SPECTROSCOPIE HERTZIENNE. — Détection optique de la résonance magnétique par modulation de l'effet Faraday paramagnétique transversal à la fréquence de Larmor. Note (*) de MM. JEAN MANUEL et CLAUDE COHEN-TANNOUDJI, présentée par M. Gustave Ribaud.

L'observation de l'effet Faraday paramagnétique dans une direction perpendiculaire au champ fournit des signaux modulés à la fréquence de Larmor qui permettent de détecter la résonance magnétique et qui se révèlent très commodes pour l'étude de la relaxation thermique.

L'effet Faraday paramagnétique au voisinage d'une raie d'absorption optique a été proposé (¹) et utilisé (²) comme procédé de détection optique de la résonance magnétique. Plus récemment, Gozzini (³) a suggéré d'appliquer cette méthode à l'étude d'atomes optiquement orientés dans l'état fondamental.

Le but de la présente Note est de montrer que l'observation de l'effet Faraday dans une direction perpendiculaire au champ magnétique (et non parallèle, comme dans les références citées plus haut) permet d'obtenir des signaux modulés à la fréquence de Larmor de l'état fondamental. Nous nous limitons ici au cas simple de l'isotope ⁴⁹⁹Hg qui ne possède que deux sous-niveaux Zeeman, $\pm 1/2$, dans l'état fondamental. (Le cas général d'un spin I \geq 1/2 peut se traiter dans le formalisme de la matrice densité et fera l'objet d'une publication ultérieure.) L'expérience décrite ci-dessous présente beaucoup d'analogies avec les expériences de modulation de l'absorption d'un faisceau croisé de Dehmelt, Bell et Bloom (*). Elle s'en différencie cependant très nettement par le fait qu'elle utilise la dispersion anormale de la vapeur au lieu d'utiliser l'absorption. La détection optique de la résonance magnétique se fait donc par l'intermédiaire de transitions virtuelles de résonance optique, d'où la possibilité, comme nous le verrons plus loin, d'utiliser des fréquences optiques excitatrices entièrement non résonnantes.

Le dispositif expérimental, représenté de façon très schématique sur la figure 1, est très voisin de celui décrit par ailleurs (⁵) : le faisceau 1, dirigé suivant l'axe Oz du champ magnétique H₀, effectue le pompage optique de la vapeur de ¹⁹⁹Hg contenue dans la cellule de résonance O. Le faisceau 2 (lampe L₂), polarisé rectilignement par P, est disposé suivant l'axe Ox, perpendiculaire à Oz. La transmission de la vapeur est mesurée par la cellule photoélectrique C devant laquelle est disposé le polaroïd analyseur A. La raie excitatrice u(k) émise par L₂ est centrée autour de la fréquence k_1 et a pour largeur Δ (fig. 2). k_1 est voisin, mais en général distinct de la fréquence k_0 de la composante hyperfine 1/2 de la raie de résonance optique de ¹⁹⁹Hg. Sur la figure 2 est dessinée également la courbe de dispersion anormale de la vapeur, n(k) - 1, centrée autour de k_0 . et normalisée de façon à ne pas dépendre du nombre d'atomes de la vapeur. (Nous supposons par ailleurs H₀ suffisamment petit de façon à pouvoir négliger tout effet Faraday diamagnétique.)

(2)



Calculons tout d'abord la rotation $\varepsilon(k)$ du plan de polarisation pour la fréquence k. $\varepsilon(k)$ est proportionnel, d'une part à n(k) - 1, d'autre part à $(N_x^+ - N_x^-)$, $N_x^+ (N_x^-)$ étant le nombre d'atomes qui se trouvent dans l'état propre $|+1/2\rangle(|-1/2\rangle)$ de I_x, c'est-à-dire susceptibles d'effectuer des transitions circulaires gauches (droites) par rapport à Ox. $(N_x^+ - N_x^-)$ n'est autre, à un coefficient multiplicatif près, que la composante suivant Ox, M_x, de l'aimantation globale de la vapeur. $\varepsilon(k)$ est donc proportionnel à $M_x[n(k) - 1]$. Si θ est l'angle entre les directions de polarisation de P et A, l'intensité lumineuse détectée par la cellule photoélectrique C à la fréquence k est donc de la forme $u(k) \cos^2 \left[\theta + \varepsilon(k)\right]$. L'épaisseur optique de la vapeur étant supposée très faible, $\varepsilon(k)$ est très petit. Le terme du premier ordre en $\varepsilon(k)$ est proportionnel à $\sin 2\theta M_x u(k) [n(k) - 1]$. Le signal total s'obtient en intégrant sur k. Il faut donc faire le produit des deux courbes de la figure 2 et intégrer de $-\infty$ à $+\infty$. Nous retrouvons ainsi une intégrale identique, au signe près, à celle qui figure dans l'expression du déplacement AE' des sousniveaux de l'état fondamental sous l'effet des transitions virtuelles induites par le faisceau 2 (5); ce qui montre bien le lien étroit existant entre le déplacement $\Delta E'$ et le phénomène de dispersion anormale. Le signal S fourni par C est donc, finalement, proportionnel à sin $2\theta M_x \Delta E'$.

Nous voyons que son existence est liée à celle d'une aimantation transversale globale de la vapeur : $M_x \neq 0$. Une telle situation est réalisée lorsqu'on effectue la résonance magnétique entre les deux sous-niveaux de l'état fondamental. M_x est alors modulée à la fréquence $\omega/2\pi$ du champ de radiofréquence, l'amplitude et le déphasage (par rapport au champ H. F.) de cette modulation variant lorsqu'on décrit la raie de résonance magnétique. Tous ces faits sont confirmés expérimentalement. Nous avons également étudié la variation du signal de modulation avec l'angle θ . Il est nul lorsque les polaroïdes P et A sont parallèles ($\theta = 0$) ou croisés ($\theta = \pi/2$), maximal lorsqu'ils sont à 45° (sin $2\theta = 1$).

Pour étudier la variation du signal avec l'écart $k_1 - k_0$ entre les centres de la raie excitatrice et de la raie d'absorption (terme $\Delta E'$), nous utilisons plusieurs lampes L₂ remplies d'isotopes différents et nous mesurons pour chacune de ces lampes l'amplitude de la modulation, tous les autres paramètres expérimentaux demeurant identiques. (Une telle étude ne peut être que qualitative, les brillances et largeurs spectrales des différentes sources n'étant pas rigoureusement identiques bien qu'elles aient été remplies et fonctionnent dans des conditions très semblables.) Les résultats sont représentés sur le tableau I.

TABLEAU 1.

Isotope contenu dans L ₂	¹⁹⁹ Hg.	²⁰⁴ Hg.	²⁰¹ Hg.	²⁰² Hg.
$k_1 - k_0$ (10 ⁻³ cm ⁻¹), largeur Doppler : 34	0	5	33	183
Amplitude modulation (V)	2.10^{-2}	0,26	3,15	2,1

Nous retrouvons bien la variation de $\Delta E'$ avec $k_1 - k_0$, déjà étudiée en détail par ailleurs (⁵). De l'ordre du bruit lorsque $k_1 = k_0$ (lampe à ¹⁹⁹Hg), le signal croît ensuite avec $k_1 - k_0$ et passe par un maximum lorsque $k_1 - k_0$ est de l'ordre de la largeur Δ de la raie excitatrice, c'està-dire la largeur Doppler (lampe à ²⁰¹Hg). Notons qu'on observe un signal encore important avec une lampe à ²⁰²Hg dont le centre k_1 est à près de six largeurs Doppler de k_0 , c'est-à-dire dans des conditions où les photons émis par L₂ n'induisent plus aucune transition réelle dans la cellule de résonance. (La probabilité par unité de temps, $1/T_p$, d'absorption réelle d'un photon est nulle.) On peut également interposer entre L₂ et O un filtre F rempli de ¹⁰⁹Hg qui absorbe dans le spectre excitateur toutes les fréquences susceptibles d'induire des transitions réelles, on constate que le signal de modulation ne disparaît pas : on a annulé $1/T_p$ mais non $\Delta E'$.

Cette propriété se révèle très commode pour l'étude de la relaxation thermique. Supposons en effet qu'on coupe rapidement et simultanément le faisceau de pompage 1 et la radiofréquence. L'amplitude du signal de modulation s'amortit alors avec une constante de temps τ_2 . La théorie et l'expérience montrent (⁵) que si le faisceau 2 induit des transitions réelles $(I/T_p \neq 0)$, I/τ_2 dépend linéairement de l'intensité I de ce faisceau, la valeur de I/τ_2 extrapolée à I = 0 étant égale à l'inverse I/θ_2 du temps de relaxation transversal thermique. Si le faisceau 2 est tel qu'il n'induise plus de transitions réelles, I/τ_2 ne dépend plus de I et est égal à I/θ_2 . Une *seule mesure* de temps d'amortissement suffit pour déterminer θ_2 . Ceci apparaît clairement sur la figure 3. La variation de I/τ_2 avec I a été étudiée dans trois cas différents : *a*. L₂ est une lampe à ²⁰¹Hg. Les raies excitatrices et les raies d'absorption se recouvrent : $I/T_p \neq 0$; $1/\tau_2$ dépend de I de façon sensible; b. L₂ est une lampe à ²⁰¹Hg filtrée par un filtre à ¹⁹⁹Hg; l'effet de I est considérablement réduit, mais pas complètement nul, car le filtre n'est pas parfait; c. L₂ est une lampe à ²⁰²Hg : $1/T_p$ est nul et $1/\tau_2$ ne dépend plus de I. Toutes ces courbes s'extrapolent à la même valeur $1/\theta_2$ pour I nul.



(*) Séance du 1er juillet 1963.

(1) A. KASTLER, Comptes rendus, 232, 1951, p. 953; W. OPECHOWSKI, Rev. Mod. Phys. 25, 1953, p. 264.

(2) J. M. DANIELS et H. WESEMEYER, Canad. J. Phys., 36, 1958, p. 405; Z. Phys., 152, 1958, p. 591.

(3) A. Gozzini, Comptes rendus, 255, 1962, p. 1905.

(*) H. G. DEHMELT, Phys. Rev., 105, 1957, p. 1924; W. E. BELL et A. L. BLOOM, Phys. Rev., 107, 1957, p. 1559.

(5) C. COHEN-TANNOUDJI, Thèse, Paris, 1962 (Ann. Phys., 7, 1962, p. 423 et 469).

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