

SPECTROSCOPIE HERTZIENNE. — *Interprétation de diverses résonances magnétiques en termes de croisements et antic croisements de niveaux d'énergie du système global atome-photons de radiofréquence.* Note (*) de MM. CLAUDE COHEN-TANNOUJJI et SERGE HAROCHE, présentée par M. Alfred Kastler.

Nous nous proposons d'interpréter ici diverses résonances magnétiques, en particulier celles observées récemment lors d'une expérience de pompage optique transversal de ^{199}Hg (1) en termes de « croisements » ou « antic croisements » de niveaux d'énergie du système global atome-photons de radiofréquence. Commençons par rappeler quelques propriétés générales des croisements et antic croisements de niveaux d'énergie.

Soit un système quantique (S) possédant des niveaux discrets $|i\rangle$, d'énergie E_i , dépendant d'un champ magnétique H_0 . Plaçons-nous au voisinage du point I où deux niveaux $|a\rangle$ et $|b\rangle$ se croisent (traits pointillés des figures 1 α et 1 β). Appliquons à (S) une perturbation V non diagonale. Deux cas fondamentalement différents peuvent se présenter :

Figure 1 α : V ne connecte à aucun ordre les états $|a\rangle$ et $|b\rangle$: Les états perturbés $|\bar{a}\rangle$ et $|\bar{b}\rangle$ (en traits pleins), d'énergie $E_{\bar{a}}$ et $E_{\bar{b}}$, se croisent toujours (point K). Par suite du couplage avec les états $|i\rangle$ autres que $|a\rangle$ et $|b\rangle$, ils sont déplacés par rapport aux états non perturbés (en pointillés), ce qui a pour effet de décaler le point de croisement d'une quantité d_c du 2^e ordre en V. Notons enfin que $|\bar{a}\rangle$ (ou $|\bar{b}\rangle$) ne se réduit plus à $|a\rangle$ (ou $|b\rangle$) mais renferme une faible proportion des états $|i\rangle$ autres que $|a\rangle$ et $|b\rangle$.

Figure 1 β : V connecte à un ordre p déterminé (c'est-à-dire via p-1 états intermédiaires) les états $|a\rangle$ et $|b\rangle$. La théorie des perturbations permet alors de montrer que les niveaux ne se croisent plus; ils se repoussent et forment les deux branches d'une hyperbole (en traits pleins) dont les asymptotes (en traits tirés) sont décalées par rapport aux niveaux non perturbés (en pointillés) par suite du couplage avec les niveaux $|i\rangle$ autres que $|a\rangle$ et $|b\rangle$. On a un antic croisement dont le centre K est décalé par rapport à I d'une quantité d_a du 2^e ordre en V. En ce point, les deux états $|\bar{a}\rangle$ et $|\bar{b}\rangle$ sont à une distance minimale, A, d'ordre p en V (l'antic croisement sera dit d'ordre p) et peuvent s'écrire $\sqrt{2}|\bar{a}\rangle = |a\rangle + |b\rangle$; $\sqrt{2}|\bar{b}\rangle = |a\rangle - |b\rangle$. Loin de ce point, au contraire, $|\bar{a}\rangle$ (ou $|\bar{b}\rangle$) se réduit à $|a\rangle$ (ou $|b\rangle$) plus une faible proportion de tous les autres états. A l'inverse du cas précédent, les états propres subiront donc au niveau de l'antic croisement des modifications importantes.

L'existence de croisements ou d'antic croisements peut se manifester par des résonances. Étudions deux exemples.

Exemple 1. — On prépare, à l'instant $t = 0$, le système (S) possédant un *anticroisement* dans l'état propre *non perturbé* $|a\rangle$ et l'on cherche la probabilité $P_{a \rightarrow b}(t)$ de trouver (S) à l'instant t dans l'état propre *non perturbé* $|b\rangle$. Loin de l'anticroisement $|a\rangle \approx |\bar{a}\rangle$. $|a\rangle$ est alors pratiquement un état stationnaire et $P_{a \rightarrow b}(t)$ est très faible. Au point d'anticroisement, au contraire, le système créé dans l'état $|a\rangle$, mélange des états propres $|\bar{a}\rangle$ et $|\bar{b}\rangle$ d'énergie différentes, subit une évolution propre *importante* et $P_{a \rightarrow b}(t)$ prend une valeur notable. Moyennons $P_{a \rightarrow b}(t)$ par rapport à t en supposant que (S) a une durée de vie finie $\tau = \Gamma^{-1}$; on montre alors aisément que toute grandeur *longitudinale* (liée aux populations des niveaux non perturbés $|a\rangle$ et $|b\rangle$) subit au point d'anticroisement une résonance dont la largeur, $\sqrt{\Gamma^2 + A^2}$, dépend non seulement de la largeur naturelle Γ , mais aussi, par A , de l'intensité de V .

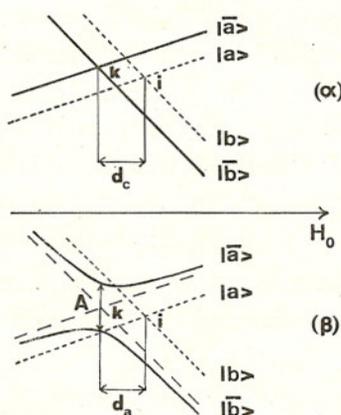


Fig. 1.

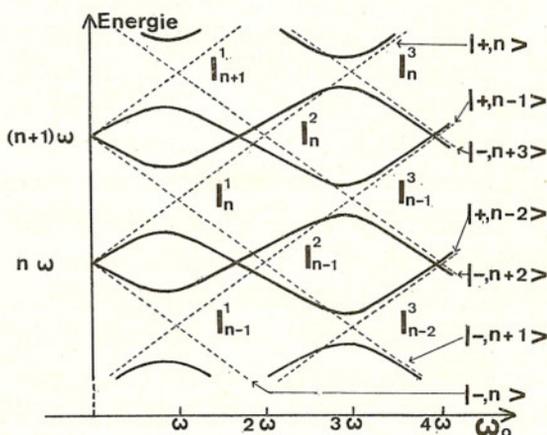


Fig. 2.

Exemple 2. — On excite un système (S), possédant un *croisement*, dans une superposition linéaire $\lambda|\bar{a}\rangle + \mu|\bar{b}\rangle$ des deux niveaux qui se croisent. Toute grandeur transversale G_T (dépendant de la *cohérence hertzienne* entre $|\bar{a}\rangle$ et $|\bar{b}\rangle$) évolue à la fréquence angulaire $E_{\bar{a}} - E_{\bar{b}}$ ($\hbar = 1$). Au point de croisement, elle devient donc statique. Si (S) est excité de façon continue et possède une durée de vie finie $\tau = \Gamma^{-1}$, on montre aisément que G_T subit au point de croisement une résonance dont la largeur, Γ , ne dépend plus, comme précédemment, de V . Le cas où (S) est un état atomique, excité ou fondamental, a fait l'objet de nombreux travaux. Des résonances correspondant aux exemples 1 et 2 précédents ont été observées en champ nul [(²), (³)] ou non nul [(⁴) à (⁷)].

Appliquons maintenant les résultats précédents au cas où (S) est constitué par l'ensemble d'un état atomique de spin $J = 1/2$ et d'un champ de radiofréquence linéaire de fréquence $\omega/2\pi$, parallèle à Ox et perpendiculaire

au champ statique H_0 dirigé suivant Oz. Le hamiltonien global s'écrit

$$\mathcal{H} = \omega_0 J_z + \omega a^+ a + \lambda J_x (a + a^+),$$

$\omega_0 = \gamma H_0$ (γ , rapport gyromagnétique); a et a^+ , opérateurs d'annihilation et de création de photons de radiofréquence; λ , couplage entre le champ de radiofréquence et l'atome. Les états du hamiltonien non perturbé $\mathcal{H}_0 = \omega_0 J_z + \omega a^+ a$, représentés en pointillés sur la figure 2, sont les états $|\pm, n\rangle$, d'énergie $\pm(\omega_0/2) + n\omega$, représentant le spin dans l'état $J_z = \pm 1/2$ en présence de n photons de radiofréquence. Il y a une infinité de croisements, I_n'' , alignés verticalement pour chaque valeur du champ H_0 , telle que $\omega_0 = p\omega$ (p , entier). Les seuls éléments de matrice non nuls de la perturbation $V = \lambda J_x (a + a^+)$ sont du type $\langle +, n | V | -, n \pm 1 \rangle$. Tout état $|+, n\rangle$ n'est donc connecté par V qu'aux états $|-, n + (2p + 1)\rangle$ (à l'ordre $2p + 1$) et $|+, n + 2p\rangle$ (à l'ordre $2p$). Il résulte de la première partie de cette étude et d'un simple examen de la figure 2 que les croisements pairs ($\omega_0 = 2p\omega$) vont rester des croisements, alors que les croisements impairs ($\omega_0 = (2p + 1)\omega$) vont devenir des anticroisements d'ordre $2p + 1$. Les niveaux d'énergie de (S) sont représentés en traits pleins sur la figure 2. Des diagrammes analogues ont déjà été obtenus par une méthode différente (⁸).

Supposons que l'état atomique étudié soit un état *excité* préparé par excitation optique à partir d'un autre état atomique non couplé au champ de radiofréquence, ce dernier contenant n photons (si l'état étudié est l'état *fondamental*, il faut raisonner sur les trous créés dans cet état par l'excitation optique). Étudions les deux cas suivants.

Cas 1 : Le système (S) est préparé dans l'état non perturbé $|-, n\rangle$ de \mathcal{H}_0 . Ceci est possible si l'excitation optique est *longitudinale* (polarisation σ par exemple) et d'une largeur spectrale Δ suffisamment grande (⁹). (Notons que l'opérateur dipolaire électrique, qui régit la transition optique, n'agit pas sur la radiofréquence et ne peut changer le nombre n de photons). Au voisinage de l'anticroisement, $I_{n-(2p+1)}^{2p+1}$, nous sommes ramenés au cas étudié plus haut (exemple 1) en posant $|a\rangle = |-, n\rangle$; $|b\rangle = |+, n - (2p + 1)\rangle$. Il y aura donc en ce point transition de $|a\rangle$ à $|b\rangle$, correspondant au renversement du spin atomique et à l'absorption *réelle* de $2p + 1$ photons de radiofréquence. Nous retrouvons les propriétés essentielles des transitions à plusieurs quanta (¹⁰) (spectre impair, déplacement et élargissement radiatifs, etc.).

Cas 2 : Si maintenant l'excitation optique est *transversale*, (S) est préparé dans une superposition $\lambda|+, n\rangle + \mu|-, n\rangle$. Au voisinage d'un point de *croisement* I_n^{2p} il est impossible d'exciter une superposition des deux états non perturbés $|+, n\rangle$ et $|-, n + 2p\rangle$ (avec $p \neq 0$) : ils ne correspondent pas en effet au même nombre de photons. Par contre, l'état perturbé $\overline{|-, n + 2p\rangle}$ renferme une faible proportion de l'état

$|-, n\rangle$ (d'ordre $2p$ en V); c'est cette « contamination » de l'état $|-, n+2p\rangle$, interprétable en termes d'absorption virtuelle de $2p$ photons de radiofréquence qui rend possible l'excitation d'une superposition $\lambda'|+, n\rangle + \mu'|-, n+2p\rangle$ des deux niveaux perturbés qui se croisent. On est ramené alors à l'exemple 2 étudié plus haut : aux points de croisement I_n^{2p} , nous avons des résonances des grandeurs transversales du système (S). Ce sont elles que nous avons observées (1). Nous retrouvons ici leurs propriétés essentielles (spectre pair, déplacement radiatif, absence d'élargissement radiatif, etc.). Un traitement plus complet, utilisant en particulier comme état initial du champ de radiofréquence un état cohérent de Glauber (11) au lieu d'un état $|n\rangle$ permet de rendre compte des diverses modulations et intensités des signaux optiques. Il sera publié ultérieurement. [Nous avons obtenu les mêmes résultats en traitant classiquement la radiofréquence et en résolvant par itération (12) les équations d'évolution de la matrice densité du système atomique.] Remarquons enfin que le traitement présenté ici permet de donner une interprétation énergétique des diagrammes de fréquence de Pryce (13) et Series (14). A la différence de leur, notre traitement est cependant entièrement quantique et ne se limite pas au cas du champ tournant, ce qui permet de prévoir une infinité de résonances.

(*) Séance du 20 décembre 1965.

(1) C. COHEN-TANNOUJJI et S. HAROCHE, *Comptes rendus*, 261, 1965, p. 5400.

(2) W. HANLE, *Z. Phys.*, 30, 1924, p. 93.

(3) J. C. LEHMANN et C. COHEN-TANNOUJJI, *Comptes rendus*, 258, 1964, p. 4463.

(4) F. D. COLEGROVE, P. A. FRANKEN, R. R. LEWIS et R. H. SANDS, *Phys. Rev. Lett.*, 3, 1959, p. 420.

(5) T. G. ECK, L. L. FOLDY et H. WIEDER, *Phys. Rev. Lett.*, 10, 1963, p. 239.

(6) G. W. SERIES, *Phys. Rev. Lett.*, 12, 1963, p. 529.

(7) J. C. LEHMANN, *J. Phys.*, 25, 1964, p. 809.

(8) J. H. SHIRLEY, *Phys. Rev.*, 138, 4 B, 1965, p. 979.

(9) N. POLONSKY, *Thèse de 3^e cycle*, Paris, 1965.

(10) J. M. WINTER, *Thèse*, Paris, 1958 (*Ann. Phys.*, 4, 1959, p. 745).

(11) R. J. GLAUBER, *Phys. Rev.*, 131, n° 6, 1963, p. 2766 et 2788.

(12) N. BLOEMBERGEN et Y. R. SHEN, *Phys. Rev.*, 133, 1964, p. A 37.

(13) M. H. L. PRYCE, *Phys. Rev.*, 77, 1950, p. 136.

(14) J. N. DODD, G. W. SERIES, *Proc. Roy. Soc.*, A, 263, 1961, p. 353; J. N. DODD, G. W. SERIES et M. J. TAYLOR, *Proc. Roy. Soc.*, A, 273, 1963, p. 41.

(Laboratoire de Physique de l'École Normale Supérieure,
24, rue Lhomond, Paris, 5^e.)