

SPECTROSCOPIE HERTZIENNE. — *Interprétation de divers spectres de raies de résonance magnétique basée sur une résolution par itération des équations d'évolution de la matrice densité atomique.* Note (\*) de MM. **CLAUDE COHEN-TANNOUDJI** et **SERGE HAROCHE**, présentée par M. Alfred Kastler.

En effectuant une décomposition tensorielle de la matrice densité atomique et une résolution par itération des équations d'évolution, on interprète des résonances bien connues (transitions à plusieurs quanta) et les nouveaux spectres de raies de résonance magnétique apparaissant en pompage optique transversal. Les résultats obtenus sont valables quelle que soit la grandeur du spin atomique  $J$ . Certains résultats expérimentaux obtenus sur l'isotope  $^{201}\text{Hg}$  ( $J = 3/2$ ) sont présentés.

Soit un ensemble d'atomes dans un état *excité* de spin  $J$ , pompés optiquement par un faisceau  $F$ , plongés dans un champ magnétique statique  $\mathbf{H}_0$  (définissant la direction  $Oz$  d'un trièdre  $Oxyz$ ) et dans un champ de radiofréquence linéaire de pulsation  $\omega$ ,  $\mathbf{H}_1 \cos \omega t$ , aligné le long de  $Ox$ . (Le traitement présenté ici se généralise sans difficulté au cas d'un état fondamental pompé optiquement.) L'équation d'évolution de la matrice densité  $\sigma$  de l'ensemble des spins s'écrit <sup>(1)</sup> :

$$(1) \quad \frac{d\sigma}{dt} = \frac{\sigma_{\text{ex}}}{T_p} - \Gamma\sigma - i[\omega_0 J_z + \omega_1 \cos \omega t J_x, \sigma],$$

$\sigma$  évoluant sous l'effet de l'*excitation optique* décrite par la matrice  $\sigma_{\text{ex}}$  qui ne dépend que des propriétés de  $F$  (dont la constante de pompage est  $T_p$ ), la *relaxation* liée à la largeur  $\Gamma$  de l'état atomique et l'*action du champ magnétique*  $\mathbf{H}_0 + \mathbf{H}_1 \cos \omega t$  ( $\omega_{0,1} = \gamma H_{0,1}$ ;  $\gamma$ , rapport gyromagnétique de l'état atomique). En décomposant <sup>(2)</sup>, les matrices  $\sigma$  et  $\sigma_{\text{ex}}$  sur un ensemble complet de  $(2J + 1)^2$  opérateurs tensoriels irréductibles  $T_q^k$  ( $k = 0, 1, \dots, 2J$ ;  $-k \leq q \leq k$ ), (1) devient

$$(2) \quad \frac{d\alpha_q^k}{dt} = \frac{\alpha_{\text{ex}q}^k}{T_p} - (\Gamma + iq\omega_0) \alpha_q^k - \frac{i\omega_1 \cos \omega t}{2} [\sqrt{k(k+1) - q(q-1)} \alpha_{q-1}^k + \sqrt{k(k+1) - q(q+1)} \alpha_{q+1}^k],$$

en posant

$$\alpha_q^k = T_r[\sigma T_q^{k\dagger}]; \quad \alpha_{\text{ex}q}^k = T_r[\sigma_{\text{ex}} T_q^{k\dagger}].$$

On voit que les équations d'évolution ne couplent entre elles que les composantes tensorielles de même  $k$ , (2) se séparant en sous-systèmes découplés à 1, 3, 5, ...  $(4J + 1)$  équations correspondant à  $k = 0, 1, 2, \dots, 2J$ . Par suite du caractère dipolaire électrique des transitions optiques mises en jeu, ni l'excitation, ni la détection optique ne permettent d'introduire ou d'observer des composantes tensorielles d'ordre  $k > 2$  <sup>(3)</sup>. Le système (2) se réduit donc à deux sous-systèmes d'équations décrivant l'évolution des trois composantes  $\alpha_q^1$  de l'« orientation » ( $k = 1$ ) et des cinq composantes  $\alpha_q^2$  de l'« alignement » ( $k = 2$ ) de l'ensemble des spins (compte non tenu

de  $\alpha_0^0$  proportionnel à la population globale de l'état atomique). Pour résoudre ces équations, nous utilisons une méthode d'itération (4). Nous décomposons chaque  $\alpha_q^k$  ( $k = 1, 2$ ) en puissances de la perturbation  $\omega_1$  suivant le développement  $\alpha_q^k = \sum_n^{(n)} \alpha_q^k \omega_1^n$  ( $0 < n < +\infty$ ) qui, reporté dans (2), donne (avec  $n \neq 0, k = 1, 2$ ) :

$$(3) \quad \frac{d^{(n)} \alpha_q^k}{dt} = -(\Gamma + iq\omega_0)^{(n)} \alpha_q^k - \frac{i \cos \omega t}{2} [\sqrt{k(k+1) - q(q-1)}^{(n-1)} \alpha_{q-1}^k + \sqrt{k(k+1) - q(q+1)}^{(n-1)} \alpha_{q+1}^k]$$

ce qui permet de calculer par récurrence les solutions aux différents ordres (5) : Pour obtenir la solution à l'ordre  $n$ , il faut résoudre une équation

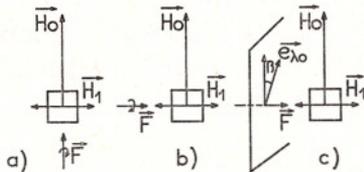


Fig. 1.

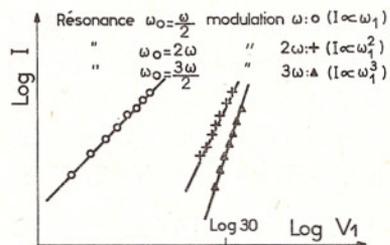


Fig. 2.

différentielle linéaire du premier ordre possédant un « second membre source » oscillant proportionnel à la solution « forcée » à l'ordre  $(n - 1), \dots$  Tout le calcul dépend finalement de la solution à l'ordre zéro, c'est-à-dire des composantes  $\alpha_{ex,q}^k$  ( $k = 1, 2$ ) qui décrivent l'excitation optique. Le signal de détection s'obtient enfin simplement comme une combinaison linéaire (dépendant naturellement de la polarisation de la lumière détectée) des coefficients  $\alpha_q^k$  ainsi calculés. Envisageons successivement les cas de l'orientation et de l'alignement :

1° Résonances en orientation. — Dans le cas où l'état atomique a un spin  $J = 1/2$ , l'alignement est nécessairement nul et l'on ne peut observer que des signaux liés à l'orientation. Il faut alors dans (3) faire  $k = 1$  : les résonances observées dépendent des  $\alpha_{ex,q}^k$ , eux-mêmes déterminés par la direction du faisceau F. Si F, polarisé *circulairement*, se propage le long de  $\mathbf{H}_0$  (fig. 1, a), l'excitation optique, purement *longitudinale*, n'introduit que des différences de population et l'on a  $\alpha_{ex,0}^k \neq 0, \alpha_{ex,\pm 1}^k = 0$ . Les équations (3) conduisent à l'apparition sur les termes  $^{(n)} \alpha_q^k$  de dénominateurs résonnant dans les champs tels que  $\omega_0 = (2p + 1)\omega$  ( $p \geq 0$ ). Il en résulte, sur les signaux de détection optique, l'existence de tout un spectre « impair » de résonances, celui des transitions à plusieurs quanta (6). Si, maintenant F, perpendiculaire à  $\mathbf{H}_0$ , se propage le long de  $\mathbf{H}_1$  (fig. 1, b), l'excitation optique,

purement *transversale*, n'introduit plus de différences de population, mais seulement de la « *cohérence hertzienne* » et l'on a  $\alpha_{\text{ex}0}^1 = 0$ ,  $\alpha_{\text{ex}\pm 1}^1 \neq 0$ . Les équations (3) conduisent alors à l'apparition sur les termes  ${}^{(n)}\alpha_{\eta}^1$  de dénominateurs résonnant dans les champs tels que  $\omega_0 = 2p\omega$  ( $p \geq 0$ ). Il en résulte, sur les signaux de détection optique, l'existence de tout un spectre « pair » de résonances : il s'agit des « nouvelles résonances » décrites dans une Note précédente (7) et dont nous avons vérifié les propriétés dans le cas du pompage optique de l'état fondamental  $6^1S_0$  du  $^{199}\text{Hg}$  ( $J = 1/2$ ).

2° *Résonances en alignement*. — Afin d'étudier sélectivement les signaux résonnants en *alignement*, il suffit de choisir un état atomique de spin  $J > 1/2$  et de polariser *linéairement* le faisceau F : on montre alors (3) que  $\alpha_{\text{ex}\eta}^1 = 0$  : il faut alors dans (3) faire  $k = 2$ . Supposons F se propageant le long de  $\mathbf{H}_1$ .

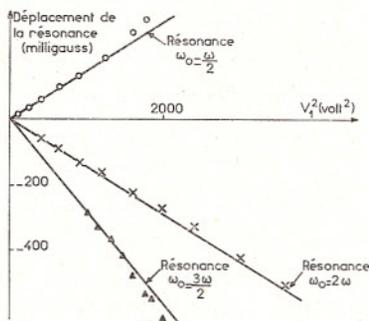


Fig. 3.

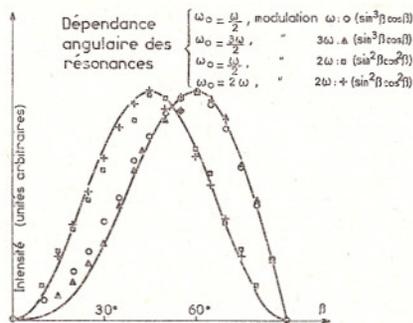


Fig. 4.

Soit  $\beta$  l'angle que fait avec  $\mathbf{H}_0$  le vecteur de polarisation linéaire  $\mathbf{e}_\eta$  (fig. 1, c). Il résulte (5) très simplement des propriétés de rotation des  $T_q^k$  que  $\alpha_{\text{ex}\pm 2}^2$ ,  $\alpha_{\text{ex}\pm 1}^2$ ,  $\alpha_{\text{ex}0}^2$  sont respectivement proportionnels à  $\sin^2 \beta$ ,  $\sin \beta \cos \beta$ ,  $3 \cos^2 \beta - 1$ . Supposons d'abord  $\beta = 0$ . Nous sommes alors en polarisation « non cohérente ». Le pompage n'induit que des différences de population et l'on a  $\alpha_{\text{ex}0}^2 \neq 0$ ,  $\alpha_{\text{ex}\pm 2}^2 = \alpha_{\text{ex}\pm 1}^2 = 0$ . Les équations (3) conduisent à l'apparition sur les termes  ${}^{(n)}\alpha_{\eta}^2$  de dénominateurs résonnant dans les champs tels que  $\omega_0 = (2p + 1)\omega$ . Nous retrouvons en *alignement* le spectre impair des transitions à plusieurs quanta. Supposons maintenant  $\beta \neq 0$ . Nous sommes alors en polarisation « cohérente » et l'on a non seulement  $\alpha_{\text{ex}0}^2 \neq 0$ , mais aussi  $\alpha_{\text{ex}\pm 1}^2$  et  $\alpha_{\text{ex}\pm 2}^2 \neq 0$  : la résolution de (3) montre qu'il apparaît, en plus des termes relatifs aux transitions à plusieurs quanta décrits plus haut et provenant de  $\alpha_{\text{ex}0}^2$ , de *nouveaux* termes provenant de  $\alpha_{\text{ex}\pm 1,2}^2$  résonnant dans les champs tels que  $\omega_0 = 2p\omega$  (spectre « pair ») et  $\omega_0 = (2p + 1)\omega/2$  (spectre « demi-entier »). Les « nouvelles résonances » en alignement qui leur correspondent, modulées à tous les multiples de la fréquence  $\omega$ , sont donc comme en orientation, liées au caractère *transversal* de l'excitation lumineuse. La forme des signaux résonnants dépend non seulement de l'angle  $\beta$ , mais aussi de la polarisation utilisée à la détec-

tion. Le traitement précédent permet un calcul aisé des signaux à l'ordre le plus bas où ils apparaissent. Il montre clairement que les résonances observées *sont indépendantes de la grandeur du spin de l'état atomique et ne dépendent que de la nature des signaux détectés (orientation ou alignement) et des caractéristiques du pompage (longitudinal ou transversal)*. Il n'est par contre pas bien adapté à l'étude des élargissements et déplacements radiatifs qui sont liés à des « effets de saturation » décrits dans le calcul par des termes d'ordre supérieur. Ces derniers effets ainsi que l'interprétation des résonances en termes de photons de radiofréquence apparaissent plus simplement dans un traitement *quantique* du champ de radiofréquence ayant déjà fait l'objet d'une Note précédente (8).

Nous avons fait une étude expérimentale des nouvelles résonances en alignement dans le cas du pompage optique transversal de l'état fondamental  $6^1S_0$  du  $^{201}\text{Hg}$  ( $J = 3/2$ ), le signal détecté étant constitué par la lumière absorbée sur le faisceau pompant. Nous avons notamment étudié les « nouvelles résonances »  $\omega_0 = \omega/2$ ,  $\omega_0 = 3\omega/2$ ,  $\omega_0 = 2\omega$  sur diverses modulations et nous avons obtenu des résultats en bon accord avec les prévisions théoriques (5) : certains résultats concernant l'intensité  $I$  des résonances, leurs déplacements radiatifs et leur dépendance angulaire en fonction de  $\beta$ , sont portés respectivement sur les figures 2, 3 et 4. Les courbes correspondent aux formules théoriques, les points sont expérimentaux ( $V_1$ , voltage aux bornes des bobines de radiofréquence est proportionnel à  $\omega_1$ ).

(\*) Séance du 6 février 1967.

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

(2) U. FANO, *Rev. Mod. Phys.*, 29, 1957, p. 74.

(3) O. NEDELEC, *Thèse*, Grenoble, 1966.

(4) N. BLOEMBERGEN et Y. R. SHEN, *Phys. Rev.*, 133, 1964, p. 137.

(5) S. HAROCHE, *Thèse de 3<sup>e</sup> cycle*, Paris, 1967 (à paraître).

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

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

(8) C. COHEN-TANNOUDJI et S. HAROCHE, *Comptes rendus*, 262, série B, 1966, p. 37.

(Laboratoire de Physique de l'E. N. S., associé au C. N. R. S.,  
24, rue Lhomond, Paris, 5<sup>e</sup>.)