très net de la résonance qui s'accompagne d'une augmentation de son intensité. Nous avons vu (remarque de la page 256.) que cet effet ne peut être dû qu'à la modification du processus de relaxation et non à la variation de la probabilité de la transition atomique qui doit, dans ces conditions, être indépendante de ω_1/ω (voir figure 61-b).

Nous avons étudié systématiquement la largeur \bar{L} de la raie de l'atome habillé en procédant de la façon suivante: pour chaque valeur de ω_1/ω , nous avons mesuré la largeur de la raie en l'absence, puis en présence du gradient de champ fixé à une valeur donnée. Nous avons reporté sur la courbe (a) de la figure 69 la différence $\Delta\bar{L}$ des largeurs ainsi obtenues en fonction de ω_1/ω : on constate que l'élargissement lié aux inhomogénéités varie bien comme la fonction $J_0^2(\frac{\omega_1}{\omega})$ (*). En particulier cet élargissement qui est d'environ 200 Hz sur l'atome libre est pratiquement supprimé pour $\omega_1/\omega = 2.4$.

Remarque :

Il est indispensable dans cette expérience de mesurer la différence $\Delta\bar{L}$ des largeurs en présence et en absence de gradients de champ en effectuant ces deux mesures lorsque l'atome est plongé dans le champ habillant $\vec{H}_1 \cos \omega t$. Il paraîtrait a priori plus simple de mesurer une fois pour toute la largeur L relative à l'atome libre en l'absence de gradient de champ et de soustraire cette largeur aux diverses largeurs obtenues en présence d'un gradient de champ donné sur l'atome habillé pour des valeurs croissantes de ω_1/ω . Une telle expérience ne permettrait cependant pas de mesurer uniquement l'effet du champ inhomogène extérieur appliqué aux atomes : les champs habillants utilisés, dont la fréquence est élevée, sont en effet très intenses ($\omega_1 \sim \omega \sim 10$ KHz); ils présentent donc une certaine inhomogénéité qui se traduit par l'existence de composantes du champ oscillant transversales à la direction de \vec{H}_0 ; ces composantes sont elles-mêmes une cause de relaxation pour la population des niveaux de $m_F = 0$; ainsi, même en l'absence de gradient de champ extérieur, le champ habillant produit un élargissement parasite des raies qui dépend de ω_1 . La deuxième technique de mesure que nous venons de proposer conduirait à déterminer la somme des largeurs liées au champ inhomogène extérieur et aux inhomogénéités du champ habillant. La méthode que nous avons effectivement adoptée élimine cet élargissement parasite et permet de mesurer uniquement l'élargissement dû au champ inhomogène.

(*) En fait, nous avons représenté en traits pleins sur la courbe 69-a les variations exactes de $\Delta\bar{L}$ pour la valeur choisie des paramètres ω_0 et ω telles qu'on les déduit de la formule (VII,B,6); l'élargissement ne passe pas rigoureusement par zéro lorsque $J_0(\omega_1/\omega)$ s'annule ($\omega_1/\omega = 2.4$), car il existe alors une contribution résiduelle des processus de relaxation indirects en J_1^2 , J_2^2 etc... Cet effet est cependant très faible et l'on peut dire que dès que $\omega\tau_c > 2$, le terme en $J_0^2(\omega_1/\omega)$ l'emporte largement sur tous les autres dans l'expression (VII,B,6) donnant la largeur des niveaux.

$$\delta H_1 / \omega = 0$$

a)



$$\delta H_1 / \omega = 2.4$$

b)

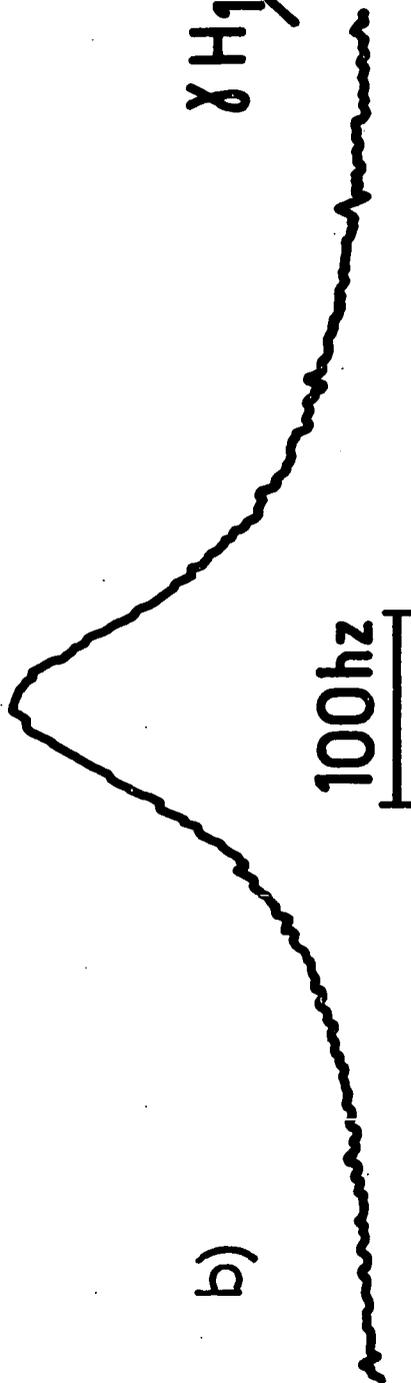
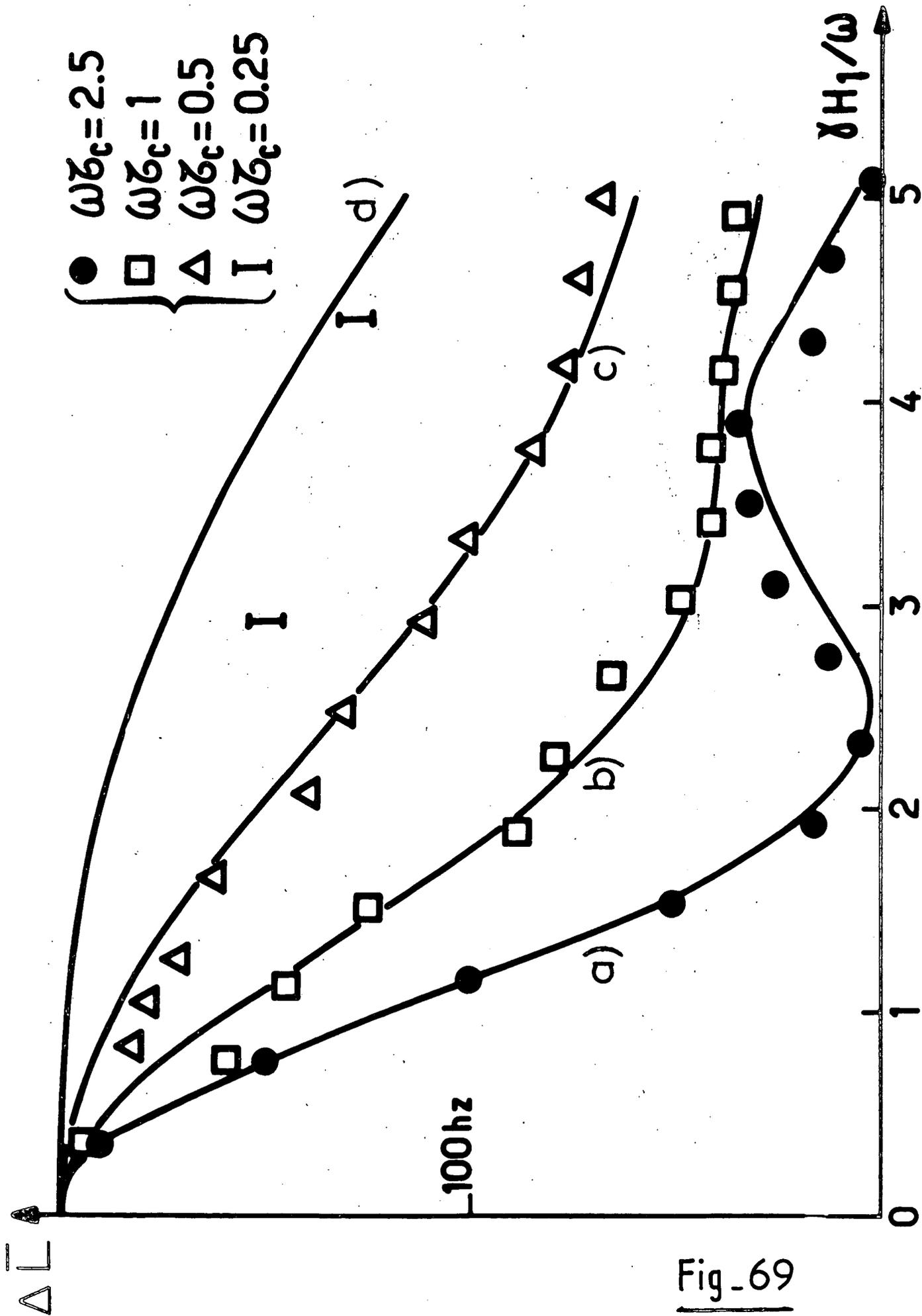


Fig. 68



Fig_69

2) Champ statique faible : réduction de la largeur due aux inhomogénéités magnétiques en présence d'un champ habillant de moyenne ou basse fréquence ($\omega \tau_c \lesssim 1$)

Nous avons recommencé l'expérience décrite au paragraphe précédent pour des fréquences plus faibles du champ habillant, le champ statique étant toujours suffisamment faible pour que la condition $\omega_0 \tau_c < 1$ soit remplie.

Les différentes multiplicités de l'atome habillé se rapprochent alors les unes des autres et les termes de relaxation indirects entre multiplicités différentes deviennent de plus en plus importants (voir § VII-C-2-b). Ces termes, qui décrivent des processus de relaxation impliquant l'absorption ou l'émission réelles de photons de radiofréquence par l'atome qui interagit avec le champ perturbateur (voir flèches n° 2' et 3' sur la figure 37-c), viennent s'ajouter au terme de relaxation direct décrit plus haut. Il en résulte, comme nous l'avons décrit au chapitre VII, une modification progressive de la forme de la courbe donnant les variations de \bar{L} en fonction de ω_1/ω (voir figures 38-b, c et d).

Nous avons étudié cette modification expérimentalement en reportant sur les courbes 69-b, c et d les élargissements $\Delta\bar{L}$ en fonction de ω_1/ω pour diverses valeurs de la fréquence correspondant à $\omega\tau_c = 1$; $\omega\tau_c = 0,5$; $\omega\tau_c = 0,25$. Les carrés triangles et barres verticales représentent les résultats des mesures; les courbes en traits pleins sont théoriques, tracées à partir de la formule (VII,B,6) (nous connaissons en effet, d'après l'expérience préliminaire décrite plus haut sur l'atome libre, la valeur de la fonction $f(\omega_0)$ et nous pouvons, pour chaque valeur de ω , déterminer les coefficients $f(\omega_0 + r\omega)$ qui interviennent dans l'expression (VII,B,6)). On constate un bon accord entre l'expérience et la théorie; il apparaît en particulier très clairement que dès que $\omega\tau_c$ n'est plus grand devant l'unité, l'élargissement dû aux inhomogénéités de champ n'est plus décrit par la fonction $J_0^2(\frac{\omega_1}{\omega})$. Le caractère oscillant de la largeur en fonction de ω_1/ω disparaît progressivement au fur et à mesure que les contributions des processus en J_1^2 , J_2^2 etc.. deviennent plus importants. Tous ces résultats ont été étudiés théoriquement en détail au § VII-C.

3) Champ statique fort : mise en évidence des processus de relaxation indirects impliquant l'absorption ou l'émission réelle de photons de radiofréquence

Revenons à un champ habillant de fréquence élevée :

$$\omega\tau_c = 2.5$$

et fixons le champ statique à une valeur telle que la condition

$$(\omega_0 - \omega) \tau_c < 1$$

soit remplie. H_0 est alors voisin de la valeur correspondant au croisement $\omega_0 = \omega$ de deux sous-niveaux Zeeman de l'atome habillé appartenant à des multiplicités adjacentes. Dans ces conditions, nous avons montré au § VII-C-2-a- β que la relaxation de l'atome habillé est dominée par le terme en $J_1^2(\frac{\omega_1}{\omega})$ de l'expression (VII,B,6). Le terme (en $J_0^2(\frac{\omega_1}{\omega})$) de relaxation directe à l'intérieur d'une multiplicité de l'atome habillé est en effet très faible car les différents sous-niveaux Zeeman sont séparés les uns des autres d'une quantité supérieure à $1/\tau_c$; par contre, le terme associé à l'absorption ou l'émission simultanée d'un photon du champ habillant pendant le processus de relaxation, qui correspond aux transitions induites par le champ inhomogène entre les 2 niveaux appartenant aux deux multiplicités voisines, est alors important car ces 2 niveaux sont très proches pour $\omega_0 \sim \omega$ (voir figure 37). C'est ce terme qui domine la relaxation. Nous avons vérifié cet effet en mesurant en fonction de ω_1/ω l'élargissement $\Delta\bar{L}$ de la raie $0 \leftrightarrow 0$ en présence d'inhomogénéités magnétiques : les valeurs expérimentales de $\Delta\bar{L}$ sont reportées sur la figure 70. La courbe théorique correspond aux variations de la fonction $J_1^2(\frac{\omega_1}{\omega})$ (corrigée par la contribution résiduelle du terme en $J_0^2(\frac{\omega_1}{\omega})$ qui subsiste encore dans la relaxation).

Les barres expérimentales coïncident de façon satisfaisante avec la courbe théorique. On constate notamment que l'élargissement, très faible sur l'atome libre ($\frac{\gamma H_1}{\omega} = 0$) devient important pour la valeur $\frac{\gamma H_1}{\omega} = 2$ correspondant au premier maximum de la fonction $J_1(\frac{\omega_1}{\omega})$.

Nous avons, en conclusion, pu apporter une vérification expérimentale complète de tous les résultats établis au chapitre VII concernant la relaxation magnétique de l'atome habillé.

XI-D. LE SPECTRE HYPERFIN D'ATOMES ^{87}Rb HABILLES PAR UN CHAMP DE RADIOFREQUENCE TOURNANT

Nous avons enfin étudié le spectre hyperfin d'atomes ^{87}Rb en champ statique nul et en présence d'un champ habillant polarisé circulairement auquel sont associés deux champs équivalents opposés, \vec{H}_f et \vec{H}'_f , agissant dans chacun des deux niveaux hyperfins. Nous avons vérifié l'ensemble des prévisions théoriques concernant

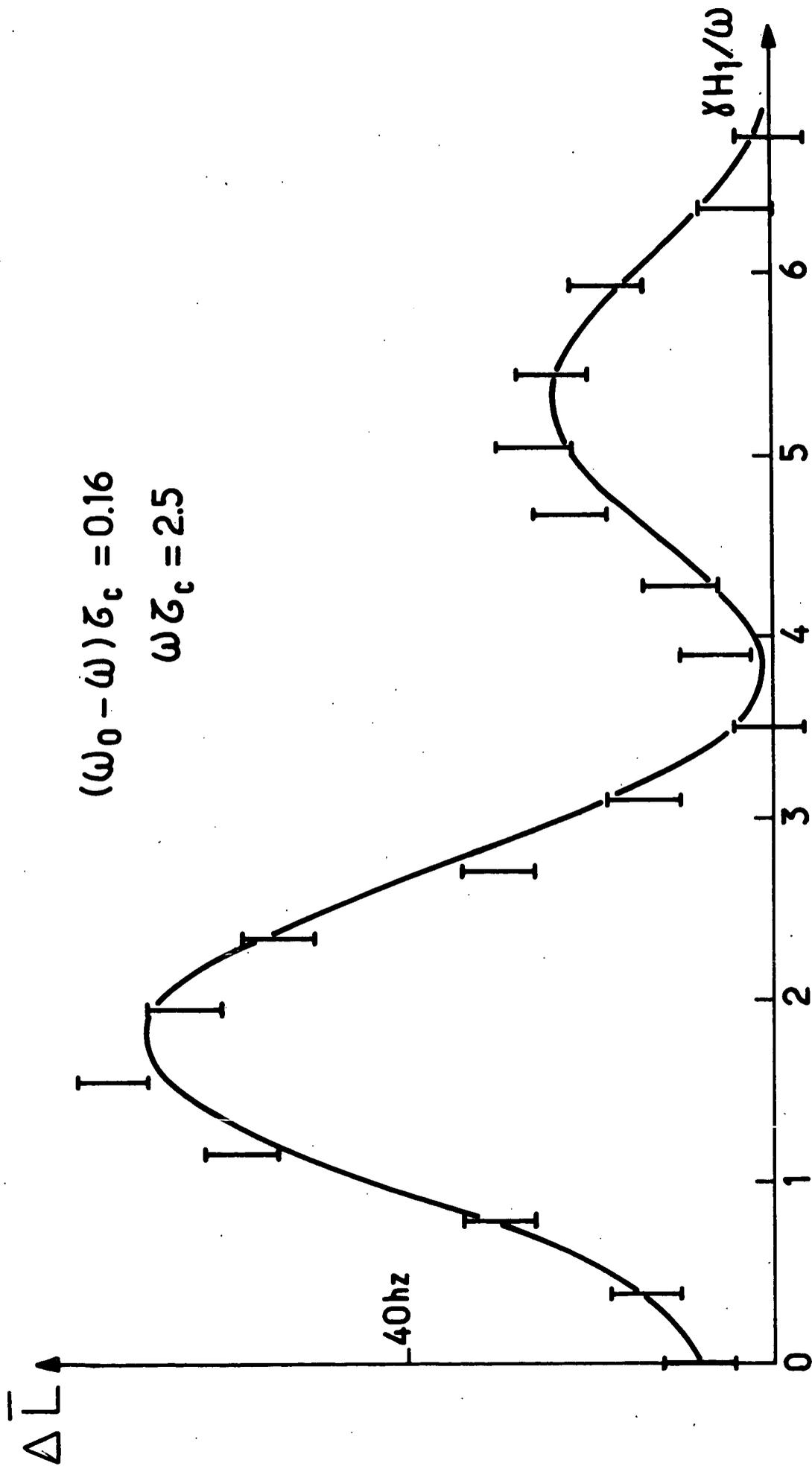


Fig-70

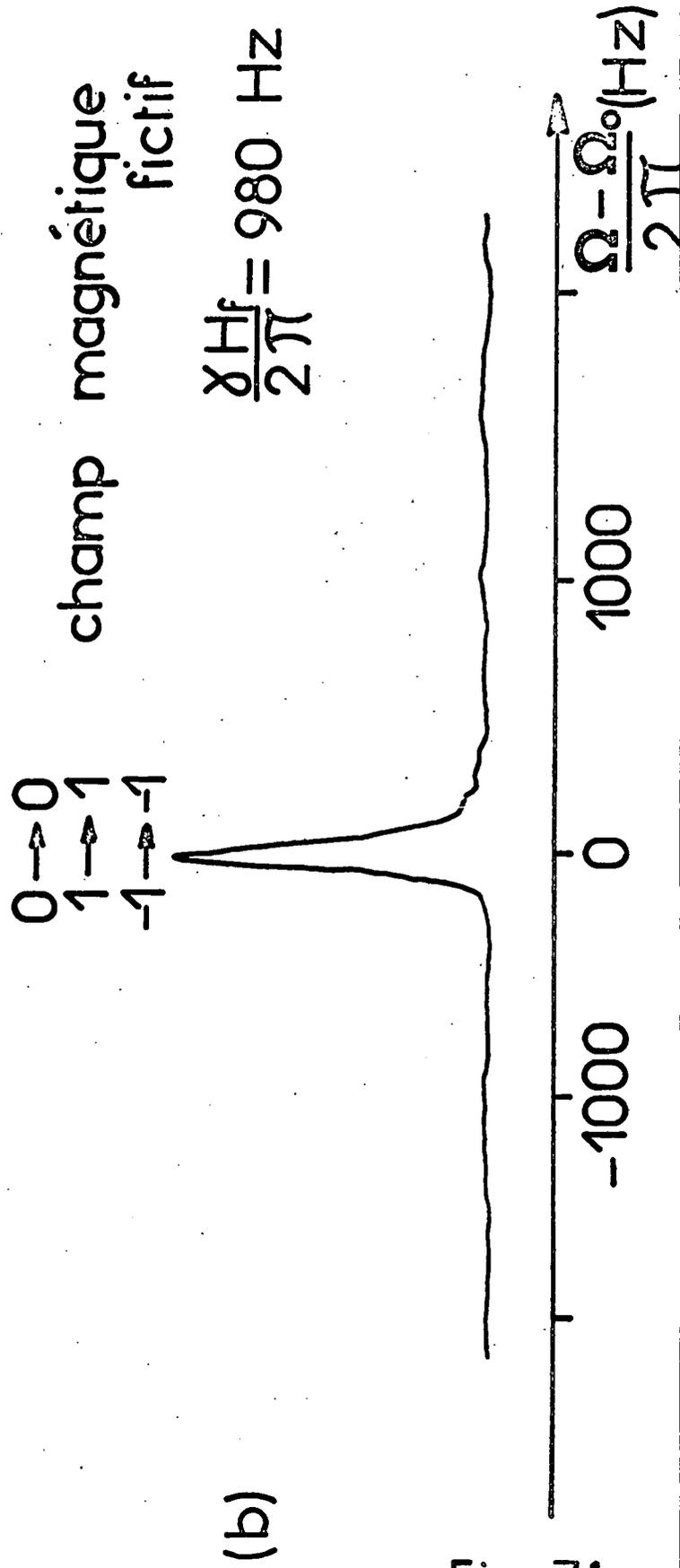
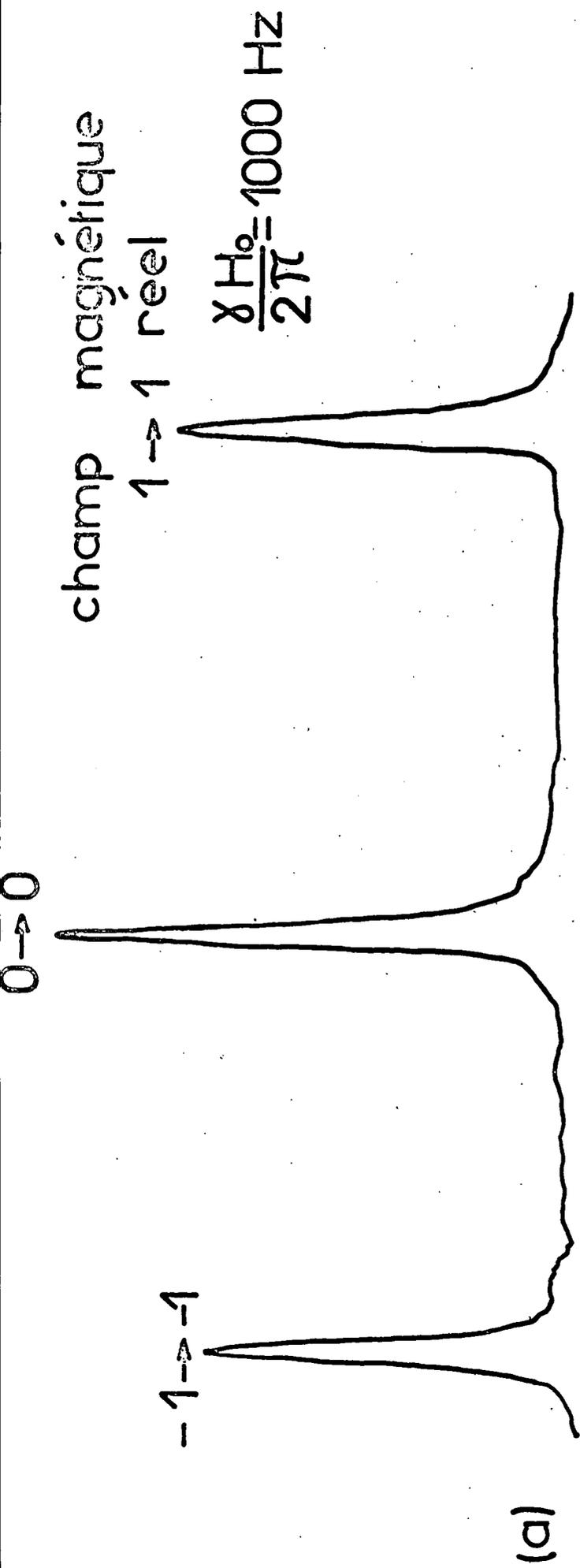


Fig. 71

l'aspect du spectre observé tant sur la bande centrale que sur les bandes d'absorption latérales.

1) Etude du spectre sur la bande d'absorption centrale

Le spectre doit, sur la bande centrale, présenter le même aspect que celui de l'atome d'hydrogène et être très différent de celui du ^{87}Rb dans un vrai champ statique (voir § VI-B-4). Rappelons que ce résultat provient simplement de ce que l'ordre de succession des sous-niveaux Zeeman dans les deux niveaux hyperfins est modifié lorsqu'on remplace le champ réel \vec{H}_0 par des champs fictifs H_f et H'_f : alors que cet ordre de succession est opposé dans les deux niveaux lorsque l'atome est plongé dans un champ statique réel (figure 31), il devient au contraire le même dans les deux niveaux hyperfins (figures 34-a et 35-a) en présence des champs équivalents \vec{H}_f et \vec{H}'_f . De là provient la simplification du spectre que nous allons maintenant décrire.

a) Champ hyperfréquence en polarisation π (S)

En présence d'un champ statique \vec{H}_0 parallèle au champ hyperfréquence, le spectre est constitué de trois raies équidistantes $\Delta m_F = 0$, comme le montre l'enregistrement de la figure 71-a. Supprimons le champ \vec{H}_0 et remplaçons-le par un champ tournant tel que les champs fictifs soient parallèles au champ hyperfréquence et d'amplitude comparable au champ \vec{H}_0 : on n'observe plus, sur l'enregistrement de la figure 71-b qu'une seule raie centrée en $\Omega = \Omega_0$ correspondant aux trois transitions $0 \leftrightarrow 0$, $1 \leftrightarrow 1$ et $-1 \leftrightarrow -1$ confondues à la même fréquence. Ce résultat est bien conforme aux prévisions théoriques (cf. figure 34-a).

b) Champ hyperfréquence en polarisation σ (S)

Dans un champ magnétique réel \vec{H}_0 , perpendiculaire au champ hyperfréquence, le spectre est constitué de quatre raies équidistantes $\Delta m_F = \pm 1$ comme le montre l'enregistrement de la figure 72-a. Le champ \vec{H}_0 étant supprimé et remplacé par les champs équivalents \vec{H}_f et \vec{H}'_f orientés dans la même direction, le spectre hyperfin précédent est remplacé simplement par deux raies (figure 72-b) associées respectivement aux transitions $\Delta m_F = +1$ et $\Delta m_F = -1$. On retrouve ici encore le résultat théorique du § VI-B-4 (voir figure 35-a).

2) Etude du spectre sur les bandes latérales

Les figures 73 représentent enfin le spectre observé sur les bandes latérales en présence du champ tournant dans le cas d'un champ hyperfréquence en polari-

sation $\pi^{(S)}$ (figure 73-a) ou $\sigma^{(S)}$ (figure 73-b). Seules les bandes latérales de fréquence inférieure à la fréquence centrale Ω_0 de la transition hyperfine sont représentées sur les enregistrements (des bandes latérales symétriques apparaissent pour des fréquences supérieures à Ω_0). Conformément aux prévisions théoriques (voir figures 34-b, c, d, et 35-b, c, ^{d et e.}) on observe, dans le premier cas, trois bandes latérales constituées d'une seule raie chacune et, dans le second cas, quatre bandes latérales, les deux premières étant des doublets et les deux dernières ne comportant qu'une seule raie ^(*) (la raie correspondant à la 4e bande latérale du spectre de la figure 73-b a été enregistrée avec une amplitude plus grande du champ sonde car son intensité est beaucoup plus faible).

En conclusion, les diverses expériences décrites dans ce chapitre montrent que l'on peut, en couplant un atome alcalin à un champ de radiofréquence non résonnant, altérer considérablement son spectre de transitions hyperfines; d'une part, il est possible de modifier les propriétés des résonances existant sur l'atome libre, d'autre part on peut faire apparaître dans le spectre de nombreuses transitions nouvelles. Diverses applications de ces effets peuvent être envisagées pour les horloges atomiques ou les masers. En particulier, la suppression de la dépendance magnétique de toutes les raies atomiques en présence d'un champ de radiofréquence linéaire d'amplitude convenable peut présenter un intérêt; la possibilité de réaliser un maser de fréquence accordable, oscillant sur une bande latérale du spectre hyperfin d'un atome interagissant avec un champ habillant de fréquence variable peut également être envisagée.

(*) La position des différentes raies sur chacune des bandes latérales est précisée sur la figure 73. On remarque, par exemple, que ces raies apparaissent en polarisation $\pi^{(S)}$ aux fréquences $\Omega_0 - \omega - \bar{\omega}_0$, $\Omega_0 - 2\omega - 2\bar{\omega}_0$, $\Omega_0 - 3\omega - 3\bar{\omega}_0$ alors que la théorie du § VI-B-4 prévoit que les raies doivent se situer autour des fréquences $\Omega_0 - \omega + \bar{\omega}_0$, $\Omega_0 - 2\omega + 2\bar{\omega}_0$ et $\Omega_0 - 3\omega + 3\bar{\omega}_0$. Cette différence entre la théorie et l'expérience provient simplement de ce que la théorie correspond à un champ tournant σ_+ , alors que les enregistrements de la figure 73 ont été effectués en présence d'un champ habillant en polarisation σ_- .

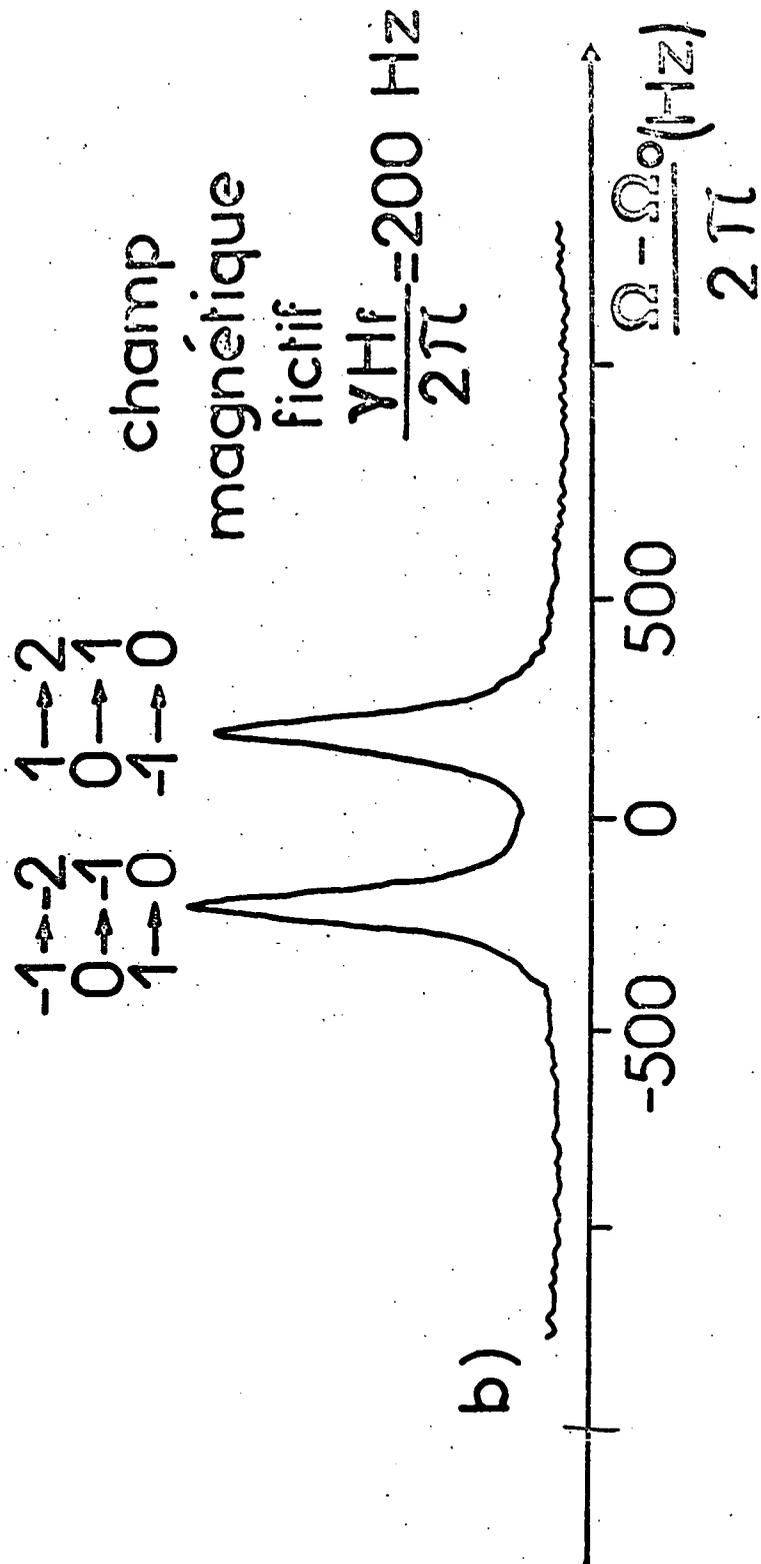
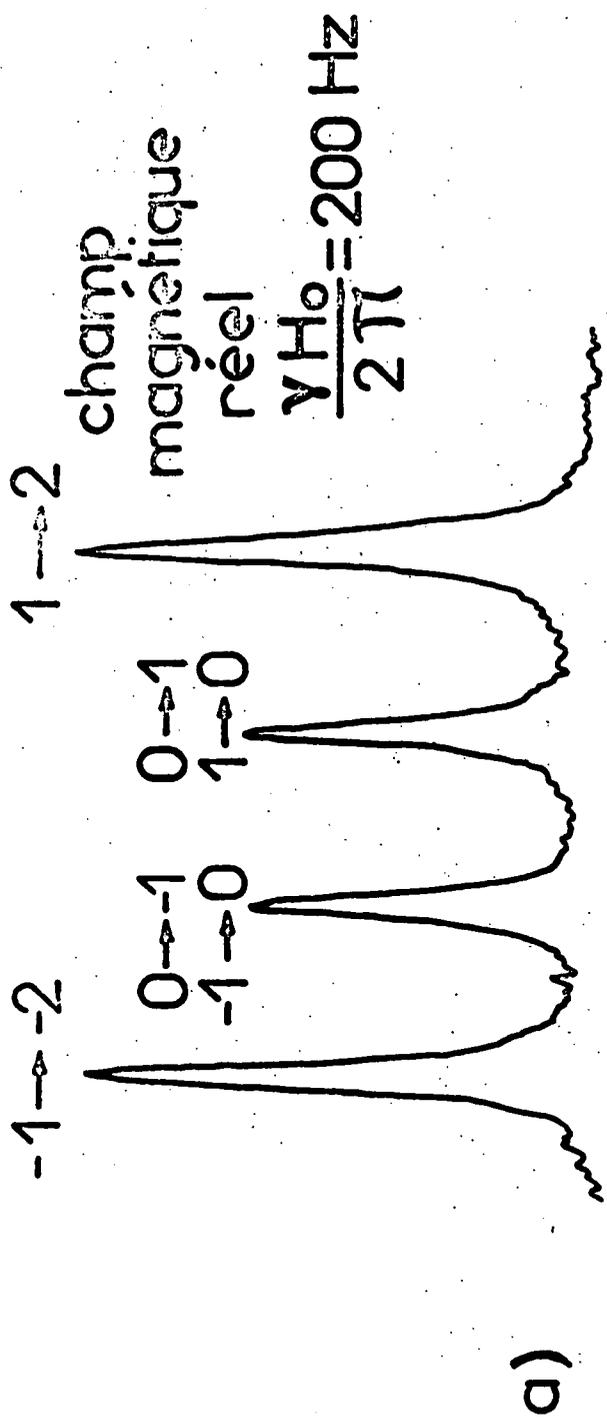


Fig. 72

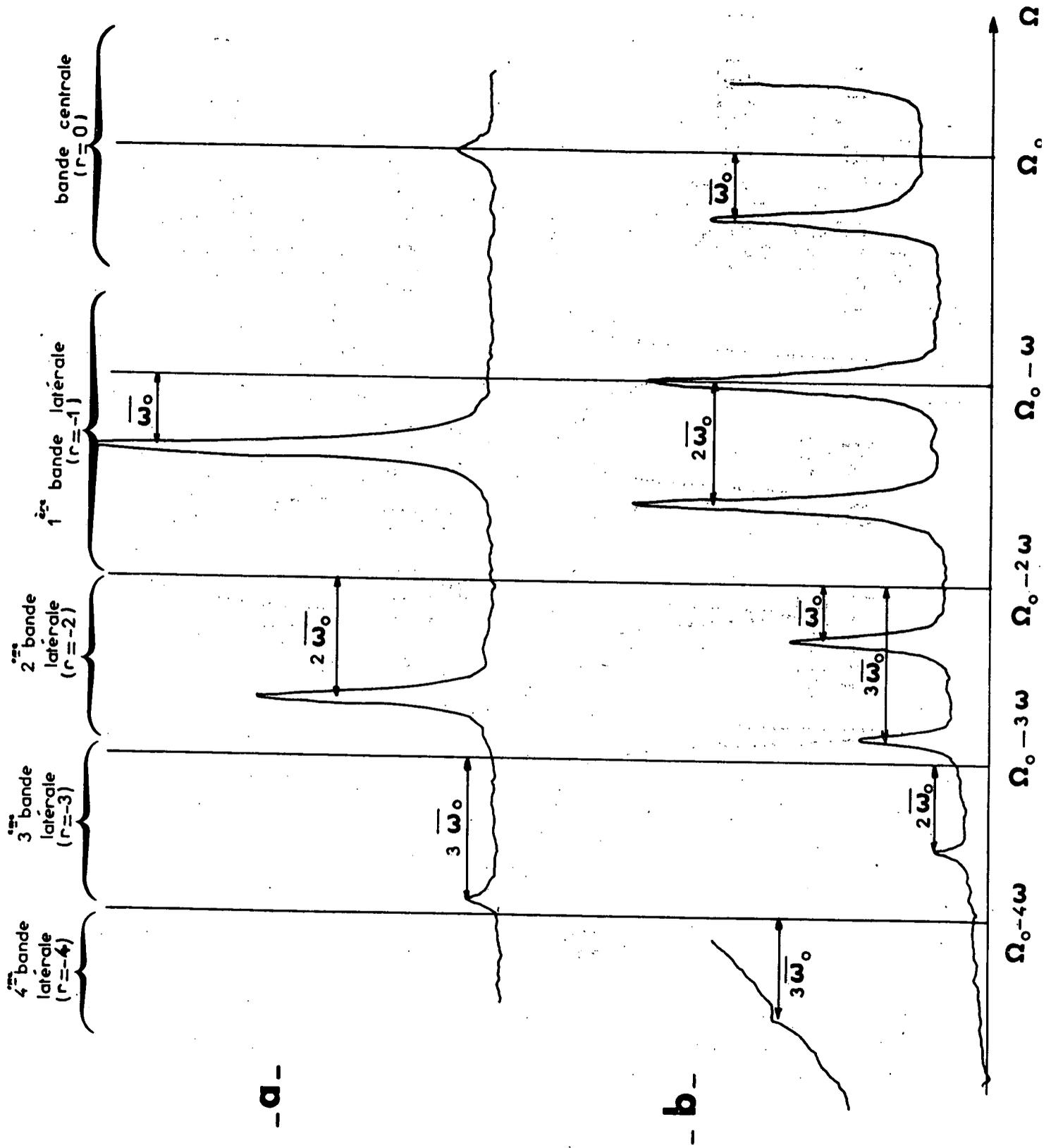


Fig. 73

C O N C L U S I O N

Nous avons décrit, dans ce travail, en adoptant un formalisme entièrement quantique, les propriétés physiques d'un système atomique interagissant avec des photons de radiofréquence (atome habillé).

Nous avons montré que ce point de vue conduit à des interprétations simples de l'ensemble des phénomènes de la Spectroscopie Hertzienne. En particulier, nous avons pu décrire les divers types de résonance magnétique d'une façon claire et synthétique qui met bien en lumière le rôle des photons de radiofréquence dans les processus impliqués et qui permet de dégager simplement les propriétés de ces résonances et les différences qui existent entre elles.

Nous avons également montré que le point de vue de l'atome habillé, qui revient à considérer que l'atome est entouré par un nuage de photons de radiofréquence avec lesquels il interagit constamment, permet de prévoir que les énergies atomiques sont modifiées par le couplage avec la radiofréquence et de calculer simplement ces modifications; celles-ci peuvent se traduire par un changement important du facteur de Landé si l'atome est couplé à un champ de radiofréquence de polarisation linéaire, par une levée de la dégénérescence Zeeman en champ statique nul si l'atome est habillé par un champ tournant. Ces effets ont des conséquences importantes sur les propriétés physiques de l'atome habillé en champ statique faible. C'est ainsi que nous avons pu prévoir théoriquement et vérifier expérimentalement que l'effet Hanle, l'effet Zeeman, la précession de Larmor de l'atome sont profondément modifiés par le couplage avec un champ de radiofréquence non résonnant; nous avons également mis en évidence des effets intéressants de circulation de cohérence entre des niveaux atomiques dont les fréquences de Larmor sont égalisées par le couplage avec le champ habillant.

Le formalisme de l'atome habillé s'est montré aussi particulièrement bien adapté à l'étude de l'interaction simultanée d'un système atomique avec plusieurs champs électromagnétiques. En considérant que c'est l'atome habillé par l'un des champs qui absorbe ou diffuse les autres, nous avons pu resommer d'emblée à tous les ordres les processus d'interaction du système atomique avec le champ habillant et rendre compte de façon très simple d'effets dont le calcul dans le formalisme classique apparaît plus compliqué. C'est ainsi que nous avons notamment étudié l'effet Raman inverse et les transitions à plusieurs quanta impliquant deux types de photons différents en traitant ces effets à tous les ordres du couplage avec le champ habillant ...

Diverses expériences ont été effectuées pour vérifier les prévisions théoriques dans ce domaine (étude de la résonance magnétique et du spectre Zeeman hyperfin d'atomes habillés).

Nous nous sommes contentés, dans ce travail, d'une description à l'ordre le plus bas de l'interaction avec l'un des deux champs électromagnétiques. Si ce champ est lui-même intense, une telle description devient insuffisante; il est alors possible de considérer que ce deuxième champ "habille" à son tour le système constitué par l'atome en interaction avec le premier champ ... Ce point de vue a été adopté avec succès dans diverses publications (⁹⁶) (⁹⁹) pour décrire le couplage d'un système atomique avec plusieurs champs dont les intensités sont comparables et simultanément importantes. En particulier, J. DUPONT-ROC a étudié en détail le problème de l'interaction en champ statique faible d'un spin atomique avec deux champs oscillants de fréquences différentes (^{99, 100}) Il a pu calculer l'ensemble des signaux résonnants statiques et modulés observables lorsque le champ statique est balayé autour de zéro. L'exploitation de ces signaux a permis de perfectionner le magnétomètre extrêmement sensible dont nous avons signalé l'existence dans ce travail et de mettre au point un dispositif permettant la mesure simultanée des trois composantes du champ magnétique avec une sensibilité de l'ordre de 10^{-8} à 10^{-9} G.

De nombreuses autres applications du formalisme de l'atome habillé peuvent être envisagées : le champ habillant peut, par exemple, être un champ optique et non plus un champ de radiofréquence; le point de vue adopté dans ce travail permet alors de rendre compte de façon simple et originale de différents effets classiques en Optique non Linéaire (⁸²). Des phénomènes nouveaux de modification des propriétés de la matière dans des champs électriques très intenses tels ceux que produisent les lasers de très grande puissance actuellement disponibles pourraient également être étudiés dans le formalisme de l'atome habillé. Enfin, ce point de vue peut être étendu au cas où les photons du champ électromagnétique sont remplacés par des phonons, qui dans un solide peuvent être couplés aux spins atomiques de centres paramagnétiques.

Sur un plan plus pratique, certains des effets étudiés dans ce travail tels la modification du facteur de Landé atomique sous l'effet du couplage avec un champ non résonnant, ou encore l'apparition de bandes latérales dans le spectre Zeeman hyperfin d'atomes alcalins, peuvent, comme nous l'avons déjà signalé, trouver une application pour le perfectionnement des horloges atomiques ou des masers.

A P P E N D I C E I

RAPPELS SUR LA THEORIE QUANTIQUE DU RAYONNEMENT

1) L'opérateur champ magnétique

Dans la théorie quantique du champ électromagnétique, le potentiel vecteur $\vec{A}(\vec{r})$ peut se décomposer suivant les modes quantifiés dans une cavité de volume L^3 conformément à l'expression :

$$\vec{A} = \sqrt{\frac{\hbar}{2\epsilon_0 L^3}} \sum_{k\lambda} \frac{1}{\sqrt{\omega_k}} \left[a_{k\lambda} \vec{\epsilon}_{k\lambda} e^{i\vec{k}\vec{r}} + a_{k\lambda}^\dagger \vec{\epsilon}_{k\lambda}^* e^{-i\vec{k}\vec{r}} \right] \quad (*) \quad (\text{App.I,1})$$

Dans cette expression, $a_{k\lambda}^\dagger$ et $a_{k\lambda}$ sont les opérateurs de création et d'annihilation d'un photon de vecteur d'onde \vec{k} , d'énergie $\hbar\omega_k = \hbar ck$, de polarisation $\vec{\epsilon}_{k\lambda}$. L'opérateur champ magnétique s'écrit alors :

$$\vec{H}_1 = \text{rot } \vec{A} = -i \sqrt{\frac{\hbar}{2\epsilon_0 L^3}} \sum_{k\lambda} \frac{1}{\sqrt{\omega_k}} \left[a_{k\lambda} \vec{\epsilon}_{k\lambda} \wedge \vec{k} e^{i\vec{k}\vec{r}} - a_{k\lambda}^\dagger \vec{\epsilon}_{k\lambda}^* \wedge \vec{k} e^{-i\vec{k}\vec{r}} \right] \quad (\text{App.I,2})$$

Nous n'envisageons dans ce travail que le cas où un seul mode du champ est rempli; nous appellerons a^\dagger et a ses opérateurs de création et d'annihilation, $\omega = ck$ sa pulsation

et $\vec{\epsilon} = \frac{\vec{\epsilon}_{k\lambda} \wedge \vec{k}}{|\vec{k}|}$ sa polarisation. En ne conservant que ce mode, nous obtenons à partir de (App.I,2) :

$$\left\{ \begin{array}{l} \vec{H}_1 = \mu \left[a \vec{\epsilon} e^{i\vec{k}\vec{r}} + a^\dagger \vec{\epsilon}^* e^{-i\vec{k}\vec{r}} \right] \\ \text{avec } \mu = \sqrt{\frac{\hbar \omega}{2\epsilon_0 c^2 L^3}} \end{array} \right. \quad (\text{App.I,3})$$

(afin d'éliminer la constante imaginaire i , nous avons changé de phase en posant $r = r_0 + \rho$ avec $kr_0 = \pi/2$).

Comme les dimensions atomiques sont beaucoup plus petites que la longueur d'onde du champ de radiofréquence, on peut faire l'approximation dipolaire et poser $e^{i\vec{k}\vec{r}} = 1$.

On obtient alors :

(*) (pour obtenir des formules homogènes, on réintroduit dans cet Appendice la constante de Planck \hbar qui a été supprimée dans tous les calculs de ce travail).

$$\vec{H}_1 = \mu \left[a \vec{\epsilon} + a^\dagger \vec{\epsilon}^* \right] \quad (\text{équation (I,B,6)})$$

expression dans laquelle μ est une constante -donnée par(App.I,3)- ayant les dimensions d'un champ magnétique, qui mesure en quelque sorte le champ magnétique d'un photon.

En fait, le champ magnétique de radiofréquence effectivement réalisé dans une expérience physique n'est pas une onde plane. On ne peut utiliser une véritable cavité pour les très basses fréquences (de l'ordre du KHz) que nous envisagerons et qui sont en fait produites par des bobines de Helmholtz dont les dimensions (quelques dizaines de cm) sont très petites devant la longueur d'onde (plusieurs milliers de km) de la radiation employée. Cependant, si les atomes sont confinés dans une région petite devant les dimensions des bobines où l'amplitude et la polarisation du champ sont constantes, tout se passe comme s'ils voyaient une onde plane et le champ quantique peut être décrit par l'équation (I,B,6). Si les atomes peuvent se déplacer sur une distance grande devant les dimensions des bobines (comme c'est le cas dans une expérience de jet par exemple), une description plus réaliste du champ est nécessaire; on peut l'obtenir en décomposant le champ électromagnétique non plus en ondes planes, mais sur un ensemble complet de modes comprenant en particulier le mode effectivement réalisé par les bobines de Helmholtz. En ne conservant que ce mode, on peut montrer que l'opérateur champ magnétique s'écrit à présent :

$$\vec{H}_1(\vec{r}) = \mu(\vec{r}) \left[a \vec{\epsilon}(\vec{r}) + a^\dagger \vec{\epsilon}^*(\vec{r}) \right] \quad (\text{App.I,4})$$

a^\dagger et a étant maintenant les opérateurs de création et d'annihilation d'un photon dans le mode envisagé, $\mu(\vec{r})$ une fonction scalaire et réelle de \vec{r} décrivant l'amplitude du champ magnétique d'un photon dans le mode et $\vec{\epsilon}(\vec{r})$ un champ de vecteurs décrivant la dépendance spatiale de la polarisation du champ.

2) Evaluation de $\mu(\vec{r})$

Il est possible de déterminer l'amplitude $\mu(\vec{r})$ du champ magnétique associé à un photon en évaluant l'énergie W_n de n photons du champ de radiofréquence : on peut, pour obtenir cette énergie, intégrer sur l'espace la densité d'énergie du champ, laquelle est proportionnelle à la valeur moyenne du carré du champ dans l'état n ; on a ainsi :

$$W_n = 2 \int \frac{\langle n | H_1^2 | n \rangle}{2\mu_0} d\tau = \frac{1}{\mu_0} \langle n | \left[a \vec{\epsilon}(\vec{r}) + a^\dagger \vec{\epsilon}^*(\vec{r}) \right]^2 | n \rangle \int \mu^2(r) d\tau$$

(le facteur 2 devant la première intégrale provient de ce que l'énergie magnétique ne représente que la moitié de l'énergie totale emmagasinée dans le champ). On obtient finalement :

$$W_n = \frac{2n + 1}{\mu_0} \int \mu^2(r) d\tau \quad (\text{App.I,5})$$

En égalant cette quantité à l'énergie $(n + \frac{1}{2})\hbar\omega$ des n photons, il vient :

$$\int \mu^2(r) d\tau = \frac{\mu_0 \hbar \omega}{2} \quad (\text{App.I,6})$$

Soit en introduisant la valeur moyenne $\bar{\mu}$ du champ magnétique d'un photon et en appelant \mathcal{V}_0 le volume pratiquement offert au champ (de l'ordre du volume compris entre les bobines) :

$$\bar{\mu} = \sqrt{\frac{\mu_0 \hbar \omega}{2\mathcal{V}_0}} \quad (\text{App.I,7})$$

Pour une valeur $\mathcal{V}_0 = 10^4 \text{ cm}^3$ et une fréquence $\omega/2\pi$ de 1 KHz, on trouve $\bar{\mu} = 6 \cdot 10^{-14} \text{ G}$.

A P P E N D I C E I I

RAPPELS SUR LA THEORIE DES PERTURBATIONS DES NIVEAUX DEGENERES :
METHODE DE LA RESOLVANTE

Cet appendice regroupe un certain nombre de résultats utiles aux chapitres I et III de ce travail, relatifs à la théorie des perturbations de niveaux dégénérés ou quasi-dégénérés. Nous commencerons par rappeler la méthode de la résolvante qui permet de traiter le problème de façon simple et élégante et qui est exposée dans de nombreuses références (⁴²)(¹⁰¹) (paragraphe 1). Puis nous appliquerons cette méthode aux calculs effectifs des déplacements de croisements et d'anticroisements de niveaux d'énergie de l'atome habillé qui sont responsables des déplacements radiatifs de type Bloch-Siegert des résonances (paragraphe 2). Nous vérifierons enfin que le couplage entre les niveaux en un point de croisement de 2e espèce s'annule bien par un effet d'interférence destructrice entre amplitudes de transitions différentes (paragraphe 3).

1) Rappels sur la méthode de la résolvante

On appelle résolvante de l'hamiltonien $\mathcal{H} = \mathcal{H}_0 + V$ l'opérateur $G(z)$ défini dans le plan complexe par la relation :

$$G(z) = \frac{1}{z - \mathcal{H}} = \frac{1}{z - \mathcal{H}_0 - V} \quad (\text{App. II, 1})$$

Cet opérateur possède la propriété intéressante d'admettre pour pôles les énergies propres de l'hamiltonien \mathcal{H} . Pour calculer les niveaux d'énergie de \mathcal{H} au voisinage d'un point de croisement de niveaux de \mathcal{H}_0 , on a intérêt à calculer la projection $P G(z) P$ de la résolvante dans la multiplicité des niveaux qui se croisent (on appellera P le projecteur sur ces niveaux, $Q = 1 - P$ le projecteur complémentaire). On montre aisément que l'on peut mettre cette projection sous la forme (¹⁰¹)(¹⁰²) :

$$P G P = \frac{1}{z - \mathcal{H}_0 - P R P} \quad (\text{App. II, 2})$$

dans laquelle l'effet du couplage avec tous les autres niveaux est résumé dans l'opérateur de "déplacement" :

$$P R P = P V P + P V \frac{Q}{z - \mathcal{H}_0 - Q' V Q} V P \quad (\text{App.II,3})$$

qui peut se développer en puissances de V sous la forme :

$$P R P = P V P + P V \frac{Q}{z - \mathcal{H}_0} V P + P V \frac{Q}{z - \mathcal{H}_0} V \frac{Q}{z - \mathcal{H}_0} V P + \dots \quad (\text{App.II,4})$$

Les énergies propres de \mathcal{H} , pôles de G(z), sont donc les zéros de l'équation implicite :

$$z - \mathcal{H}_0 - P R(z) P = 0 \quad (\text{App.II,5})$$

Au voisinage du croisement de niveaux, les énergies perturbées sont suffisamment voisines des énergies non perturbées pour que l'on puisse considérer $P R(z) P$ comme une quantité petite et lentement variable que l'on peut raisonnablement approcher par son expression $\overline{P R P}$ à l'ordre le plus bas, prises pour la valeur \bar{E} commune de l'énergie des niveaux dégénérés. (App.II,5) se ramène alors à l'équation séculaire d'un hamiltonien effectif $\hat{\mathcal{H}}$ rapporté à la multiplicité des niveaux qui se croisent :

$$\hat{\mathcal{H}} = \mathcal{H}_0 + P \overline{R(E)} P \quad (\text{App.II,6})$$

Dans le cas où le croisement concerne seulement deux niveaux a et b, on a :

$$\hat{\mathcal{H}} = \begin{pmatrix} E_a + \overline{R_{aa}} & \overline{R_{ab}} \\ \overline{R_{ba}} & E_b + \overline{R_{bb}} \end{pmatrix} \quad (\text{App.II,7})$$

$\overline{R_{aa}}$ et $\overline{R_{ab}}$ s'obtiennent en gardant les termes à l'ordre le plus bas non nuls dans (App.II,4) et sont donnés au chapitre I par les expressions (I,A,14) et (I,A,15). On voit que, suivant que $\overline{R_{ab}}$ est nul ou non, les niveaux d'énergie de l'hamiltonien continueront à se croiser (en un point éventuellement déplacé de la quantité $\overline{R_{aa}} - \overline{R_{bb}}$) ou formeront un anticroisement.

2) Calcul des déplacements des croisements et anticroisements de l'hamiltonien \mathcal{H} de l'atome habillé pour un champ en polarisation σ

Dans le cas d'un spin $J = 1/2$ et d'un champ de radiofréquence en polarisation σ , le déplacement de la résonance $\omega_0 = \rho\omega$ (transitions à plusieurs quanta

si p est impair, résonances de cohérence si p est pair) est donné par le calcul de la quantité du second ordre $\overline{R}_{aa}(E) - \overline{R}_{bb}(E)$ avec :

$$|a\rangle = |-, n\rangle ; \quad |b\rangle = |+, n-p\rangle$$

$$\overline{E} = -\frac{\omega_0}{2} + n\omega = (n - \frac{p}{2})\omega$$

Nous avons :

$$\begin{aligned} \overline{R}_{aa}(\overline{E}) &= \frac{\langle -, n | V | +, n-1 \rangle \langle +, n-1 | V | -, n \rangle}{(n - \frac{p}{2})\omega - \frac{\omega_0}{2} - (n-1)\omega} + \frac{\langle -, n | V | +, n+1 \rangle \langle +, n+1 | V | -, n \rangle}{(n - \frac{p}{2})\omega - \frac{\omega_0}{2} - (n+1)\omega} \\ &= -\frac{\lambda^2}{4} \left[\frac{n}{(p-1)\omega} + \frac{n+1}{(p+1)\omega} \right] \end{aligned} \quad (\text{App. II, 8})$$

et de même :

$$\overline{R}_{bb}(\overline{E}) = \frac{\lambda^2}{4} \left[\frac{n-p+1}{(p-1)\omega} + \frac{(n-p)}{(p+1)\omega} \right] \quad (\text{App. II, 9})$$

d'où :

$$\overline{R}_{aa}(\overline{E}) - \overline{R}_{bb}(\overline{E}) = \frac{\lambda^2}{2} (2n-p+1) \frac{p}{(p^2-1)\omega} \quad (\text{App. II, 10})$$

Le nombre de photons n est très grand devant p et on peut écrire :

$$2n-p+1 \sim 2n$$

On obtient finalement le déplacement :

$$\begin{aligned} \overline{R}_{aa} - \overline{R}_{bb} &= -\lambda^2 n \frac{p}{(p^2-1)\omega} \\ &= -\frac{\omega_1^2}{4} \frac{p}{(p^2-1)\omega} \end{aligned} \quad (\text{App. II, 11})$$

(en remplaçant λ par son expression (I, B, 15)), ce qui permet d'écrire le déplacement de la résonance sous la forme $-\delta_p \frac{\omega_1^2}{\omega}$ avec :

$$\delta_p = \frac{p}{4(p^2-1)} \quad (\text{App. II, 12})$$

Le calcul précédent ne s'applique pas au cas $p = 1$. Pour déterminer le déplacement de la résonance $\omega_0 = \omega$, il faut reprendre le calcul de \overline{R}_{aa} et \overline{R}_{bb} avec $|a\rangle = |-, n\rangle$ et $|b\rangle = |+, n-1\rangle$. La présence du projecteur Q dans le développement de R fait que \overline{R}_{aa} et \overline{R}_{bb} n'ont plus qu'un seul terme :

$$\overline{R}_{aa} = \frac{\langle -, n | V | +, n+1 \rangle \langle +, n+1 | V | -, n \rangle}{(n - \frac{1}{2})\omega - \frac{\omega_0}{2} - (n+1)\omega} = -\frac{\lambda^2}{4} \frac{n+1}{2\omega}$$

On trouve de même $\overline{R}_{bb} = \frac{\lambda^2}{4} \frac{n-1}{2\omega}$ et $\overline{R}_{aa} - \overline{R}_{bb} = -\frac{\lambda^2 n}{4\omega} = -\delta_1 \frac{\omega_1^2}{\omega}$

avec $\delta_1 = \frac{1}{16}$ (App. II, 13)

On retrouve le déplacement Bloch-Siegert classique de la résonance magnétique en présence d'un champ de radiofréquence linéaire.

3) Croisements de niveaux de 2e espèce et interférence destructive entre amplitudes de transition

a) Croisement de niveaux en champ nul. Spin $J = 1/2$

Nous allons calculer les contributions des 4 diagrammes de la page 61 dans le cas d'un champ de polarisation circulaire cohérente (tournant dans le plan zOy) et d'un champ de polarisation linéaire (faisant un angle ψ avec Oz). Dans le premier cas, la polarisation s'écrit :

$$\vec{\epsilon} = \vec{e}_z + i\vec{e}_y$$

et le couplage entre l'atome et la radiofréquence se met sous la forme :

$$\begin{aligned} V &= \lambda \vec{J} \cdot [a(\vec{e}_z + i\vec{e}_y) + a^\dagger(\vec{e}_z - i\vec{e}_y)] = \\ &= \lambda(a + a^\dagger)J_z + \frac{\lambda}{2}(aJ_+ + a^\dagger J_-) - \frac{\lambda}{2}(aJ_- + a^\dagger J_+) \end{aligned} \quad (\text{App. II, 14})$$

Dans le second cas, nous avons une polarisation

$$\vec{\epsilon} = \vec{e}_z \cos \psi + \vec{e}_x \sin \psi$$

et le couplage V devient :

$$V = \lambda \cos \psi J_z (a+a^\dagger) + \frac{\lambda}{2} \sin \psi (J_+ a + J_- a^\dagger) + \frac{\lambda}{2} \sin \psi (J_- a + J_+ a^\dagger) \quad (\text{App.II,15})$$

Les formules (App.II,14) et (App.II,15) mettent clairement en évidence les composantes π , σ_+ et σ_- selon lesquelles peuvent être décomposées ces deux polarisations cohérentes. Les amplitudes de transition associées à chacun des diagrammes de la page 61 peuvent s'écrire :

$$\overline{R}_{ab} = \frac{\langle a|V|c \rangle \langle c|V|b \rangle}{\overline{E} - E_c}$$

en appelant $|b \rangle$ et $|a \rangle$ les états initial et final $|+,n \rangle$ et $|-,n \rangle$ et $|c \rangle$ l'état intermédiaire qui peut être l'un des quatre états $|\pm,n+1 \rangle$ et $|\pm,n-1 \rangle$. Ces amplitudes sont données par le tableau ci-dessous pour les deux polarisations correspondant aux formules (App.II,14) et (App.II,15).

	champ tournant	champ linéaire
1er diagramme	$-\frac{\lambda^2 n}{4\omega}$	$+\sin \psi \cos \psi \frac{\lambda^2 n}{4\omega}$
2e "	$-\frac{\lambda^2 n}{4\omega}$	$+\sin \psi \cos \psi \frac{\lambda^2 n}{4\omega}$
3e "	$-\frac{\lambda^2 n}{4\omega}$	$-\sin \psi \cos \psi \frac{\lambda^2 n}{4\omega}$
4e "	$-\frac{\lambda^2 n}{4\omega}$	$-\sin \psi \cos \psi \frac{\lambda^2 n}{4\omega}$
bilan	$-\frac{\lambda^2 n}{\omega} = -\frac{\omega_1^2}{4\omega}$	0

Il apparaît ainsi clairement que les quatre processus du 2e ordre ajoutent leurs contributions dans le cas du champ tournant, alors qu'ils se compensent deux à deux pour donner un résultat nul si le champ est linéaire.

b) Croisement de niveaux en champ non nul. Spin $J > 1/2$

Nous allons calculer les contributions des 2 diagrammes de la page 108 dans le cas d'un champ de polarisation quelconque pour le croisement de niveaux $\omega_0 = \frac{3\omega}{2}$. On a immédiatement, en posant $|b \rangle = |-,1,n+3 \rangle$ et $|a \rangle = |+,1,n \rangle$ et en remplaçant dans les dénominateurs d'énergie ω_0 par $\frac{3\omega}{2}$

$$\begin{aligned} \overline{R}_{ab} &= \frac{\langle +1, n | V | +1, n+1 \rangle \langle +1, n+1 | V | 0, n+2 \rangle \langle 0, n+2 | V | -1, n+3 \rangle}{(-\frac{\omega}{2})(-\omega)} \\ &+ \frac{\langle +1, n | V | 0, n+1 \rangle \langle 0, n+1 | V | -1, n+2 \rangle \langle -1, n+2 | V | -1, n+3 \rangle}{\omega \times \frac{\omega}{2}} \end{aligned} \quad (\text{App. II, 16})$$

Soit encore en remplaçant V par son expression générale (I, B, 14) :

$$\overline{R}_{ab} = \frac{2(\lambda \sqrt{n})^3}{\omega^2} \left[\begin{aligned} &\langle -1 | \vec{J} \cdot \vec{\epsilon} | -1 \rangle \langle -1 | \vec{J} \cdot \vec{\epsilon} | 0 \rangle \langle 0 | \vec{J} \cdot \vec{\epsilon} | 1 \rangle \\ &+ \langle -1 | \vec{J} \cdot \vec{\epsilon} | 0 \rangle \langle 0 | \vec{J} \cdot \vec{\epsilon} | 1 \rangle \langle 1 | \vec{J} \cdot \vec{\epsilon} | 1 \rangle \end{aligned} \right] \quad (\text{App. II, 17})$$

Les deux termes dans le crochet de (App. II, 17) prennent des valeurs opposées quelle que soit la polarisation $\vec{\epsilon}$ car on a toujours :

$$\langle -1 | \vec{J} \cdot \vec{\epsilon} | -1 \rangle = - \langle 1 | \vec{J} \cdot \vec{\epsilon} | 1 \rangle$$

On a donc bien en ce point de croisement $\overline{R}_{ab} = 0$.

A P P E N D I C E III

LES NIVEAUX D'ENERGIE DE L'ATOME HABILÉ DANS LES CAS SOLUBLES

1) Champ de radiofréquence linéaire en polarisation π

La diagonalisation de l'hamiltonien

$$\mathcal{H} = \omega a^\dagger a + \omega_0 J_z + \lambda J_z (a + a^\dagger)$$

a été effectué dans les références (47) ou (38). Rappelons-la brièvement : \mathcal{H} commutant avec J_z , on peut le décomposer en $2J+1$ hamiltoniens \mathcal{H}_m agissant chacun à l'intérieur d'un sous-espace d'états de m donné. On peut écrire :

$$\begin{aligned} \mathcal{H}_m &= \omega a^\dagger a + m\omega_0 + \lambda m(a + a^\dagger) \\ &= m\omega_0 + \omega \left(a^\dagger + \frac{\lambda m}{\omega} \right) \left(a + \frac{\lambda m}{\omega} \right) - \frac{m^2 \lambda^2}{\omega^2} \end{aligned} \quad (\text{App. III, 1})$$

Introduisons l'opérateur unitaire de "déplacement" :

$$D\left(\frac{\lambda m}{\omega}\right) = e^{-\frac{\lambda m}{\omega}(a^\dagger - a)} \quad (\text{App. III, 2})$$

dont l'action sur les opérateurs a et a^\dagger est donnée par les relations :

$$\begin{aligned} D\left(\frac{\lambda m}{\omega}\right) a^\dagger D^\dagger\left(\frac{\lambda m}{\omega}\right) &= a^\dagger + \frac{\lambda m}{\omega} \\ D\left(\frac{\lambda m}{\omega}\right) a D^\dagger\left(\frac{\lambda m}{\omega}\right) &= a + \frac{\lambda m}{\omega} \end{aligned} \quad (\text{App. III, 3})$$

On peut alors écrire :

$$\mathcal{H}_m = D\left(\frac{\lambda m}{\omega}\right) \left[m\omega_0 + \omega a^\dagger a - \frac{m^2 \lambda^2}{\omega} \right] D^\dagger\left(\frac{\lambda m}{\omega}\right) \quad (\text{App. III, 4})$$

On en déduit immédiatement le spectre de \mathcal{H}_m

$$E_{\frac{m}{n}} = n\omega + m\omega_0 - \frac{m^2 \lambda^2}{\omega} \quad (\text{App. III, 5})$$

et ses états propres :

$$|\overline{m n}\rangle = e^{-\frac{\lambda m}{\omega}(a^\dagger - a)} |m n\rangle = |m\rangle |\overline{n}_m\rangle \quad (\text{App. III, 6})$$

avec

$$|\overline{n}_m\rangle = e^{-\frac{\lambda m}{\omega}(a^\dagger - a)} |n\rangle \quad (\text{App. III, 7})$$

Le produit scalaire des états $|\overline{n}_m\rangle$ est calculé dans les appendices des références (47). On y montre que pour des valeurs de n et n' suffisamment grandes, on a :

$$\langle n | e^{\alpha(a^\dagger - a)} |n'\rangle = J_{n-n'}(2\alpha\sqrt{n}) \quad (\text{App. III, 8})$$

ce qui permet d'écrire le produit $\langle \overline{n}_m | \overline{n}'_{m'} \rangle$ sous la forme :

$$\langle \overline{n}_m | \overline{n}'_{m'} \rangle = J_{n-n'} \left[(m-m') \frac{\omega_1}{\omega} \right] \quad (\text{App. III, 9})$$

On peut enfin, dans (App. III, 5), totalement négliger le terme en $\frac{m^2\lambda^2}{\omega}$. On a en effet, d'après (I, B, 15) :

$$\frac{m^2\lambda^2}{\omega} = \frac{m^2\omega_1^2}{4\omega n}$$

ce qui est une quantité totalement inobservable étant donné le très grand nombre n de photons contenus dans le champ de radiofréquence. On écrira donc :

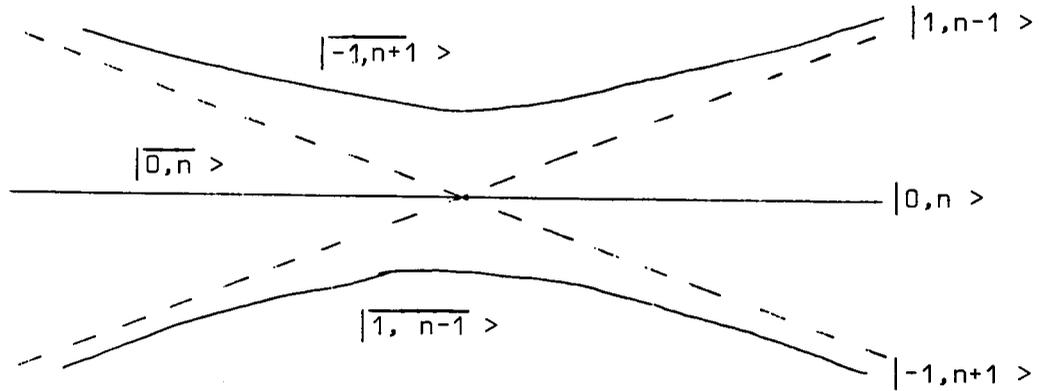
$$E_{m n} = n\omega + m\omega_0 \quad (\text{App. III, 10})$$

2) Champ de radiofréquence tournant en polarisation σ^+

L'hamiltonien \mathcal{H} s'écrit dans ce cas (cf. équation (I, B, 17)) :

$$\mathcal{H} = \omega a^\dagger a + \omega_0 J_z + \lambda [J_+ a + J_- a^\dagger] \quad (\text{App. III, 11})$$

V ne couple alors entre eux que les niveaux du système global tel que $m+n = C^{te}$. La diagonalisation de \mathcal{H} se ramène donc à celle de la perturbation V dans la multiplicité des $(2J+1)$ niveaux de \mathcal{H}_0 qui se croisent dans le champ $\omega_0 = \omega$ (traits pointillés sur la figure ci-après correspondant au cas $J = 1$) :



Nous noterons de façon générale $|m, n-m\rangle$ ($-J \leq m \leq J$) ces $(2J+1)$ niveaux. Dans cette multiplicité, l'hamiltonien \mathcal{H} se met sous la forme :

$$\mathcal{H} = n\omega I + \begin{pmatrix} m(\omega_0 - \omega) & \lambda \sqrt{n-m} \langle m | J_- | m+1 \rangle \\ \lambda \sqrt{n-m} \langle m+1 | J_+ | m \rangle & (m-1)(\omega_0 - \omega) \end{pmatrix}$$

où I est la matrice unité définie dans la multiplicité. $\mathcal{H} - n\omega I$ s'exprime formellement comme l'hamiltonien d'interaction magnétique d'un spin \vec{J} avec un champ statique \vec{h}_0 de composantes $-\frac{\omega_0 - \omega}{\gamma}$ le long de Oz et $-\frac{2\lambda\sqrt{n}}{\gamma} = -\frac{\omega_1}{\gamma}$ le long de Ox (on négligera m devant n et on posera $\lambda\sqrt{n-m} \sim \lambda\sqrt{n}$). Pour diagonaliser l'hamiltonien $\mathcal{H} - n\omega I$, il faut donc lui faire subir la "rotation" qui amène l'axe Oz du champ \vec{h}_0 dans la direction de \vec{h}_0 . Cette "rotation" s'effectue autour de l'axe Oy et son angle θ obéit à la relation suivante qui le définit à π près :

$$\text{tg } \theta = \frac{2\lambda\sqrt{n}}{\omega_0 - \omega} = \frac{\omega_1}{\omega_0 - \omega}$$

Appelons $|m, n-m\rangle_\theta$ l'état déduit de $|m, n-m\rangle$ dans cette "rotation" :

$$|m, n-m\rangle_\theta = \sum_{m'} R_{m',m}^{(J)}(\theta) |m', n-m'\rangle \quad (\text{App. III, 12})$$

$|m, n-m\rangle_\theta$ est un état propre de l'atome habillé. Si l'on prend pour θ la détermination comprise entre $-\pi$ et 0 :

$$-\pi < \theta \leq 0$$

il est facile de voir que cet état est le niveau $|m, n-m\rangle$ de la multiplicité \mathcal{E}_{n-m} . En effet, en champ nul ($\omega_0 = 0$) et en couplage faible ($\frac{\omega_1}{\omega} \ll 1$), $\text{tg } \theta$ tend vers zéro

par valeurs négatives; l'angle θ , en raison de la détermination que nous avons choisie, tend également vers zéro (alors qu'il tendrait vers π si nous avions imposé la condition $0 \leq \theta < \pi$) et $R_{m',m}^{(J)}(\theta)$ tend vers $\delta_{m',m}$. L'équation (App.III,12) se met alors sous la forme :

$$|m, n-m \rangle_{\theta} \approx |m, n-m \rangle$$

ce qui montre bien que l'état $|m, n-m \rangle_{\theta}$ est, par définition, l'état $|\overline{m, n-m} \rangle$ puisqu'il tend, en champ statique faible et à la limite où le couplage s'annule, vers l'état non perturbé $|m, n-m \rangle$.

(App.III,12) s'écrit pour le niveau $|\overline{m, n} \rangle = |m, n \rangle_{\theta}$ sous la forme :

$$|\overline{m, n} \rangle = \sum_{m'} R_{m',m}^{(J)}(\theta) |m', n+m-m' \rangle \quad (\text{équation (III,A,11)})$$

Quant aux valeurs propres de la matrice $\mathcal{H} - n\omega I$, elles sont égales aux énergies propres d'un spin \vec{J} plongé dans le champ \vec{h}_0 dont la valeur absolue $|h_0|$ est égale à

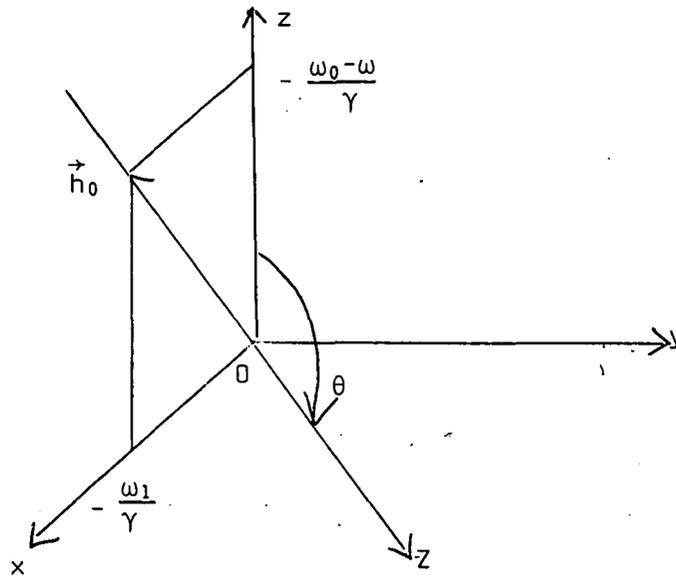
$-\frac{1}{\gamma} \sqrt{(\omega_0 - \omega)^2 + \omega_1^2}$ (si γ est négatif). Le niveau $|m, n-m \rangle_{\theta}$ correspond à un état de moment cinétique m par rapport à l'axe de quantification OZ qui se déduit de la direction Oz de \vec{H}_0 par la rotation de l'angle θ autour de Oy (voir figure ci-après). Comme θ est négatif, la direction de OZ est opposée à celle de \vec{h}_0 ($-\frac{\omega_1}{\gamma}$ est positif ainsi que l'angle de \vec{h}_0 avec Oz); l'état m par rapport à OZ est donc un état $-m$ par rapport à la direction de \vec{h}_0 . Son "énergie magnétique" est égale à $-\gamma(-m)|h_0| = -m \sqrt{(\omega_0 - \omega)^2 + \omega_1^2}$.

L'énergie $E_{\overline{m, n-m}}$ du niveau $|\overline{m, n-m} \rangle$ vaut donc $n\omega - m \sqrt{(\omega_0 - \omega)^2 + \omega_1^2}$ et finalement, en effectuant la translation en énergie qui permet de passer de la multiplicité \mathcal{E}_{n-m} à \mathcal{E}_n , on obtient :

$$E_{\overline{m, n}} = E_{\overline{m, n-m}} + m\omega = n\omega + m(\omega - \sqrt{(\omega_0 - \omega)^2 + \omega_1^2}) \\ = n\omega + m\overline{\omega}_0$$

avec
$$\overline{\omega}_0 = \omega - \sqrt{(\omega_0 - \omega)^2 + \omega_1^2} \quad (\text{équation (III,A,12)})$$

On trouverait le même résultat pour $\overline{\omega}_0$ en supposant γ positif ; l'énergie magnétique dans une multiplicité de l'atome habillé est donc dans tous les cas donnée par (III,A,12).



Remarque :

On notera l'analogie entre la technique que nous venons d'employer pour diagonaliser \mathcal{H} et la méthode classique de passage dans le référentiel tournant. Le champ \vec{h}_0 introduit ici n'est autre, en effet, que le champ effectif vu par les spins dans le référentiel tournant à la fréquence ω autour de l'axe Oz (voir référence (2³)).

Donnons, pour finir, la valeur des éléments de matrice $R_{m'm}^{(J)}(\theta)$ qui interviennent dans l'équation (III,A,11) dans le cas d'un spin $J = 1$ et $J = 2$ (ces éléments de matrice interviennent explicitement dans l'expression des signaux résonnants détectés en orientation et en alignement sur un atome habillé par un champ de radiofréquence tournant (Voir chapitre IV); ils sont également utiles au calcul des amplitudes de transition induites par un champ hyperfréquence sur les atomes alcalins habillés (voir chapitre V)).

$$R^{(1)}(\theta) = \begin{matrix} & \begin{matrix} 1 & 0 & -1 \end{matrix} \\ \begin{matrix} 1 \\ 0 \\ -1 \end{matrix} & \left(\begin{array}{ccc} \frac{1+\cos\theta}{2} & -\frac{\sin\theta}{\sqrt{2}} & \frac{1-\cos\theta}{2} \\ \frac{\sin\theta}{2} & \cos\theta & -\frac{\sin\theta}{2} \\ \frac{1-\cos\theta}{2} & \frac{\sin\theta}{\sqrt{2}} & \frac{1+\cos\theta}{2} \end{array} \right) \end{matrix}$$

Pour un spin $J = 2$, on a

$$R_{22}^{(2)}(\theta) = \frac{(\cos\theta+1)^2}{4}$$

$$R_{12}^{(2)}(\theta) = \frac{\sin\theta(1+\cos\theta)}{2}$$

$$R_{02}^{(2)}(\theta) = \frac{\sqrt{6}}{4} \sin^2\theta$$

$$R_{-12}^{(2)}(\theta) = \frac{\sin\theta}{2}(1-\cos\theta)$$

$$R_{-22}^{(2)}(\theta) = \frac{(1-\cos\theta)^2}{4}$$

$$R_{11}^{(2)}(\theta) = \frac{(\cos\theta+1)(2\cos\theta-1)}{2}$$

$$R_{01}^{(2)}(\theta) = \sqrt{\frac{3}{2}} \sin\theta\cos\theta$$

$$R_{-11}^{(2)}(\theta) = \frac{(1-\cos\theta)(2\cos\theta+1)}{2}$$

$$R_{00}^{(2)}(\theta) = \frac{3\cos^2\theta-1}{2}$$

Tous les autres éléments de matrice se déduisent des précédents en appliquant les relations :

$$R_{M'M}^{(2)*}(\theta) = R_{MM'}^{(2)-1}(\theta) = R_{MM'}^{(2)}(-\theta)$$

et

$$R_{MM'}^{(2)}(\theta) = (-1)^{M-M'} R_{-M,-M'}^{(2)}(\theta)$$

A P P E N D I C E IVLES OPERATEURS TENSORIELS FICTIFS DE L'ATOME HABILLE

L'objet de cet Appendice est d'étudier un certain nombre de propriétés des opérateurs tensoriels fictifs ${}^{nn'}\mathcal{E}_q^k$. Nous commencerons par donner une démonstration de la formule (III,B,36) qui relie ces opérateurs aux projections ${}^{nn'}T_q^k$ des opérateurs tensoriels atomiques dans les multiplicités de l'atome habillé. Nous étudierons ensuite quelques propriétés des coefficients de couplage opératoriels ${}^{(r)}A_{qq'}^k$, qui interviennent dans cette formule. Puis nous établirons l'équation pilote satisfaite par les opérateurs tensoriels fictifs dans le cas où le terme de relaxation peut prendre une forme générale quelconque. Nous étudierons enfin plus particulièrement les équations décrivant le transfert d'excitation entre niveaux atomiques différents lorsque l'atome est habillé par un champ de radiofréquence polarisé linéairement ou circulairement en champ statique faible (ces équations sont utiles aux § V-B et V-C).

1) Relation entre les opérateurs tensoriels fictifs de l'atome habillé et les opérateurs tensoriels atomiques

a) Notations préliminaires

En raison du très grand nombre de photons contenus dans le champ et de leur faible dispersion autour de la valeur N , nous pouvons écrire :

$$\begin{cases} a^\dagger |n\rangle = \sqrt{n+1} |n+1\rangle \approx \sqrt{N} |n+1\rangle \\ a |n\rangle = \sqrt{n} |n-1\rangle \approx \sqrt{N} |n-1\rangle \end{cases} \quad (\text{App. IV, 1})$$

et de façon générale (tant que $p \ll N$) :

$$\begin{cases} (a^\dagger)^p |n\rangle \approx (\sqrt{N})^p |n+p\rangle \\ a^p |n\rangle \approx (\sqrt{N})^p |n-p\rangle \end{cases} \quad (\text{App. IV, 2})$$

Ces approximations reviennent à négliger le commutateur $[a, a^\dagger]$ des opérateurs de création et d'annihilation devant les éléments de matrice en \sqrt{N} de a et a^\dagger et à considérer ces opérateurs comme des grandeurs classiques qui commutent entre elles. On est alors

amené à définir des opérateurs b et b^\dagger agissant sur les variables du champ par les relations :

$$b^\dagger = \frac{a^\dagger}{\sqrt{N}} \quad ; \quad b = \frac{a}{\sqrt{N}} \quad (\text{App.IV,3})$$

Les opérateurs de création et d'annihilation ainsi normés sont pratiquement inverses l'un de l'autre lorsqu'ils agissent sur des états du champ dont le nombre moyen de photons est voisin de N . Nous écrirons donc :

$$b^{-1} \sim b^\dagger \quad (\text{App.IV,4})$$

et nous poserons :

$$b^0 = I_{\text{RF}} \quad (\text{App.IV,5})$$

On déduit alors immédiatement des formules (App.IV,1 à 5) la relation valable quel que soit s entier positif, négatif ou nul :

$$b^s |n\rangle = |n-s\rangle \quad (\text{App.IV,6})$$

L'action des opérateurs b et b^\dagger sur l'état propre $|\overline{m,n}\rangle$ de l'atome habillé conduit de même à la relation :

$$b^s |\overline{m,n}\rangle = |\overline{m,n-s}\rangle \quad (\text{App.IV,7})$$

En effet, l'opérateur b (ou b^\dagger) abaisse (ou élève) d'une unité le nombre de photons contenus dans chacun des états propres de \mathcal{H}_0 sur lesquels se décompose $|\overline{m,n}\rangle$ ce qui revient, étant donnée l'invariance des niveaux d'énergie par translation du nombre de photons, à passer d'un niveau de l'atome habillé au niveau correspondant d'une multiplicité voisine.

D'autre part, appelons P_n le projecteur sur l'ensemble des états propres $|m,n\rangle$ de \mathcal{H}_0 de n donné :

$$P_n = \sum_m |m,n\rangle \langle m,n| \quad (\text{App.IV,8})$$

Le projecteur \overline{P}_n sur la multiplicité \mathcal{E}_n de l'atome habillé s'écrit alors, compte tenu de (III,A,1) :

$$\overline{P}_n = U_A P_n U_A^\dagger \quad (\text{App.IV,9})$$

et les équations (App.IV,6) et (App.IV,7) entraînent les relations :

$$b^s P_n b^{\dagger s} = P_{n-s} \quad (\text{App. IV, 10})$$

$$b^s \bar{P}_n b^{\dagger s} = \bar{P}_{n-s} \quad (\text{App. IV, 11})$$

Compte tenu de cette dernière relation, on a évidemment :

$$n n' \mathcal{E}_q^k b^s = n, n'+s \mathcal{E}_q^k \quad (\text{App. IV, 12})$$

$$b^s n, n' \mathcal{E}_q^k = n-s, n' \mathcal{E}_q^k \quad (\text{App. IV, 13})$$

Introduisons enfin l'ensemble d'opérateurs

$$P_n (b^\dagger)^r T_q^k P_{n-r}$$

qui agissent entre deux sous-espaces d'états propres de l'hamiltonien non perturbé \mathcal{H}_0 correspondant à des nombres de photons n et $n-r$ donnés. Ces opérateurs, qui possèdent par construction entre ces états les éléments de matrice standard d'un opérateur tensoriel T_q^k , jouent pour la base non perturbée le rôle des opérateurs $n n' \mathcal{E}_q^k$ dans la base des états propres de l'atome habillé. On a en effet :

$$\langle m_1, n_1 | P_n (b^\dagger)^r T_q^k P_{n-r} | m_2, n_2 \rangle = \langle \overline{m_1, n_1} | n, n-r \mathcal{E}_q^k | \overline{m_2, n_2} \rangle$$

et, compte tenu de (III, A, 1), on passe du premier ensemble d'opérateurs au second à l'aide de la transformation unitaire U_A suivant la relation qui nous sera utile par la suite :

$$n, n-r \mathcal{E}_q^k = U_A P_n (b^\dagger)^r T_q^k P_{n-r} U_A^\dagger \quad (\text{App. IV, 14})$$

b) Décompositions de $n n' T_q^k$ sur les $n n' \mathcal{E}_q^k$

Compte tenu de (App. IV, 9), on a :

$$\begin{aligned} n, n-r T_q^k &= \bar{P}_n T_q^k \otimes I_{RF} \bar{P}_{n-r} \\ &= U_A P_n U_A^\dagger T_q^k \otimes I_{RF} U_A P_{n-r} U_A^\dagger \end{aligned} \quad (\text{App. IV, 15})$$

Etudions plus en détail l'opérateur :

$$\bar{T}_q^k = U_A^\dagger T_q^k \otimes I_{RF} U_A$$

U_A^\dagger est l'opérateur unitaire associé à la transformation adiabatique inverse de celle que nous avons décrite au § III-A. Appelons T la durée de cette transformation. L'hamiltonien du système passe entre les instants 0 et T de

$$\mathcal{H}(0) = \omega a^\dagger a + \omega_0 J_z + \lambda \vec{J} (a \vec{\epsilon} + a^\dagger \vec{\epsilon}^*)$$

à

$$\mathcal{H}(T) = \omega a^\dagger a$$

en prenant des valeurs intermédiaires $\mathcal{H}(t)$ correspondant à des paramètres $\omega_0(t)$ et $\lambda(t)$ ($0 < t < T$). Nous écrirons donc :

$$\bar{T}_q^k = \bar{T}_q^k(T) = U_A^{-1}(T,0) T_q^k \otimes I_{RF} U_A(T,0)$$

$$\text{et} \quad \bar{T}_q^k(0) = T_q^k \otimes I_{RF}$$

La variation de l'opérateur $\bar{T}_q^k(t)$ entre les instants t et t+dt s'écrit par ailleurs (point de vue de Heisenberg) :

$$\bar{T}_q^k(t+dt) - \bar{T}_q^k(t) = i [\mathcal{H}(t), \bar{T}_q^k(t)] dt$$

Elle est proportionnelle au commutateur de $\bar{T}_q^k(t)$ avec l'hamiltonien "instantané" $\mathcal{H}(t)$. Etant donné la forme dipolaire magnétique de cet hamiltonien qui reste toujours linéaire par rapport aux composantes de \vec{J} , ce commutateur ne peut changer l'ordre tensoriel de l'opérateur atomique T_q^k initial : séparons T en intervalles de temps infinitésimaux dT; entre les instants 0 et dT, la variation de \bar{T}_q^k , égale à $i [\mathcal{H}(0), T_q^k \otimes I_{RF}] dt$ fait intervenir le commutateur de T_q^k avec les opérateurs J_z et $\vec{J} (a \vec{\epsilon} + a^\dagger \vec{\epsilon}^*)$ et se décompose manifestement sur les opérateurs $a T_q^k$, et $a^\dagger T_q^k$; entre les instants dT et 2dT, la variation de \bar{T}_q^k qui va dépendre du commutateur de $\bar{T}_q^k(dT)$ avec $\mathcal{H}(dT)$ va faire apparaître de nouveaux termes en $(a^\dagger)^2 T_q^k$, $a^2 T_q^k$, $aa^\dagger T_q^k$, etc. Finalement \bar{T}_q^k se développera à l'issue de la transformation adiabatique à l'instant T sur des opérateurs de la forme $(a^\dagger)^\alpha a^\beta (a^\dagger)^\gamma \dots T_q^k, \dots$ On pourra toujours regrouper les opérateurs de création et d'annihilation entre eux et compte tenu de (App.IV,3), les remplacer dans chaque terme par l'opérateur $(b^\dagger)^r$ avec $r = \alpha - \beta + \gamma \dots$ On écrira donc \bar{T}_q^k sous la forme générale :

$$\bar{T}_q^k(T) = \sum_{q', r} A_{qq'}^{(r)k} (b^\dagger)^r T_q^k,$$

Reportant cette expression dans (App.IV,15) et compte tenu de (App.IV,14), on obtient finalement l'expression (III,B,36) annoncée :

$$\bar{P}_n T_q^k \otimes I_{RF} \bar{P}_{n-r} = {}^{n,n-r}T_q^k = \sum_{q'} \binom{(r)}{A_{qq'}^k} {}^{n,n-r}C_{q'}^k$$

Les coefficients de couplage $\binom{(r)}{A_{qq'}^k}$, dépendent de relations de commutation opératorielleles valables quelle que soit la taille effective du spin considéré et sont donc indépendants de J; ils sont évidemment en général fonction de ω_0 , ω_1 et ω (voir équations (III,B,37) et (III,B,38)). On calcule de même la projection $\bar{P}_n T_q^k \otimes b^s \bar{P}_{n-r}$ (${}^{n,n-r}T_q^k$ correspond au cas $s = 0$) en remarquant que l'on peut écrire, compte tenu de (App.IV,11) :

$$\bar{P}_n T_q^k \otimes b^s \bar{P}_{n-r} = \bar{P}_n T_q^k \otimes I_{RF} \bar{P}_{n-r-s} b^s$$

On en déduit donc à partir de (III,B,36) et (App.IV,12) :

$$\begin{aligned} \bar{P}_n T_q^k \otimes b^s \bar{P}_{n-r} &= \sum_{q'} \binom{(r+s)}{A_{qq'}^k} {}^{n,n-r-s}C_{q'}^k b^s \\ &= \sum_{q'} \binom{(r+s)}{A_{qq'}^k} {}^{n,n-r}C_{q'}^k \end{aligned} \quad (\text{App.IV,16})$$

2) Propriétés des coefficients de couplage $\binom{(r)}{A_{qq'}^k}$

a) Relation de conjugaison complexe

L'équation conjuguée de (III,B,36) s'écrit, compte tenu de (III,B,9) et (III,B,23) :

$$(-1)^q {}^{n-r,n}T_{-q}^k = \sum_{q'} \binom{(r)}{A_{qq'}^k}^* (-1)^{q'} {}^{n-r,n}C_{-q'}^k$$

Comme on a d'autre part

$${}^{n-r,n}T_{-q}^k = \sum_{q'} \binom{(-r)}{A_{-q,-q'}^k} {}^{n-r,n}C_{-q'}^k$$

on en déduit :

$$\binom{(r)}{A_{qq'}^k}^* = (-1)^{q-q'} \binom{(-r)}{A_{-q,-q'}^k} \quad (\text{App.IV,17})$$

b) Relations d'orthogonalité

Calculons la trace de l'opérateur $b^s T_q^k T_{q'}^{k' \dagger}$ dans la multiplicité

\mathcal{E}_n :

$$\begin{aligned} \text{Tr} \{ \bar{P}_n b^s T_q^k T_{q'}^{k' \dagger} \bar{P}_n \} &= \sum_m \sum_{\substack{m_1 n_1 \\ m_2 n_2}} \langle \bar{m} \bar{n} | m_1 n_1 \rangle \langle m_1 n_1 | b^s T_q^k T_{q'}^{k' \dagger} | m_2 n_2 \rangle \langle m_2 n_2 | \bar{m} \bar{n} \rangle \\ &= \sum_m \sum_{m_1 n_1} \langle \bar{m} \bar{n} | m_1 n_1 \rangle \langle m_1 + q' - q, n_1 + s | \bar{m} \bar{n} \rangle \langle m_1 | T_q^k T_{q'}^{k' \dagger} | m_1 + q' - q \rangle \end{aligned}$$

Etant donnée l'invariance par translation des niveaux d'énergie de l'atome habillé, on peut dans l'expression précédente remplacer la sommation sur n_1 à n fixé par une sommation sur n à n_1 fixé : la sommation sur m et n fait alors apparaître le produit scalaire $\langle m_1 + q' - q, n_1 + s | m_1, n_1 \rangle = \delta_{q', q} \delta_{s, 0}$.

La dernière sommation sur m_1 revient à prendre la trace dans l'espace (αJ) du produit $T_q^k T_{q'}^{k' \dagger}$ et fait apparaître un symbole $\delta_{kk'}$. On obtient finalement :

$$\text{Tr} \{ \bar{P}_n b^s T_q^k T_{q'}^{k' \dagger} \bar{P}_n \} = \delta_{kk'} \delta_{qq'} \delta_{s, 0}$$

soit encore :

$$\sum_r \text{Tr} \{ \bar{P}_n b^s T_q^k \bar{P}_{n-r} T_{q'}^{k' \dagger} \otimes I_{RF} \bar{P}_n \} = \delta_{kk'} \delta_{qq'} \delta_{s, 0}$$

On peut, dans cette dernière expression, remplacer les projections $\bar{P}_n b^s T_q^k \bar{P}_{n-r}$ et $\bar{P}_{n-r} T_{q'}^{k' \dagger} \otimes I_{RF} \bar{P}_n$ par leurs développements tirés de (App.IV,16) et (III,B,36).

On obtient alors :

$$\sum_r \sum_{q''} \sum_{q'''} \binom{r+s}{qq''} A_{qq''}^k \binom{r}{q''q'''} A_{q''q'''}^{k' *} \text{Tr} \left\{ \binom{n, n-r}{q''} \mathcal{C}_{q''}^k \binom{n, n-r}{q'''} \mathcal{C}_{q'''}^{k' \dagger} \right\} = \delta_{kk'} \delta_{qq'} \delta_{s, 0}$$

Soit, compte tenu de (III,B,22) :

$$\sum_{rq''} \binom{r+s}{qq''} A_{qq''}^k \binom{r}{q''q'''} A_{q''q'''}^{k' *} = \delta_{qq'} \delta_{s, 0} \quad (\text{App.IV,18})$$

On démontrerait de même la relation symétrique :

$$\sum_{rq''} \binom{r+s}{q''q} A_{q''q}^k \binom{r}{q''q'} A_{q''q'}^{k' *} = \delta_{qq'} \delta_{s, 0} \quad (\text{App.IV,19})$$

c) Les coefficients de couplage dans le cas d'un champ de radio-
fréquence linéaire en polarisation σ

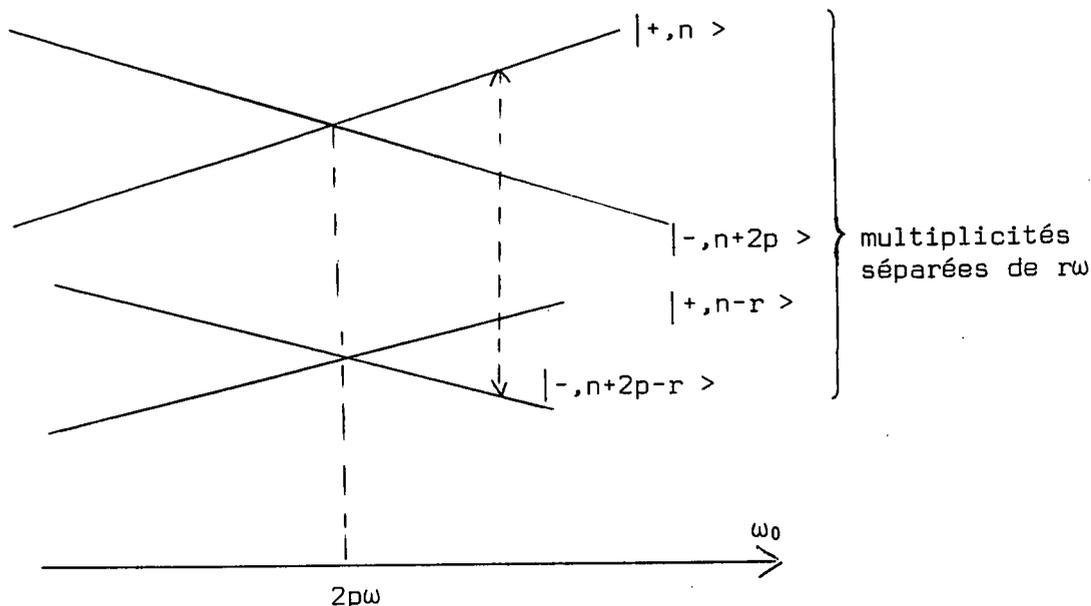
Les équations (III,B,37) et (III,B,38) donnent l'expression des coefficients ${}^{(r)}A_{qq'}^k$, dans les deux cas solubles d'un champ habillant en polarisation π ou σ_+ . Dans le cas général, ces coefficients peuvent être obtenus à partir de la formule (III,B,39) :

$${}^{(r)}A_{qq'}^k = (-1)^{J-m+q'} \frac{\langle \overline{m\ n} | T_q^k | \overline{m-q'\ n-r} \rangle}{\langle JJ, m, -m+q' | kq' \rangle}$$

qui ne peut se calculer que par approximations.

Nous allons établir ici quelques propriétés générales auxquelles satisfont les coefficients de couplage pour une radiofréquence linéaire en polarisation σ . Ces propriétés sont utiles pour la description des principales caractéristiques des résonances de cohérence observées dans ce cas de polarisation (voir § IV-C-3).

Les règles de sélection satisfaites par les éléments de matrice de V pour cette polarisation de la radiofréquence montrent (§ I-B-3-b) que le niveau $|\overline{m, n}\rangle$ ne se décompose que sur les états non perturbés $|m_1, n_1\rangle$ tels que les différences des nombres quantiques $|m-m_1|$ et $|n-n_1|$ soient de mêmes parités. Le coefficient ${}^{(r)}A_{qq'}^k$, proportionnel, d'après (III,B,39), à $\langle \overline{m, n} | T_q^k | \overline{m-q', n-r} \rangle$ ne sera non nul que s'il existe dans les développements de $|\overline{m, n}\rangle$ et $|\overline{m-q', n-r}\rangle$ deux états $|m_1, n_1\rangle$ et $|m_1-q, n_1\rangle$ couplés entre eux par l'opérateur atomique T_q^k . Il faut pour cela que $|m-m_1|$ et $|n-n_1|$ d'une part, $|m-m_1+q-q'|$ et $|n-n_1-r|$ d'autre part soient de mêmes parités. Cette double condition impose alors à $|q-q'|$ et r d'être également de même parité. On en déduit donc finalement que ${}^{(r)}A_{qq'}^k$ n'est différent de zéro que si $|q-q'+r|$ est pair. En particulier, les coefficients de la forme ${}^{(r)}A_{q, \pm 1}^1$ ne sont différents de zéro que si q et r sont de parités opposées (voir § IV-C-3-b). Supposons cette condition remplie et précisons l'ordre de grandeur de ces coefficients au voisinage d'un croisement de niveaux $\omega_0 = 2p\omega$ du diagramme d'énergie d'un spin 1/2 habillé par un champ de radiofréquence en polarisation σ . D'après (III,B,39), les coefficients ${}^{(r)}A_{q, \pm 1}^1$ sont proportionnels à un élément de matrice de T_q^1 entre deux niveaux du spin 1/2 habillé de pentes opposées et appartenant à deux multiplicités distantes de $r\omega$. Au point de croisement $\omega_0 = 2p\omega$, et à l'ordre zéro en ω_1/ω , ces deux niveaux diffèrent de $2p-r$ photons (ce sont par exemple les niveaux non perturbés $|+, n\rangle$ et $|-, n+2p-r\rangle$ reliés par une flèche sur le diagramme ci-après). L'élément de matrice de T_q^1 entre les niveaux "perturbés"



apparaît donc à un ordre minimum $|2p-r|$, correspondant au nombre de transitions virtuelles nécessaires pour ramener dans les deux niveaux une certaine proportion d'états contenant le même nombre de photons (voir § I-D-2-b). Ainsi, finalement, le coefficient $(r) A_{q, \pm 1}^{-1}$, qui n'est différent de zéro que si $q+r$ est impair, est au voisinage du croisement de niveaux $\omega_0 = 2p\omega$, une quantité d'un ordre minimum $|2p-r|$ en ω_1/ω (voir § IV-C-3-c).

3) L'équation pilote des $\langle nn' \mathcal{C}_q^k \rangle$

a) Le terme d'évolution propre

Il s'écrit :

$$\frac{d^{(3)}}{dt} nn' \mathcal{C}_q^k = -i \left[nn' \mathcal{C}_q^k, \mathcal{H} \right]$$

soit, en remplaçant \mathcal{H} par son expression (III,B,19) et en tenant compte des relations de commutation (III,B,21) :

$$\frac{d^{(3)}}{dt} nn' \mathcal{C}_q^k = i \left[(n-n')\omega + q\bar{\omega}_0 \right] nn' \mathcal{C}_q^k$$

ou dans la représentation d'interaction définie par (III,C,4) :

$$\frac{d^{(3)}}{dt} \text{nn}' \tilde{\mathcal{C}}_q^k = iq\bar{\omega}_0 \text{nn}' \tilde{\mathcal{C}}_q^k \quad (\text{App.IV,20})$$

b) Le terme de pompage

Il s'obtient en prenant la trace du produit de $\text{nn}' \tilde{\mathcal{C}}_q^k$ par le terme source (II,C,6) de l'équation pilote de l'atome habillé :

$$\frac{d^{(1)}}{dt} \langle \text{nn}' \tilde{\mathcal{C}}_q^k \rangle = \text{Tr} \left\{ \text{nn}' \tilde{\mathcal{C}}_q^k \lambda_p^{\text{at}} \otimes \rho_{\text{RF}}(t) \right\}$$

Compte tenu de la décomposition tensorielle (III,C,3) de λ_p^{at} , on peut mettre ce terme sous la forme :

$$\frac{d^{(1)}}{dt} \langle \text{nn}' \tilde{\mathcal{C}}_q^k \rangle = \sum_{k',q'} \lambda_{q'}^{k',*} \text{Tr} \text{nn}' \tilde{\mathcal{C}}_q^k \left\{ \bar{P}_{n'} T_{q'}^{k'} \otimes \rho_{\text{RF}} \bar{P}_n \right\} \quad (\text{App.IV,21})$$

$$= \sum_{k',q'} \lambda_{q'}^{k',*} \text{Tr} \text{nn}' \tilde{\mathcal{C}}_q^k \left\{ \sum_{n''} \bar{P}_{n''} T_{q'}^{k'} \otimes I_{\text{RF}} \bar{P}_{n''} \rho_{\text{RF}} \otimes I_{\text{at}} \bar{P}_n \right\}$$

(App.IV,22)

Afin d'évaluer l'opérateur $\bar{P}_{n''} \rho_{\text{RF}} \otimes I_{\text{at}} \bar{P}_n$ qui figure dans cette dernière expression, nous allons calculer l'élément de matrice $\langle \overline{m''n''} | \rho_{\text{RF}} \otimes I_{\text{at}} | \overline{mn} \rangle$. Compte tenu de la décomposition (II,B,3) de $\rho_{\text{RF}}(t)$, on peut écrire :

$$\langle \overline{m''n''} | \rho_{\text{RF}} \otimes I_{\text{at}} | \overline{mn} \rangle = \sum_{m',p} \sum_r \langle \overline{m''n''} | m',p \rangle \langle m',p-r | \overline{mn} \rangle C_p C_{p-r}^* e^{-ir\omega t} \quad (\text{App.IV,23})$$

r étant très petit devant la largeur de la distribution photonique, on peut écrire $C_p C_{p-r}^* \approx |C_p|^2 = \mathcal{P}(p)$. D'autre part, on peut remplacer le produit scalaire $\langle m',p-r | \overline{mn} \rangle$ par $\langle m',p | \overline{m,n+r} \rangle$ (invariance par translation des propriétés du diagramme d'énergie), si bien que l'on met (App.IV,23) sous la forme :

$$\langle \overline{m''n''} | \rho_{\text{RF}} \otimes I_{\text{at}} | \overline{mn} \rangle = \sum_{m',p,r} \langle \overline{m''n''} | m',p \rangle \langle m',p | \overline{m,n+r} \rangle \mathcal{P}(p) e^{-ir\omega t} \quad (\text{App.IV,24})$$

La sommation sur p dans cette dernière expression porte sur un petit nombre effectif de valeurs de p voisin de n'' et $n+r$; on peut donc négliger la variation de $\mathcal{P}(p)$ dans cette sommation et mettre en facteur. $\mathcal{P}(n) \approx \mathcal{P}(n+r) \approx \mathcal{P}(n'')$. La somme sur m' et p se réduit alors à une relation de fermeture qui fait apparaître le produit scalaire $\langle \overline{m''n''} | \overline{m,n+r} \rangle = \delta_{mm''} \delta_{n'',n+r}$. On obtient enfin:

$$\begin{aligned}
 \langle \overline{m''n''} | \rho_{RF} \otimes I_{at} | \overline{mn} \rangle &= \mathcal{P}(n) \sum_r \delta_{n'', n+r} \delta_{mm''} e^{-ir\omega t} \\
 &= \mathcal{P}(n) \delta_{mm''} e^{-i(n''-n)\omega t} \quad (\text{App.IV,25})
 \end{aligned}$$

relation qui montre que les éléments de la matrice densité du champ de radiofréquence sont les mêmes dans la base découplée $|m, n\rangle$ que dans la base des états de l'atome habillé.

Compte tenu de (App.IV,25) et de (III,B,36), nous pouvons donner de l'opérateur entre accolades dans (App.IV,21) l'expression suivante :

$$\overline{P}_{n'} T_{q'}^k \otimes \rho_{RF} \overline{P}_n = \mathcal{P}(n) \sum_{n''q''} (n'-n'') A_{q'q''}^{k'} n'n \mathcal{C}_{q''}^{k'} e^{-i(n''-n)\omega t} \quad (\text{App.IV,26})$$

ce qui permet de mettre le terme de pompage sous la forme :

$$\begin{aligned}
 \frac{d^{(1)}}{dt} \langle nn' \mathcal{C}_q^k \rangle &= \mathcal{P}(n) \sum_{k'q'} \sum_{n''} \sum_{q''} \lambda_{q'}^{k'*} (n'-n'') A_{q'q''}^{k'} e^{-i(n''-n)\omega t} \\
 &\quad \times \text{Tr} \left\{ nn' \mathcal{C}_q^k n'n \mathcal{C}_{q''}^{k'} \right\} \quad (\text{App.IV,27})
 \end{aligned}$$

On peut, dans cette expression, remplacer $n'n \mathcal{C}_{q''}^{k'}$ par $(-1)^{q''} nn' \mathcal{C}_{-q''}^{k'†}$. On applique alors la relation d'orthogonalité des opérateurs tensoriels fictifs (équation (III,B,22)) qui remplace la trace par $\delta_{kk'} \delta_{q, -q''}$. La sommation sur k' et q'' disparaît alors dans (App.IV,27) qui devient :

$$\frac{d^{(1)}}{dt} \langle nn' \mathcal{C}_q^k \rangle = \mathcal{P}(n) \sum_{q'n''} (-1)^{q'} \lambda_{q'}^{k'*} (n'-n'') A_{q',-q}^k e^{-i(n''-n)\omega t}$$

Compte tenu des relations de conjugaison..

$$\lambda_{q'}^{k*} = (-1)^{q'} \lambda_{-q'}^k,$$

et

$$(n'-n'') A_{q',-q}^k = (-1)^{q'+q} (n''-n') A_{-q',q}^{k*} \quad (\text{équation (App.IV,17)})$$

Le terme de pompage ... s'écrit enfin :

$$\frac{d^{(1)}}{dt} \langle nn' \mathcal{E}_q^k \rangle = \mathcal{P}(n) \sum_{q', n''} \lambda_{q'}^k (n''-n') A_{q',q}^{k*} e^{-i(n''-n)\omega t}$$

soit encore en représentation d'interaction et en posant $n''-n' = s$:

$$\frac{d^{(1)}}{dt} \langle nn' \tilde{\mathcal{E}}_q^k \rangle = \mathcal{P}(n) \sum_{q', s} \lambda_{q'}^k (s) A_{q',q}^{k*} e^{-is\omega t} \quad (\text{App. IV, 28})$$

On trouve ainsi le terme source de l'équation (III,C,5). Le calcul présenté ici est une généralisation au cas d'une polarisation quelconque de la radiofréquence de celui effectué par C. LANDRÉ dans sa thèse de 3e cycle (⁴⁸) dans le cas d'un champ oscillant parallèle à \vec{H}_0 . On retrouve d'ailleurs le résultat relatif à ce cas particulier en remplaçant dans (App. IV, 28) $(s) A_{q',q}^{k*}$ par son expression tirée de (III, B, 37).

c) Le terme d'amortissement

Nous envisageons le type d'amortissement le plus général possible couplant éventuellement entre eux des niveaux atomiques (αJ) et ($\alpha' J'$) différents ou des ordres tensoriels distincts. Nous supposons cependant la séparation des niveaux atomiques suffisamment grande devant les fréquences de Bohr à l'intérieur de chaque niveau pour pouvoir négliger par approximation séculaire le couplage éventuel entre les cohérences "Zeeman" à l'intérieur d'un niveau et les cohérences "haute fréquence" entre niveaux différents. Nous nous intéresserons uniquement à l'évolution des populations et cohérences Zeeman et nous écrirons la matrice densité atomique ρ_{at} sous la forme déduite de (III, B, 13) en négligeant les termes "non diagonaux" $\alpha \alpha' T_{q'}^{k}$:

$$\rho_{at} = \sum_{k', q'} \sum_{J\alpha} \alpha \alpha_C^{k'} \alpha \alpha_T^{k'} \quad (\text{App. IV, 29})$$

avec

$$\alpha \alpha_C^{k'} = \langle \alpha \alpha_T^{k'} \rangle \quad (\text{relation (III, B, 14)})$$

L'amortissement des différentes grandeurs tensorielles sera donné pour l'atome libre par les équations couplées :

$$\frac{d^{(2)}}{dt} \langle \alpha \alpha_T^{k'} \rangle = \sum_{\substack{k', q' \\ J', \alpha'}} \mathcal{R}_{kqJ\alpha}^{k'q'J'\alpha'} \langle \alpha' \alpha'_T^{k'} \rangle \quad (\text{App. IV, 30})$$

Les coefficients $\mathcal{R}_{\substack{kqJ\alpha \\ k'q'J'\alpha'}}$ vérifient la relation de conjugaison complexe obtenue en considérant l'équation conjuguée de (App.IV,30) et en utilisant (III,B,9) :

$$\mathcal{R}_{\substack{kqJ\alpha \\ k'q'J'\alpha'}}^* = (-1)^{q-q'} \mathcal{R}_{\substack{k-qJ\alpha \\ k'-q'J'\alpha'}} \quad (\text{App.IV,31})$$

Nous supposons que le champ de radiofréquence agit séparément sur chaque niveau (αJ) et nous appellerons $\sum_{\alpha\alpha'}^{\eta\eta'} \mathcal{C}_q^k$ les opérateurs tensoriels fictifs définis dans chacun de ces niveaux. Nous nous proposons d'établir l'équation d'amortissement de ces opérateurs correspondant à (App.IV,30). Commençons par préciser certaines notations : bien qu'ils soient indépendants du spin J, les coefficients de couplage ${}^{(r)}A_{qq'}^k$, dépendent finalement du niveau par son rapport gyromagnétique. Nous les noterons donc ${}^{(r)}A_{qq'}^k(\alpha)$ et nous écrirons :

$$\sum_{\alpha\alpha'}^{\eta\eta'} T_q^k = \sum_{\alpha\alpha'}^{\eta\eta'} {}^{(r)}A_{qq'}^k(\alpha) \sum_{\alpha\alpha'}^{\eta\eta'} \mathcal{C}_q^k \quad (\text{App.IV,32})$$

Nous appellerons enfin $\bar{P}_{n\alpha J}$ le projecteur sur la multiplicité \mathcal{E}_n de l'atome habillé dans le niveau (αJ).

D'après (II,C,3), l'équation d'amortissement de la matrice densité ρ^h de l'atome habillé peut s'écrire :

$$\frac{d^{(2)}}{dt} \rho^h = \left\{ \frac{d^{(2)}}{dt} \rho_{at} \right\} \otimes \rho_{RF}(t)$$

Soit, compte tenu de (App.IV,29), (App.IV,30) et (III,B,14) :

$$\frac{d^{(2)}}{dt} \rho^h = \sum_{k'q'} \sum_{J\alpha} \sum_{k''q''} \sum_{J'\alpha'} \mathcal{R}_{\substack{k'q'J\alpha \\ k''q''J'\alpha'}}^* \sum_{\alpha'\alpha''}^{J'J'} C_{q''}^{k''*} \sum_{\alpha\alpha'}^{JJ} T_{q'}^{k'} \otimes \rho_{RF}(t)$$

On obtient alors :

$$\begin{aligned} \frac{d^{(2)}}{dt} \langle \sum_{\alpha\alpha'}^{\eta\eta'} \mathcal{C}_q^k \rangle &= \text{Tr} \left\{ \sum_{\alpha\alpha'}^{\eta\eta'} \mathcal{C}_q^k \frac{d^{(2)}}{dt} \rho^h \right\} \\ &= \sum_{k'q'} \sum_{k''q''} \sum_{J'\alpha'} \mathcal{R}_{\substack{k'q'J\alpha \\ k''q''J'\alpha'}}^* \sum_{\alpha'\alpha''}^{J'J'} C_{q''}^{k''*} \times \text{Tr} \left\{ \sum_{\alpha\alpha'}^{\eta\eta'} \mathcal{C}_q^k \bar{P}_{n\alpha J} \sum_{\alpha\alpha'}^{JJ} T_{q'}^{k'} \otimes \rho_{RF}(t) \bar{P}_{n\alpha J} \right\} \end{aligned}$$

Compte tenu de (App.IV,26), on peut dans cette dernière expression écrire :

$$\overline{P}_{n'\alpha J}^{JJ} \alpha \alpha_T^{k'} \otimes \rho_{RF}(t) \overline{P}_{n\alpha J} = \mathcal{P}(n) \sum_{n''q''}^{(n'-n'')} A_{q',q'',n''}^{k'}(\alpha) \sum_{\alpha\alpha}^{n'n} \mathcal{C}_{q''}^{k'} e^{-i(n''-n)\omega t}$$

(App.IV,34)

L'opérateur $\sum_{\alpha\alpha}^{n'n} \mathcal{C}_{q''}^{k'}$, apparaissant dans (App.IV,34) peut être remplacé par $(-1)^{q''} \sum_{\alpha\alpha}^{n'n} \mathcal{C}_{-q''}^{k'}$. Si l'on reporte alors (App.IV,34) dans (App.IV,33) et si on effectue l'opération de trace, on fait apparaître les symboles de Kronecker $\delta_{kk'}$, $\delta_{q,-q''}$, qui éliminent les sommations sur k' et q'' et on obtient :

$$\frac{d^{(2)}}{dt} \langle \sum_{\alpha\alpha}^{n'n} \mathcal{C}_q^k \rangle = \mathcal{P}(n) \sum_{q'} \sum_{k''q''} \sum_{n''} \sum_{J'\alpha'} (-1)^q \mathcal{R}_0^{*} \begin{matrix} J'J' \\ \alpha'\alpha' \end{matrix} C_{q''}^{k''*} \begin{matrix} kq'J\alpha \\ k''q''J'\alpha' \end{matrix} (n'-n'') A_{q',-q}^k(\alpha) e^{-i(n''-n)\omega t}$$

Passons enfin en représentation d'interaction et appliquons les relations de conjugaison (III,B,15), (App.IV,17) et (App.IV,31). On trouve alors sans peine en posant $n''-n' = s$

$$\frac{d^{(2)}}{dt} \langle \sum_{\alpha\alpha}^{n'n} \mathcal{C}_q^k \rangle = \mathcal{P}(n) \sum_{q'} \sum_{k''q''} \sum_{J'\alpha'} \sum_s \mathcal{R}_0^{*} \begin{matrix} J'J' \\ \alpha'\alpha' \end{matrix} C_{q''}^{k''*} (s) A_{q',q}^k(\alpha) e^{-is\omega t}$$

(App.IV,35)

Cette équation montre que, comme le terme source, le terme d'amortissement est en représentation d'interaction indépendant de la différence $n-n'$. On peut alors introduire la composante réduite de l'opérateur tensoriel fictif :

$$\langle\langle \sum_{\alpha\alpha}^{JJ} \mathcal{C}_q^k \rangle\rangle = \langle \sum_{\alpha\alpha}^{n'n} \tilde{\mathcal{C}}_q^k \rangle / \mathcal{P}(n)$$

et écrire, pour cette composante réduite, l'équation d'amortissement indépendante de n :

$$\frac{d^{(2)}}{dt} \langle\langle \sum_{\alpha\alpha}^{JJ} \mathcal{C}_q^k \rangle\rangle = \sum_{q'} \sum_{k''q''} \sum_{J'\alpha'} \sum_s \mathcal{R}_0^{*} \begin{matrix} J'J' \\ \alpha'\alpha' \end{matrix} C_{q''}^{k''*} (s) A_{q',q}^k(\alpha) e^{-is\omega t}$$

(App.IV,36)

L'expression (App.IV,36) ainsi obtenue dépend cependant encore de la matrice densité atomique réduite ρ_{at} par l'intermédiaire des coefficients $\alpha' \alpha' C_{q''}^{J' J' k''}$. Afin d'éliminer ces quantités, nous allons les exprimer à leur tour en fonction des composantes tensorielles réduites de l'atome habillé. Compte tenu de (III,C,9), on a :

$$\alpha' \alpha' C_{q''}^{J' J' k''} = \langle \alpha' \alpha' T_{q''}^{J' J' k''} \otimes I_{RF} \rangle = \sum_{rq''} (r) A_{q'' q''}^{k''}(\alpha') \langle \alpha' \alpha' \mathcal{C}_{q''}^{k''} \rangle e^{ir\omega t} \quad (\text{App.IV,37})$$

Reportant (App.IV,37) dans (App.IV,36), on obtient enfin :

$$\frac{d^{(2)}}{dt} \langle \alpha \alpha \mathcal{C}_q^k \rangle = \sum_{q'} \sum_{k'' q''} \sum_{J' \alpha'} \sum_s \sum_{rq''} \mathcal{R}_{kq' J \alpha}^{k'' q'' J' \alpha'} (s) A_{q' q'}^{k'' * (\alpha)} (r) A_{q'' q''}^{k''}(\alpha') \langle \alpha' \alpha' \mathcal{C}_{q''}^{k''} \rangle e^{i(r-s)\omega t}$$

soit en effectuant un changement d'indices muets :

$$\frac{d^{(2)}}{dt} \langle \alpha \alpha \mathcal{C}_q^k \rangle = \sum_{k' q'} \sum_{J' \alpha'} \mathcal{R}_{kq J \alpha}^{(h)}{}_{k' q' J' \alpha'} \langle \alpha' \alpha' \mathcal{C}_{q'}^{k'} \rangle \quad (\text{App.IV,38})$$

avec :

$$\mathcal{R}_{kq J \alpha}^{(h)}{}_{k' q' J' \alpha'} = \sum_{q'' q'''} \sum_{rs} (s) A_{q'' q''}^{k'' * (\alpha)} \mathcal{R}_{kq'' J \alpha}^{(h)}{}_{k' q''' J' \alpha'} (r) A_{q'' q''}^{k''}(\alpha') e^{i(r-s)\omega t} \quad (\text{App.IV,39})$$

Dans le cas où la relaxation est isotrope avec une seule constante de temps $1/\Gamma$, les équations (App.IV,38) et (App.IV,39) se simplifient considérablement. On a en effet :

$$\mathcal{R}_{kq'' J \alpha}^{(h)}{}_{k' q''' J' \alpha'} = -\Gamma \delta_{kk'} \delta_{q'' q'''} \delta_{JJ'} \delta_{\alpha \alpha'}$$

Soit en posant $r - s = p$

$$\mathcal{R}_{kq J \alpha}^{(h)}{}_{k' q' J' \alpha'} = -\Gamma \delta_{JJ'} \delta_{\alpha \alpha'} \delta_{kk'} \sum_{sp} \sum_{q''} (s) A_{q'' q''}^{k'' * (s+p)} A_{q'' q''}^{k''}(\alpha) e^{ip\omega t}$$

La sommation sur s et q'' dans cette expression est donnée par (App.IV,19) et fait apparaître les symboles $\delta_{qq'}$, δ_{po} . On obtient finalement :

$$R_{kqJ\alpha}^{(h)} = -\Gamma \delta_{kk'} \delta_{qq'} \delta_{JJ'} \delta_{\alpha\alpha'}$$

et on retrouve que la relaxation doit, sur l'atome habillé, s'effectuer de façon isotrope avec la constante de temps $1/\Gamma$:

$$\frac{d^{(2)}}{dt} \ll \begin{matrix} JJ \\ \alpha\alpha \end{matrix} \mathcal{L}_q^k \gg = -\Gamma \ll \begin{matrix} JJ \\ \alpha\alpha \end{matrix} \mathcal{L}_q^k \gg \quad (\text{App.IV,40})$$

Regroupant les équations (App.IV,20), (App.IV,28) et (App.IV,40), on obtient l'équation pilote (III,C,8) pour les opérateurs tensoriels fictifs de l'atome habillé.

4) Transfert d'excitation entre niveaux atomiques habillés en champ statique faible

Nous nous proposons d'étudier enfin la forme particulière que prennent les équations (App.IV,38) et (App.IV,39) dans le cas où les multiplicités de niveaux de l'atome habillé sont bien séparées les unes des autres, c'est-à-dire lorsque la condition

$$\bar{\omega}_{\alpha\alpha'}, \bar{\omega}_{\alpha\alpha''} \ll \omega \quad (\text{App.IV,41})$$

est remplie. Nous montrons, au chapitre V, que pour un champ de radiofréquence polarisé linéairement, nous sommes dans cette situation si le champ statique est petit ($\omega_0 < \omega$); si le champ de radiofréquence est tournant, il faut de plus que l'on soit dans un domaine de couplage faible ($\frac{\omega_1}{\omega} < 1$). Nous supposons ces conditions remplies. Nous supposons également ici que le processus de transfert d'excitation entre les deux niveaux (αJ) et ($\alpha' J'$) est isotrope et ne couple pas entre eux des ordres tensoriels k et k' différents. On a alors :

$$R_{kq''J\alpha}^{(k)} = \Gamma_{\alpha\alpha'} \delta_{kk'} \delta_{q''q'''} \quad (\text{App.IV,42})$$

Compte tenu de (App.IV,42), l'équation (App.IV,39) s'écrira :

$$\mathcal{R}_{\substack{kqJ\alpha \\ k'q'J'\alpha'}}^{(h)} = \delta_{kk'} \sum_{q''} \sum_{r,s}^{(s)} A_{q''q}^{k*}(\alpha) \Gamma_{\alpha\alpha'}^{(k)} \quad (r) A_{q''q}^k(\alpha') e^{i(r-s)\omega t} \quad (\text{App.IV,43})$$

Les coefficients de couplage $\mathcal{R}_{\substack{kqJ\alpha \\ k'q'J'\alpha'}}^{(h)}$ possèdent ainsi une partie statique (r=s) et une partie modulée aux différentes fréquences harmoniques de ω . Les composantes tensorielles réduites $\langle\langle \overset{JJ}{\alpha\alpha'} \mathcal{Z}_q^k \rangle\rangle$ et $\langle\langle \overset{J'J'}{\alpha'\alpha'} \mathcal{Z}_q^k \rangle\rangle$ couplées entre elles par ces coefficients ont des fréquences d'évolution propres $\bar{\omega}_{\alpha\alpha'}$ et $\bar{\omega}_{\alpha'\alpha'}$, qui, compte tenu de la condition (App.IV,41), sont très petites devant ω . On peut donc, par approximation séculaire, négliger la partie oscillante des coefficients de couplage et écrire :

$$\mathcal{R}_{\substack{kqJ\alpha \\ k'q'J'\alpha'}} \sim \delta_{kk'} \sum_{q''} \sum_r^{(r)} A_{q''q}^{k*}(\alpha) \Gamma_{\alpha\alpha'}^{(k)} \quad (r) A_{q''q}^k(\alpha') \quad (\text{App.IV,44})$$

Dans le cas d'un champ de radiofréquence polarisé linéairement le long de Oz, cette équation s'écrit, d'après (III,B,37) :

$$\mathcal{R}_{\substack{kqJ\alpha \\ k'q'J'\alpha'}}^{(h)} = \Gamma_{\alpha\alpha'}^{(k)} \delta_{kk'} \delta_{qq'} \sum_r J_r \left[-qg_\alpha \frac{\mu_B H_1}{\omega} \right] J_r \left[-qg_{\alpha'} \frac{\mu_B H_1}{\omega} \right]$$

Cette expression se transforme simplement grâce à la règle de somme des fonctions de Bessel :

$$\begin{aligned} \sum_r J_r \left[-qg_\alpha \frac{\mu_B H_1}{\omega} \right] J_r \left[-qg_{\alpha'} \frac{\mu_B H_1}{\omega} \right] &= \sum_r J_{-r} \left[qg_\alpha \frac{\mu_B H_1}{\omega} \right] J_r \left[-qg_{\alpha'} \frac{\mu_B H_1}{\omega} \right] \\ &= J_0 \left[q X_{\alpha\alpha'} \right] \end{aligned}$$

avec $X_{\alpha\alpha'} = (g_\alpha - g_{\alpha'}) \frac{\mu_B H_1}{\omega}$.

On obtient finalement :

$$\mathcal{R}_{\substack{kqJ\alpha \\ k'q'J'\alpha'}} = \delta_{kk'} \delta_{qq'} \Gamma_{\alpha\alpha'}^{(k)} J_0 \left[q X_{\alpha\alpha'} \right] \quad (\text{App.IV,46})$$

De même, pour un champ de radiofréquence tournant autour de Oz (App.IV,44) devient, d'après (III,B,38) :

$$\mathcal{R}_{\substack{kqJ\alpha \\ k'q'J'\alpha'}}^{(h)} = \delta_{kk'} \delta_{qq'} \Gamma_{\alpha\alpha'}^{(k)} \sum_r R_{q+r,q}^{(k)}(\theta_\alpha) R_{q+r,q}^{(k)}(\theta_{\alpha'}) \quad (\text{App. IV, 47})$$

$$\text{avec } \text{tg } \theta_\alpha = - \frac{g_\alpha \mu_B H_1}{\omega_0 - \omega}$$

$$\text{tg } \theta_{\alpha'} = - \frac{g_{\alpha'} \mu_B H_1}{\omega_0 - \omega}$$

$$(-\pi < \theta_\alpha \leq 0 ; \quad -\pi \leq \theta_{\alpha'} < 0)$$

Enfin, en remarquant que l'on a $R_{q+r,q}^{(k)}(\theta_{\alpha'}) = R_{q,q+r}^{(k)}(-\theta_{\alpha'})$, on peut effectuer aisément la sommation sur r :

$$\sum_r R_{q+r,q}^{(k)}(\theta_\alpha) R_{q,q+r}^{(k)}(-\theta_{\alpha'}) = R_{qq}^{(k)}(\theta_\alpha - \theta_{\alpha'})$$

et mettre (App. IV, 47) sous la forme simple :

$$\mathcal{R}_{\substack{kqJ\alpha \\ k'q'J'\alpha'}}^{(k)} = \delta_{kk'} \delta_{qq'} \Gamma_{\alpha\alpha'}^{(k)} R_{qq}^{(k)}(\theta_\alpha - \theta_{\alpha'}) \quad (\text{App. IV, 48})$$

Les équations (App. IV, 46) et (App. IV, 48) sont appliquées au chapitre V à l'étude du transfert de cohérence par collisions d'échange de spin entre niveaux atomiques habillés. La signification physique de ces équations est alors discutée en détail

A P P E N D I C E V

RAPPEL SUR LES COLLISIONS D'ÉCHANGE DE SPIN ENTRE ATOMES ALCALINS

Le but de cet appendice est de rappeler un certain nombre de résultats concernant les collisions d'échange entre atomes alcalins différents ou identiques; le lecteur pourra en trouver une étude approfondie dans la référence (6¹).

1) Collisions d'échange entre atomes alcalins différents

Appelons $\langle F_1 \vec{S} \rangle$, $\langle F'_1 \vec{S} \rangle$ et $\langle F_2 \vec{S} \rangle$, $\langle F'_2 \vec{S} \rangle$ les projections des spins électroniques dans les deux niveaux hyperfins F_1 et F'_1 de l'alcalin (1), F_2 et F'_2 de l'alcalin (2) (notations du § V-B-3).

Sous l'effet des collisions d'échange de (1) avec (2), on peut montrer que l'évolution de l'alcalin (1) s'effectue suivant les équations :

$$\begin{cases} \frac{d^{1 \rightarrow 2}}{dt} \langle F_1 \vec{S} \rangle = -\frac{\lambda_1}{T_{12}} \langle F_1 \vec{S} \rangle + \frac{\lambda'_1}{T_{12}} \langle F'_1 \vec{S} \rangle + f(\rho_1) \left[\langle F_2 \vec{S} \rangle + \langle F'_2 \vec{S} \rangle \right] \\ \frac{d^{1 \rightarrow 2}}{dt} \langle F'_1 \vec{S} \rangle = -\frac{\mu_1}{T_{12}} \langle F_1 \vec{S} \rangle - \frac{\mu'_1}{T_{12}} \langle F'_1 \vec{S} \rangle + f'(\rho_1) \left[\langle F_2 \vec{S} \rangle + \langle F'_2 \vec{S} \rangle \right] \end{cases} \quad (\text{App. V,1})$$

Dans (App.V,1), T_{12} représente le temps d'échange séparant en moyenne deux collisions consécutives d'un atome (1) donné sur un atome (2) quelconque, $\lambda_1, \lambda'_1, \mu_1, \mu'_1$ sont des constantes dépendant du spin nucléaire I_1 de l'alcalin, données par les relations :

$$\begin{cases} \lambda_1 = \frac{2F_1^2 - F_1 + 1}{4F_1^2} & ; & \lambda'_1 = \frac{2F_1^2 + 3F_1 + 1}{4F_1^2} \\ \mu_1 = \frac{2F_1^2 - 3F_1 + 1}{4F_1^2} & ; & \mu'_1 = \frac{2F_1^2 + F_1 + 1}{4F_1^2} \end{cases} \quad (\text{App. V,2})$$

$(F_1 = I_1 + \frac{1}{2})$

enfin $f(\rho_1)$ et $f'(\rho_1)$ sont des coefficients de couplage entre les orientations des alcalins (1) et (2) dont la valeur dépend de la matrice densité ρ_1 représentant l'état de l'alcalin (1). La présence de ces fonctions de ρ_1 dans (App.V,1) fait que le système d'équations décrivant l'échange de spin n'est pas linéaire. Cependant, si l'on suppose que l'orientation initiale du système est faible, il est possible de linéariser les

équations en remplaçant dans $f(\rho_1)$ et $f'(\rho_1)$ ρ_1 par la matrice unité normalisée $\frac{J_1}{4I_1}$.
On peut montrer que l'on a alors :

$$f(\rho_1) = \frac{\lambda'_1}{3T_{12}} \quad \text{et} \quad f'(\rho_1) = \frac{\mu_1}{3T_{12}} \quad (\text{App.V,3})$$

Les équations (App.V,1) dans lesquelles on a effectué la substitution (App.V,3) deviennent linéaires :

$$\begin{cases} \frac{d^{1+2}}{dt} \langle F_1 \vec{S} \rangle = -\frac{\lambda_1}{T_{12}} \langle F_1 \vec{S} \rangle - \frac{\lambda'_1}{T_{12}} \langle F'_1 \vec{S} \rangle + \frac{\lambda'_1}{3T_{12}} \left[\langle F_2 \vec{S} \rangle + \langle F'_2 \vec{S} \rangle \right] \\ \frac{d^{1+2}}{dt} \langle F'_1 \vec{S} \rangle = -\frac{\mu_1}{T_{12}} \langle F_1 \vec{S} \rangle - \frac{\mu'_1}{T_{12}} \langle F'_1 \vec{S} \rangle + \frac{\mu_1}{3T_{12}} \left[\langle F_2 \vec{S} \rangle + \langle F'_2 \vec{S} \rangle \right] \end{cases}$$

(App.V,4)

Ce sont ces équations que nous utilisons dans le présent travail. Elles montrent clairement que les collisions d'échange (1) \rightarrow (2), non seulement couplent les orientations des deux alcalins, mais relient également entre elles les orientations des deux niveaux hyperfins de chaque atome.

On voit également sur (App.V,4) que l'orientation de l'alcalin (2) se transfère de préférence vers le niveau hyperfin supérieur de l'alcalin (1); le rapport entre les orientations transférées dans le niveau F_1 et le niveau F'_1 , égal à λ'_1/μ_1 , est en effet toujours plus grand que l'unité (voir (App.V,2)). Dans le cas où l'alcalin (1) est constitué par du ^{87}Rb ($I_1 = 3/2$), on a :

$$\lambda'_1 = \frac{15}{16} \quad \text{et} \quad \mu_1 = \frac{3}{16}$$

L'orientation du niveau hyperfin supérieur du ^{87}Rb se trouve donc couplée cinq fois plus efficacement que celle du niveau hyperfin inférieur à l'orientation de l'alcalin (2).

2) Collisions d'échange entre atomes alcalins identiques

L'évolution de l'alcalin (1) sous l'effet des collisions (1) - (1) entre atomes de même espèce est décrite par une équation se déduisant simplement de (App.V,4) en y remplaçant formellement l'indice (2) par l'indice (1).

On trouve :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{d^{1 \rightarrow 1}}{dt} \langle F_1 \vec{S} \rangle = -\frac{v_1}{T_{11}} \langle F_1 \vec{S} \rangle - \frac{v'_1}{T_{11}} \langle F'_1 \vec{S} \rangle \\ \frac{d^{1 \rightarrow 1}}{dt} \langle F'_1 \vec{S} \rangle = -\frac{v_1}{T_{11}} \langle F_1 \vec{S} \rangle - \frac{v'_1}{T_{11}} \langle F'_1 \vec{S} \rangle \end{array} \right. \quad (\text{App.V,5})$$

en appelant T_{11} le temps de collision (1) - (1) et en posant :

$$\left\{ \begin{array}{l} v_1 = \lambda_1 - \frac{\lambda'_1}{3} = \frac{2\mu_1}{3} = \frac{2F_1^2 - 3F_1 + 1}{6F_1^2} \\ v'_1 = \frac{2\lambda'_1}{3} = \mu'_1 - \frac{\mu_1}{3} = \frac{2F_1^2 + 3F_1 + 1}{6F_1^2} \end{array} \right. \quad (\text{App.V,6})$$

Ainsi, il ressort de (App.V,5) que sous l'effet des seules collisions (1) - (1), les orientations des deux niveaux hyperfins évoluent de façon identique, la différence de ces orientations étant une constante du mouvement. Nous donnons au chapitre V (§ V-C-2) une interprétation physique de ce résultat.

3) Evolution globale des orientations atomiques sous l'effet des différents processus de collision d'échange

L'évolution globale de l'orientation de l'alcalin (1) sous l'effet des collisions d'échange s'obtiendra en ajoutant les équations (App.V,4) et (App.V,5) :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{d^{coll}}{dt} \langle F_1 \vec{S} \rangle = -\left(\frac{\lambda_1}{T_{12}} + \frac{v_1}{T_{11}}\right) \langle F_1 \vec{S} \rangle - \left(\frac{\lambda'_1}{T_{12}} + \frac{v'_1}{T_{11}}\right) \langle F'_1 \vec{S} \rangle + \frac{\lambda'_1}{3T_{12}} \left[\langle F_2 \vec{S} \rangle + \langle F'_2 \vec{S} \rangle \right] \\ \frac{d^{coll}}{dt} \langle F'_1 \vec{S} \rangle = -\left(\frac{\mu_1}{T_{12}} + \frac{v_1}{T_{11}}\right) \langle F_1 \vec{S} \rangle - \left(\frac{\mu'_1}{T_{12}} + \frac{v'_1}{T_{11}}\right) \langle F'_1 \vec{S} \rangle + \frac{\mu_1}{3T_{12}} \left[\langle F_2 \vec{S} \rangle + \langle F'_2 \vec{S} \rangle \right] \end{array} \right.$$

(App.V,7)

De même, l'évolution de l'alcalin (2) s'obtiendra en échangeant les indices 1 et 2 dans les équations précédentes : on remplacera simplement les temps d'échange T_{12} et T_{11} par les temps T_{21} et T_{22} ; les quantités $\lambda_1, \lambda'_1, \mu_1, \mu'_1, v_1, v'_1$ seront remplacées par des coefficients $\lambda_2, \lambda'_2, \mu_2, \mu'_2, v_2, v'_2$ relatifs à l'alcalin (2) et donnés par des relations analogues à (App.V,2) et (App.V,6), obtenues en remplaçant dans ces équations

$$F_1 = I_1 + \frac{1}{2} \quad \text{par} \quad F_2 = I_2 + \frac{1}{2} .$$

Finalement, en adoptant les notations du § V-B-3

$$\left\{ \begin{array}{l} \langle F_1 \vec{S} \rangle = \langle (\alpha_1) \vec{S} \rangle , \quad \langle F'_1 \vec{S} \rangle = \langle (\alpha_3) \vec{S} \rangle \\ \langle F_2 \vec{S} \rangle = \langle (\alpha_2) \vec{S} \rangle , \quad \langle F'_2 \vec{S} \rangle = \langle (\alpha_4) \vec{S} \rangle \end{array} \right.$$

l'évolution des orientations sur les deux alcalins sera bien donnée par le système de quatre équations différentielles linéaires couplées (V,B,32) :

$$\frac{d}{dt} \langle (\alpha_i) \vec{S} \rangle = \sum_j \Gamma_{\alpha_i \alpha_j} \langle (\alpha_j) \vec{S} \rangle$$

Compte tenu de (App.V,7) et des équations analogues décrivant l'évolution de l'alcalin (2), les quantités $\Gamma_{\alpha_i \alpha_j}$ sont données de façon générale par les relations :

$$\left. \begin{array}{ll} \Gamma_{\alpha_1 \alpha_1} = -\frac{\lambda_1}{T_{12}} - \frac{v_1}{T_{11}} ; & \Gamma_{\alpha_2 \alpha_1} = \frac{\lambda'_2}{3T_{21}} \\ \Gamma_{\alpha_1 \alpha_2} = \frac{\lambda'_1}{3T_{12}} ; & \Gamma_{\alpha_2 \alpha_2} = -\frac{\lambda_2}{T_{21}} - \frac{v_2}{T_{22}} \\ \Gamma_{\alpha_1 \alpha_3} = -\frac{\lambda'_1}{T_{12}} - \frac{v'_1}{T_{11}} ; & \Gamma_{\alpha_2 \alpha_3} = \frac{\lambda'_2}{3T_{21}} \\ \Gamma_{\alpha_1 \alpha_4} = \frac{\lambda'_1}{3T_{12}} ; & \Gamma_{\alpha_2 \alpha_4} = -\frac{\lambda'_2}{T_{21}} - \frac{v'_2}{T_{22}} \\ \Gamma_{\alpha_3 \alpha_1} = -\frac{\mu_1}{T_{12}} - \frac{v_1}{T_{11}} ; & \Gamma_{\alpha_4 \alpha_1} = \frac{\mu_2}{3T_{21}} \\ \Gamma_{\alpha_3 \alpha_2} = \frac{\mu_1}{3T_{12}} ; & \Gamma_{\alpha_4 \alpha_2} = -\frac{\mu_2}{T_{21}} - \frac{v_2}{T_{22}} \\ \Gamma_{\alpha_3 \alpha_3} = -\frac{\mu'_1}{T_{12}} - \frac{v'_1}{T_{11}} ; & \Gamma_{\alpha_4 \alpha_3} = \frac{\mu_2}{3T_{21}} \\ \Gamma_{\alpha_3 \alpha_4} = \frac{\mu_1}{3T_{12}} ; & \Gamma_{\alpha_4 \alpha_4} = -\frac{\mu'_2}{T_{21}} - \frac{v'_2}{T_{22}} \end{array} \right\} \quad (\text{App.V,8})$$

Dans le cas particulier où l'un des deux alcalins est beaucoup plus abondant que l'autre, certains des termes des expressions précédentes peuvent être négligés. Par exemple, si $N_2 \gg N_1$, on pourra négliger $1/T_{11}$ devant $1/T_{12}$ et $1/T_{21}$ devant $1/T_{22}$: l'alcalin (1) évoluera principalement sous l'effet des collisions d'échange avec

l'alcalin (2) (collisions entre atomes différents) et l'alcalin (2) sera surtout soumis aux collisions d'échange (2) - (2) entre atomes identiques. On pourra en particulier négliger les coefficients de couplage $\Gamma_{\alpha_2\alpha_1}$, $\Gamma_{\alpha_2\alpha_3}$, $\Gamma_{\alpha_4\alpha_1}$ et $\Gamma_{\alpha_4\alpha_3}$ décrivant l'effet sur l'alcalin (2) du couplage avec l'alcalin (1).

4) Orientations stationnaires dans les deux niveaux hyperfins d'un atome alcalin soumis au pompage optique et aux collisions d'échange

Supposons qu'une vapeur alcaline (1) soit soumise à un pompage optique longitudinal (temps de pompage T_p) créant de l'orientation dans les deux niveaux hyperfins et que les collisions d'échange de spin entre atomes de même espèce soient le facteur prépondérant de relaxation atomique.

A la limite des faibles pompes ($T_{11} < T_p$), on peut considérer que l'orientation cédée aux atomes par le faisceau de pompage se met très rapidement en équilibre entre les deux niveaux hyperfins sous l'effet des collisions d'échange. L'équation (App.V,5) permet alors d'écrire à chaque instant :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{d^{1+1}}{dt} \langle F_1 S_z \rangle = -\frac{\nu_1}{T_{11}} \langle F_1 S_z \rangle - \frac{\nu'_1}{T_{11}} \langle F'_1 S_z \rangle = 0 \\ \frac{d^{1+1}}{dt} \langle F'_1 S_z \rangle = -\frac{\nu_1}{T_{11}} \langle F_1 S_z \rangle - \frac{\nu'_1}{T_{11}} \langle F'_1 S_z \rangle = 0 \end{array} \right.$$

et on en déduit que les orientations à l'équilibre dans la vapeur atomique obéissent à la condition :

$$\nu_1 \langle F_1 S_z \rangle + \nu'_1 \langle F'_1 S_z \rangle = 0 \quad (\text{App.V,9})$$

Dans le cas du ^{133}Cs , on a $I = 7/2$, d'où, d'après (App.V,2) et (App.V,6) :

$$\nu_1 = \frac{15}{32} \quad \text{et} \quad \nu'_1 = \frac{7}{32}$$

soit encore

$$\langle F_1 S_z \rangle = -\frac{15}{7} \langle F'_1 S_z \rangle \quad (\text{App.V,10})$$

Dans le cas de ^{87}Rb , on trouve de même :

$$\nu_1 = \frac{5}{8} \quad ; \quad \nu'_1 = \frac{1}{8}$$

d'où :

$$\langle F_1 S_z \rangle = -5 \langle F'_1 S_z \rangle \quad (\text{App.V,11})$$

A P P E N D I C E VI

AMPLITUDE DE PROBABILITE DES TRANSITIONS HYPERFINES DU
87Rb HABILÉ PAR UN CHAMP DE RADIOFREQUENCE LINEAIRE

Nous donnons dans cet appendice la valeur des amplitudes de transition $t_{m',m}^{(r)}(\psi, \vec{e})$ dans les quatre cas de polarisation $(\pi, \pi^{(S)})$, $(\pi, \sigma^{(S)})$, $(\sigma, \sigma^{(S)})$ et $(\sigma, \pi^{(S)})$ telles qu'on peut les calculer à partir des formules (VI,B,8) et (VI,B,10) et des éléments de matrice de l'opérateur \vec{S} indiqués sur les figures 31-a et b. On a utilisé dans ces calculs les relations classiques satisfaites par les fonctions de Bessel :

$$J_r\left(\frac{\omega_1}{\omega}\right) = (-1)^r J_{-r}\left(\frac{\omega_1}{\omega}\right) = (-1)^r J_r\left(-\frac{\omega_1}{\omega}\right)$$

qui permettent de simplifier un certain nombre d'expressions

TABLEAU N° 1 : $\frac{1}{2h_1\mu_B} t_{m',m}^{(r)}(\pi, \pi^{(S)})$

$m \backslash m'$	1	0	-1
2	0	0	0
1	$-\frac{\sqrt{3}}{4} J_r\left(2\frac{\omega_1}{\omega}\right)$	0	0
0	0	$-\frac{1}{2} \delta_{r0}$	0
-1	0	0	$-\frac{\sqrt{3}}{4} J_r\left(-2\frac{\omega_1}{\omega}\right)$
-2	0	0	0

TABLEAU N°2: $-\frac{1}{2h_1\mu_B} \overline{t_{m'm}^{(r)}} (\pi, \sigma^{(S)})$

m \ m'	1	0	-1
2	$\frac{\sqrt{3}}{4} J_r \left(3 \frac{\omega_1}{\omega} \right)$	0	0
1	0	$\frac{\sqrt{3}}{4\sqrt{2}} J_r \left(\frac{\omega_1}{\omega} \right)$	0
0	$-\frac{1}{4\sqrt{2}} J_r \left(\frac{\omega_1}{\omega} \right)$	0	$\frac{1}{4\sqrt{2}} J_r \left(-\frac{\omega_1}{\omega} \right)$
-1	0	$-\frac{\sqrt{3}}{4\sqrt{2}} J_r \left(-\frac{\omega_1}{\omega} \right)$	0
-2	0	0	$-\frac{\sqrt{3}}{4} J_r \left(-\frac{3\omega_1}{\omega} \right)$

Dans les tableaux 3 et 4, le symbole $\delta_{r,p}$ est égal à 1 ou zéro suivant que r est pair ou impair; le symbole $\delta_{r,i}$ est égal à 1 si r est impair, à zéro si r est pair. Quant à δ_{r0} , c'est le symbole de Kronecker égal à l'unité si r vaut zéro et nul si $r \neq 0$.

TABLEAU N°3: $-\frac{1}{2h_1\mu_B} \overline{t_{m'm}^{(r)}} (\sigma, \sigma^{(S)})$

m \ m'	1	0	-1
2	$+\frac{\sqrt{3}}{8} \left[J_r \left(\frac{2\omega_1}{\omega} \right) + \delta_{r0} \right] \delta_{rp}$	$\frac{\sqrt{3}}{4\sqrt{2}} J_r \left(\frac{2\omega_1}{\omega} \right) \delta_{ri}$	$+\frac{\sqrt{3}}{8} \left[J_r \left(\frac{2\omega_1}{\omega} \right) - \delta_{r0} \right] \delta_{rp}$
1	$\frac{\sqrt{3}}{8} J_r \left(\frac{2\omega_1}{\omega} \right) \delta_{ri}$	$+\frac{\sqrt{3}}{4\sqrt{2}} J_r \left(\frac{2\omega_1}{\omega} \right) \delta_{rp}$	$\frac{\sqrt{3}}{8} J_r \left(\frac{2\omega_1}{\omega} \right) \delta_{ri}$
0	$-\frac{1}{4\sqrt{2}} \delta_{r0}$	0	$+\frac{1}{4\sqrt{2}} \delta_{r0}$
-1	$\frac{\sqrt{3}}{8} J_r \left(\frac{2\omega_1}{\omega} \right) \delta_{ri}$	$-\frac{\sqrt{3}}{4\sqrt{2}} J_r \left(\frac{2\omega_1}{\omega} \right) \delta_{rp}$	$\frac{\sqrt{3}}{8} J_r \left(\frac{2\omega_1}{\omega} \right) \delta_{ri}$
-2	$\frac{\sqrt{3}}{8} \left[J_r \left(\frac{2\omega_1}{\omega} \right) - \delta_{r0} \right] \delta_{rp}$	$-\frac{\sqrt{3}}{4\sqrt{2}} J_r \left(\frac{2\omega_1}{\omega} \right) \delta_{ri}$	$-\frac{\sqrt{3}}{8} \left[J_r \left(\frac{2\omega_1}{\omega} \right) + \delta_{r0} \right] \delta_{rp}$

TABLEAU N°4: $-\frac{1}{2h_i\mu_B} \overline{t_{m'm}^{(r)}} (\sigma, \pi^{(S)})$

$m \backslash m'$	1	0	-1
2	$\frac{\sqrt{3}}{16} \left[J_r\left(\frac{3\omega_1}{\omega}\right) + J_r\left(\frac{\omega_1}{\omega}\right) \right] \delta_{ri}$	$\frac{\sqrt{3}}{8\sqrt{2}} \left[J_r\left(\frac{\omega_1}{\omega}\right) - J_r\left(\frac{3\omega_1}{\omega}\right) \right] \delta_{rp}$	$\frac{\sqrt{3}}{16} \left[J_r\left(\frac{3\omega_1}{\omega}\right) - 3J_r\left(\frac{\omega_1}{\omega}\right) \right] \delta_{ri}$
1	$-\frac{\sqrt{3}}{8} \left[J_r\left(\frac{3\omega_1}{\omega}\right) + J_r\left(\frac{\omega_1}{\omega}\right) \right] \delta_{rp}$	$\frac{\sqrt{3}}{4\sqrt{2}} J_r\left(\frac{3\omega_1}{\omega}\right) \delta_{ri}$	$\frac{\sqrt{3}}{8} \left[J_r\left(\frac{\omega_1}{\omega}\right) - J_r\left(\frac{3\omega_1}{\omega}\right) \right] \delta_{rp}$
0	$\frac{1}{8\sqrt{2}} \left[J_r\left(\frac{\omega_1}{\omega}\right) + 3J_r\left(\frac{3\omega_1}{\omega}\right) \right] \delta_{ri}$	$-\frac{1}{8} \left[J_r\left(\frac{\omega_1}{\omega}\right) + 3J_r\left(\frac{3\omega_1}{\omega}\right) \right] \delta_{rp}$	$\frac{1}{8\sqrt{2}} \left[J_r\left(\frac{\omega_1}{\omega}\right) + 3J_r\left(\frac{3\omega_1}{\omega}\right) \right] \delta_{ri}$
-1	$\frac{\sqrt{3}}{8} \left[J_r\left(\frac{\omega_1}{\omega}\right) - J_r\left(\frac{3\omega_1}{\omega}\right) \right] \delta_{rp}$	$\frac{\sqrt{3}}{4\sqrt{2}} J_r\left(\frac{3\omega_1}{\omega}\right) \delta_{ri}$	$-\frac{\sqrt{3}}{8} \left[J_r\left(\frac{3\omega_1}{\omega}\right) + J_r\left(\frac{\omega_1}{\omega}\right) \right] \delta_{rp}$
-2	$\frac{\sqrt{3}}{16} \left[J_r\left(\frac{3\omega_1}{\omega}\right) - 3J_r\left(\frac{\omega_1}{\omega}\right) \right] \delta_{ri}$	$\frac{\sqrt{3}}{8\sqrt{2}} \left[J_r\left(\frac{\omega_1}{\omega}\right) - J_r\left(\frac{3\omega_1}{\omega}\right) \right] \delta_{rp}$	$\frac{\sqrt{3}}{16} \left[J_r\left(\frac{3\omega_1}{\omega}\right) + J_r\left(\frac{\omega_1}{\omega}\right) \right] \delta_{ri}$

On retrouve, au simple examen de ces tableaux, les règles de sélection satisfaites par les transitions hyperfines de l'atome habillé qui correspondent à la conservation du moment cinétique global du système "atome habillé + champ sonde" (voir chapitre VI). Enfin, si l'on fait $r = 0$, les diverses fonctions de Bessel se réduisent toutes à zéro sauf J_0 qui est égale à 1. Il est facile de voir que les amplitudes de transition $r \neq 0$ sont toutes nulles et que les amplitudes $r = 0$ sont identiques à celles que l'on obtient pour l'atome libre (valeurs indiquées sur les figures 31-a et b).

REFERENCES

- (1) I.I. RABI, S. MILLMAN, P. KUSCH et J.R. ZACHARIAS - Phys. Rev. 55, 526 (1939)
- (2) ZAVOISKY - J. Phys. U.S.S.R. 9, 211 (1945)
D.M.S. BAGGULEY, B. BLEANEY, J.M.E. GRIFFITHS, R.P. PENROSE et B.I. PLUMPTON - Proc. Phys. Soc. 61, 542 (1948)
- (3) F. BLOCH - Phys. Rev. 70, 460 (1946)
E.M. PURCELL, H.C. TORREY, R.V. POUND - Phys. Rev. 69, 37 (1946)
- (4) J. BROSEL - Phys. Rev. 83, 210 (1951)
J. BROSEL et F. BITTER - Phys. Rev. 86, 308 (1952)
- (5) A. KASTLER - J. Phys. Rad. 11, 255 (1950)
- (6) J.P. BARRAT, J. BROSEL et A. KASTLER - C.R. Acad. Sci. 239, 1196 (1954)
A. KASTLER - J. Opt. Soc. Amer. 47, 460 (1957)
- (7) B. CAGNAC, J. BROSEL et A. KASTLER - C.R. Acad. Sci. 246, 1827 (1958)
- (8) J.C. PEBAY-PEYROULA, J. BROSEL et A. KASTLER - C.R. Acad. Sci. 244, 57 et 840 (1957)
- (9) L.W. ANDERSON, F.M. PIPKINS et J.C. BAIRD - Phys. Rev. Letters, 1, 229 (1958)
- (10) H.G. DEHMELT - Phys. Rev. 109, 381 (1958)
- (11) J. BROSEL, B. CAGNAC et A. KASTLER - J. Phys. Rad. 15, 6 (1954); C.R. Acad. Sci. (Fr.) 237, 984 (1953)
J. MARGERIE et J. BROSEL - C.R. Acad. Sci. (Fr.) 241, 373 (1955)
Voir également V. HUGHES et L. GRABNER - Phys. Rev. 79, 314 et 819 (1950)
- (12) J.M. WINTER - Thèse, Paris (1958); Ann. de Phys. 4, 745 (1959)
- (13) S.M. AUTLER et C.H. TOWNES - Phys. Rev. 100, 703 (1955)
- (14) J. BROSEL - Pompage Optique (Optique et Electronique Quantiques, Les Houches, 1964, Gordon and Breach)
- (15) E.B. ALEXANDROV, O.B. CONSTANTINOV, B.I. PERELI et B.A. KHODOVOY - J. Exp. Theoret. Phys. (U.S.S.R.) 45, 503 (1963)
- (16) J.N. DODD, G.W. SERIES - Proc. Roy. Soc. A 263, 353 (1961)
J.N. DODD, G.W. SERIES et M.J. TAYLOR - Proc. Roy. Soc. A 273, 41 (1963)
- (17) C.J. FAVRE et E. GENEUX - Phys. Letters, 8, n°3, 190 (1964)
- (18) N. POLONSKY et C. COHEN-TANNOUDJI - C.R. Acad. Sci. 260, 5231 et 261, 369 (1965)
- (19) C. COHEN-TANNOUDJI et S. HAROCHE - C.R. Acad. Sci. 261, 5400 (1965)
- (20) S. WILKING - Zeit. Phys. 173, 490 et 509 (1963)
R. WALLACE - Molecular Physics, 11, 5, 457 (1966)
- (21) C. COHEN-TANNOUDJI et S. HAROCHE - C.R. Acad. Sci. 264, 626 (1967)
- (22) S. HAROCHE - Thèse de 3e cycle, Paris (1967)
- (23) A. ABRAGAM - Les principes du magnétisme nucléaire, P.U.F., Paris (1961)

- [²⁴] J.H. SHIRLEY - Phys. Rev. 138 (4B) 979 (1965)
- [²⁵] M.H.L. PRYCE - Phys. Rev. 77, 136 (1950)
- [²⁶] T.G. ECK, L.L. FOLDY et H. WIEDER - Phys. Rev. Letters, 10, 239 (1963)
- [²⁷] F.D. COLEGROVE, P.A. FRANKEN, R.R. LEWIS et R.H. SANDS -
Phys. Rev. Letters, 3, 420 (1959)
- [²⁸] F. BLOCH et A. SIEGERT - Phys. Rev. 57, 522 (1940)
- [²⁹] C. COHEN-TANNOUJJI et S. HAROCHE - C.R. Acad. Sci. 262, 268 (1966)
- [³⁰] C. LANDRÉ, C. COHEN-TANNOUJJI, J. DUPONT-ROC et S. HAROCHE -
J. Phys. 31, 971 (1970).
- [³¹] S. HAROCHE, C. COHEN-TANNOUJJI, C. AUDOIN et J.P. SCHERMANN -
Phys. Rev. Lett. 24, 816 (1970)
- [³²] W.E. BELL et A.L. BLOOM - Phys. Rev. Lett. 6, 280 (1961)
- [³³] C. LANDRÉ, C. COHEN-TANNOUJJI, J. DUPONT-ROC et S. HAROCHE -
C.R. Acad. Sci. 270, 73 (1970)
- [³⁴] M. SCULLY et W.E. LAMB Jr. - Phys. Rev. 159, 208 (1967)
- [³⁵] R.J. GLAUBER - Phys. Rev. 131 N°6, 2766-2788 (1963)
R.J. GLAUBER - Quantum theory of radiation, (Optique et Electronique Quantiques,
Les Houches, 1964, Gordon and Breach)
- [³⁶] J. SCHWINGER - Phys. Rev. 76, 790 (1949)
H.M. FOLEY et P. KUSCH - Phys. Rev. 72, 1256 (1947)
- [³⁷] C. COHEN-TANNOUJJI et S. HAROCHE - J. Phys. 30, 125 (1969)
- [³⁸] C. COHEN-TANNOUJJI et S. HAROCHE - J. Phys. 30, 153 (1969)
- [³⁹] C. COHEN-TANNOUJJI - Cargèse Lectures in Physics, Gordon and Breach (1967)
- [⁴⁰] S. BASHKIN, W.S. BICKEL, D. FINK et R.K. WANGSNESS -
Phys. Rev. Letters, 15, 284 (1965)
- [⁴¹] J.C. LEHMANN - J. Phys. 25, 809 (1964); Thèse Paris (1967); Ann. de Phys.
2, 345 (1967)
- [⁴²] A. MESSIAH - Mécanique quantique, Tome II, Dunod (1964)
- [⁴³] J.P. BARRAT et J.M. WINTER - J. Phys. Rad. 17, 833 (1956)
- [⁴⁴] W. HANLE - Zeit. Physik, 30, 93 (1924)
- [⁴⁵] J.C. LEHMANN et C. COHEN-TANNOUJJI - C.R. Acad. Sci. 258, 4463 (1964)
- [⁴⁶] C. COHEN-TANNOUJJI - Thèse Paris (1962); Ann. Phys. 7, 423 et 469 (1962)
- [⁴⁷] N. POLONSKY et C. COHEN-TANNOUJJI - J. Phys. 26, 409 (1965)
N. POLONSKY - Thèse de 3e cycle, Paris (1966)
- [⁴⁸] C. LANDRÉ - Thèse de 3e cycle, Paris (1970)
- [⁴⁹] I.I. RABI - Phys. Rev. 51, 652 (1937)
- [⁵⁰] M. LE DOURNEUF, C. COHEN-TANNOUJJI, J. DUPONT-ROC et S. HAROCHE -
C.R. Acad. Sci. 272, 985 (1971)
- [⁵¹] P. KUSCH - Phys. Rev. 101, 627 (1956)

- [⁵²] M. LE DOURNEUF - Thèse de 3e cycle, Paris (1971), (à paraître)
- [⁵³] M. LE DOURNEUF, C. COHEN-TANNOUJJI, J. DUPONT-ROC et S. HAROCHE -
C.R. Acad. Sci. 272, 1048 (1971)
- [⁵⁴] S. HAROCHE - C.R. Acad. Sci. (à paraître)
- [⁵⁵] S. HAROCHE et C. COHEN-TANNOUJJI - Phys. Rev. Letters, 24, 974 (1970)
- [⁵⁶] M. LE DOURNEUF, C. COHEN-TANNOUJJI, J. DUPONT-ROC et S. HAROCHE -
C.R. Acad. Sci. 272, 1131 (1971)
- [⁵⁷] J. DUPONT-ROC, N. POLONSKY, C. COHEN-TANNOUJJI et A. KASTLER -
C.R. Acad. Sci. 264 B, 1811 (1967); Phys. Lett. 25A, 87 (1967)
C. COHEN-TANNOUJJI et J. DUPONT-ROC - Phys. Rev. (à paraître)
- [⁵⁸] W.E. LAMB, Jr. - Phys. Rev. 85, 259 (1952)
- [⁵⁹] R.K. WANGSNESS et F. BLOCH - Phys. Rev. 89, 728 (1953)
- [⁶⁰] P. FRANKEN, R. SANDS et J. HOBART - Phys. Rev. Letters, 1, 52, 118(E) (1958)
R. NOVICK et H.E. PETERS - Phys. Rev. Letters, 1, 54 (1958)
Voir aussi référence (¹⁰)
Pour une étude détaillée de la relaxation en présence de collisions d'échange
de spin, voir référence (⁶¹)
- [⁶¹] F. GROSSETETE - J. Phys. 25, 383 (1964) et Thèse, Paris (1967)
- [⁶²] E.B. ALEXANDROV - Opt. a. Spect. USA, 19, 252 (1965)
(voir également référence (³²))
- [⁶³] J. DUPONT-ROC - Thèse de 3e cycle, Paris (1968)
- [⁶⁴] F. BLOCH - Phys. Rev. 105, 1206 (1957)
- [⁶⁵] A. GOZZINI - C.R. XIIe Colloque Ampère, 92, Amsterdam (1964)
E. ARIMONDO - Nuovo Cimento, 52B, 379 (1967)
- [⁶⁶] E. MAJORANA - Nuovo Cimento, 9, 43 (1932)
- [⁶⁷] U. FANO - Rev. Mod. Phys. 29, 74 (1957)
A. BEN REUVEN - Phys. Rev. 141, 34 et 145, 7 (1966)
- [⁶⁸] R.H. YOUNG et W.J. DEAL - Phys. Rev. Vol. 1, n° 2, 479 (1970)
- [⁶⁹] F. BLOCH et I. RABI - Rev. Mod. Phys. 17, 237 (1945)
- [⁷⁰] J. SCHWINGER dans Quantum Theory of Angular Momentum, L.C. BIEDENHARN et
H. VAN DAM éditeurs, Acad. Press, New York (1965)
- [⁷¹] A. OMONT - J. Phys. 26, 26 (1965)
J.P. FAROUX - Thèse, Paris (1969)
- [⁷²] C. COHEN-TANNOUJJI et F. LALOË - J. Phys. 28, 722 (1967)
- [⁷³] F.D. COLEGROVE, L.D. SCHEARER et G.K. WALTERS - Phys. Rev. 132, 2561 (1963)
- [⁷⁴] A. OMONT et J. MEUNIER - Phys. Rev. 169, 92 (1968)
- [⁷⁵] J.P. FAROUX et J. BROSSEL - C.R. Acad. Sci. 262, 41 (1966)
- [⁷⁶] R.B. PARTRIDGE et G.W. SERIES - Proc. Phys. Soc. 88, 983 (1966)
G.W. SERIES - ibid. 90, 1179 (1967)
- [⁷⁷] M.A. BOUCHIAT - J. Phys. Rad. 24, 379 (1963) et Thèse, Paris (1965)
- [⁷⁸] Pour une étude générale des processus d'Optique Non Linéaire, on peut se
reporter à N. BLOEMBERGEN dans Proc. of Intern. School of Physics
"E. Fermi", Course XXXI (Acad. Press, New York, 1964), P. 247
Voir également les références (⁷⁹)(⁸⁰)(⁸¹)(⁸³)

- (⁷⁹) J.A. ARMSTRONG, N. BLOEMBERGEN, J. DUCUING et P.S. PERSHAN -
Phys. Rev. 127, 1918 (1962)
- (⁸⁰) W.J. JONES et B.P. STOICHEFF - Phys. Rev. Letters, 13, 657 (1964)
- (⁸¹) J.A. GIORDMAINE et R.C. MILLER - Phys. Rev. Letters, 14, 973 (1965)
- (⁸²) C. COHEN-TANNOUDJI et S. HAROCHE dans "Polarisation, Matière et Rayonnement",
Livre de Jubilé en l'honneur d'A. KASTLER, édité par la Société
Française de Physique, P.U.F. (1969)
- (⁸³) A. JAVAN - Proc. of Intern. School of Physics "E. Fermi", Course XXXI (Acad.
Press, New York, 1964), p. 284
- (⁸⁴) Pour les représentations diagrammatiques des amplitudes de transition, voir
par exemple G.C. WICK, Rev. Mod. Phys. 27, 339 (1955)
- (⁸⁵) I. SOLOMON - C.R. Acad. Sci. 248, 92 (1959)
- (⁸⁶) D.K. KLEPPNER, H.M. GOLDENBERG et N.F. RAMSEY - Phys. Rev. 126, 603 (1962)
- (⁸⁷) B. CAGNAC - Thèse, Paris (1961); Ann. Phys. 6, 467 (1961)
- (⁸⁸) H. KOPFERMANN et H. KRUGER - Zeit. Phys. 103, 485 (1936)
- (⁸⁹) F. LALOË, M. LEDUC et P. MINGUZZI - J. Phys. 30, 277 et 341 (1969)
- (⁹⁰) A. GOZZINI - C.R. Ac. Sc. 255, 1905 (1962)
- (⁹¹) J. MANUEL et C. COHEN-TANNOUDJI - C.R. Ac. Sc. 257, 413 (1963)
- (⁹²) W. HAPPER et B.S. MATHUR - Phys. Rev. Letters, 18, 577 (1967)
- (⁹³) J. DUPONT-ROC, S. HAROCHE et C. COHEN-TANNOUDJI - Phys. Lett. 28A, 638 (1969)
- (⁹⁴) C. COHEN-TANNOUDJI, J. DUPONT-ROC, S. HAROCHE et F. LALOË - Revue de Phys.
Appliquée, 5, 95 et 102 (1970)
- (⁹⁵) C. COHEN-TANNOUDJI, J. DUPONT-ROC, S. HAROCHE et F. LALOË - Phys. Rev. Letters,
22, n° 15, 758 (1969)
- (⁹⁶) C. LANDRÉ, C. COHEN-TANNOUDJI, J. DUPONT-ROC et S. HAROCHE - C.R. Ac. Sci.
270, 339 (1970)
- (⁹⁷) T.J. KILLIAN - Phys. Rev. 27, 578 (1926)
- (⁹⁸) P.L. BENDER, E.C. BEATY et A.R. CHI - Phys. Rev. Letters, 1, 311 (1958)
- (⁹⁹) J. DUPONT-ROC - J. Phys. 32, 135 (1971)
- (¹⁰⁰) J. DUPONT-ROC - Revue de Phys. Appliquée, 5, 853 (1970)
- (¹⁰¹) C. COHEN-TANNOUDJI - Compléments de Mécanique quantique (cours de 3e cycle
polycopié, Paris 1966)
- (¹⁰²) L. MOWER - Phys. Rev. 142, 4, 799 (1966)

