

ABSORPTION ET DIFFUSION DE PHOTONS OPTIQUES PAR UN ATOME EN INTERACTION AVEC DES PHOTONS DE RADIOFRÉQUENCE

Par C. COHEN-TANNOUJJI et S. HAROCHE,

Faculté des Sciences de Paris, Laboratoire de Spectroscopie Hertzienne de l'E.N.S., associé au C.N.R.S.,
24, rue Lhomond, Paris, 5^e.

(Reçu le 18 octobre 1968.)

Résumé. — Diverses résonances étudiées dans un précédent article sont réinterprétées en utilisant le concept d'atome « habillé » par des photons de radiofréquence. On montre que ces résonances sont étroitement liées aux croisements et antic croisements qui apparaissent dans le diagramme d'énergie de cet atome « habillé ». Ce point de vue suggère l'étude d'effets nouveaux. Le facteur de Landé de l'atome « habillé » peut, dans certains cas, différer considérablement de celui de l'atome « nu » et parfois même s'annuler. Ceci modifie de façon importante le spectre d'absorption de l'atome « habillé » en champ faible et l'effet de dépolarisation magnétique.

Abstract. — A new interpretation of the various resonances studied in a previous article is given, by considering the system "atom + R.F field" as an atom "dressed" by the R.F photons. The resonances are shown to be closely related to the crossings and anticrossings appearing in the energy diagram of this "dressed" atom. This point of view suggests the study of some new effects : the Landé factor of the "dressed" atom is in some cases drastically different from the one of the "bare" atom ; it may sometimes be cancelled. This phenomenon leads to an important modification of the absorption spectrum of the "dressed" atom in a weak magnetic field and of the magnetic depolarization effect.

Introduction. — Dans un article précédent [1], nous avons donné une interprétation quantique des diverses résonances qui apparaissent sur la lumière diffusée par un atome en interaction avec des photons de radiofréquence. Nous avons associé un diagramme de Feynman à tout processus de diffusion de photons optiques et de radiofréquence par l'atome et pu procéder à une resommation complète de tous ces diagrammes. Cette resommation fait apparaître des énergies « renormalisées » différentes de celles de l'atome libre et qui sont à l'origine des effets de déplacement et d'élargissement radiatif des diverses résonances. Dans la conclusion de cet article, nous avons suggéré le point de vue suivant : entre l'absorption du photon optique incident et l'émission du photon optique diffusé, se « propage » le système total « atome + photons de radiofréquence » en interaction, que l'on peut encore appeler atome « habillé » par les photons de radiofréquence et dont les énergies ne sont autres que les énergies « renormalisées » mentionnées précédemment. En d'autres termes, les photons optiques sont diffusés par l'atome « habillé » par les photons de radiofréquence. C'est ce point de vue que nous nous proposons d'approfondir dans cet article.

Dans une première partie, nous étudions le diagramme d'énergie de l'atome « habillé » pour diverses

valeurs du moment cinétique et diverses polarisations du champ de radiofréquence et nous montrons comment les résonances décrites dans l'article précédent [1] s'interprètent simplement en termes de « croisements » et d'« antic croisements » de niveaux d'énergie de l'atome « habillé ».

Nous passons ensuite à l'étude de nouveaux effets que le concept d'atome « habillé » suggère et permet de décrire très simplement. Ainsi, dans la partie II, nous étudions le diagramme d'énergie au voisinage du champ nul, ce qui nous donne le facteur de Landé des niveaux de l'atome « habillé » dont nous montrons qu'il peut, dans certains cas, différer considérablement de celui de l'atome libre et parfois même s'annuler.

Dans une troisième partie, nous étudions le spectre d'absorption de l'atome « habillé » soit en champ faible (spectre d'absorption Zeeman), soit au voisinage d'un « antic croisement » de niveaux (effet Autler-Townes [2]). Nous calculons la position et l'intensité des différentes raies du spectre. Nous établissons par ailleurs certaines règles de somme qui montrent que l'absorption en raie large et l'émission spontanée de l'atome « habillé » sont les mêmes que celles de l'atome « nu ».

Enfin, nous montrons, dans une dernière partie, comment la variation du facteur de Landé modi-

fie les courbes de dépolariation magnétique (effet Hanle [3]).

Nous avons pu déjà observer expérimentalement certains des effets prévus (effet Hanle). D'autres sont en cours d'étude.

I. Les niveaux d'énergie de l'atome « habillé » et les divers types de résonance magnétique ⁽¹⁾. — Rappelons que l'hamiltonien \mathcal{H} du système (S) se met sous la forme :

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_0 + V$$

où $\mathcal{H}_0 = \omega_0 J_z + \omega a^\dagger a$ représente l'énergie de l'atome et du champ de radiofréquence en l'absence de couplage et V le terme d'interaction entre l'atome et les photons de radiofréquence dont la forme dépend de la polarisation du champ de radiofréquence (cf. appendice I de la référence [1]).

Comme dans la référence [1], nous traiterons dans cette première partie, V comme une perturbation suffisamment petite : nous poserons $\omega_1 = -\gamma H_1$ et nous supposerons remplie la condition :

$$|\omega_1| \ll \omega, \omega_0$$

qui peut encore s'écrire, en utilisant la relation (I.A.4) de la référence [1] :

$$|2\lambda \sqrt{n}| \ll \omega, \omega_0.$$

A. NIVEAUX D'ÉNERGIE DE (S) EN FONCTION DU CHAMP MAGNÉTIQUE H_0 . — Les niveaux d'énergie de \mathcal{H} peuvent se déduire de ceux de \mathcal{H}_0 dans le cadre de la théorie des perturbations stationnaires. Nous savons que l'effet de la perturbation V sur les niveaux de \mathcal{H}_0 peut être très important chaque fois que des niveaux d'énergie se trouvent dégénérés, c'est-à-dire à tous les points de croisement de niveaux de \mathcal{H}_0 . Il est donc essentiel de déterminer le comportement des niveaux de (S) au voisinage de ces points. Nous pouvons, dans ce but, faire appel au formalisme de la résolvante qui permet de séparer très commodément les niveaux dégénérés qui nous intéressent de tous les autres : nous avons montré en effet, dans la référence [1], que l'on peut mettre la projection PGP de la résolvante dans le sous-espace des niveaux dégénérés sous la forme :

$$PGP = \frac{1}{z - \mathcal{H}_0 - PRP} \quad (\text{I.A.1})$$

dans laquelle l'effet du couplage avec tous les autres niveaux est résumé dans l'opérateur de « déplacement » R (défini par la formule (II.B.9) de [1]). Les énergies propres de \mathcal{H} sont les pôles de $G(z)$, c'est-à-dire encore les zéros de l'équation :

$$z - \mathcal{H}_0 - PR(z)P = 0. \quad (\text{I.A.2})$$

⁽¹⁾ Nous utilisons, dans cet article, les notations définies dans la référence [1]. Nous appellerons (S) le système « atome + photons de radiofréquence » ou encore l'atome « habillé » par les photons de radiofréquence.

Remarquons que, dans le cadre de la théorie des perturbations, $R(z)$ est une quantité petite et lentement variable que l'on peut raisonnablement approcher par son expression \bar{R} à l'ordre le plus bas, prise pour la valeur \bar{E} commune de l'énergie des niveaux dégénérés (cf. référence [1]); on constate alors que (I.A.2) se ramène à l'équation séculaire d'un hamiltonien effectif $\tilde{\mathcal{H}}$ rapporté à la multiplicité des niveaux dégénérés :

$$\tilde{\mathcal{H}} = \mathcal{H}_0 + \bar{P}\bar{R}P. \quad (\text{I.A.3})$$

On obtient donc, en diagonalisant $\tilde{\mathcal{H}}$, les énergies propres de \mathcal{H} au voisinage du croisement de niveaux envisagé ainsi que la projection des états propres de \mathcal{H} dans la multiplicité des niveaux qui se croisent.

Limitons-nous pour l'instant au cas d'un spin $J = 1/2$: la dégénérescence aux croisements de niveaux est d'ordre 2 (cf. fig. 1 de la référence [1]) et la diagonalisation de $\tilde{\mathcal{H}}$ est alors particulièrement simple. Deux cas fondamentalement différents se présentent suivant qu'il existe ou non un couplage \bar{R}_{ab} entre les deux niveaux $|a\rangle$ et $|b\rangle$ qui se croisent :

— Cas de deux niveaux $|a\rangle$ et $|b\rangle$ non couplés : R_{ab} est nul à tous les ordres de perturbations; $\tilde{\mathcal{H}}$ est diagonal et admet pour valeurs propres :

$$\begin{aligned} E_a &= E_a + \bar{R}_{aa} \\ E_b &= E_b + \bar{R}_{bb} \end{aligned} \quad (\text{I.A.4})$$

\bar{R}_{aa} et \bar{R}_{bb} étant donnés par les expressions classiques de la théorie des perturbations au second ordre :

$$\bar{R}_{aa} = \sum_{i \neq a, b} \frac{\langle a|V|i\rangle \langle i|V|a\rangle}{E - E_i}. \quad (\text{I.A.5})$$

Sous l'effet des transitions virtuelles vers les niveaux $|i\rangle$ autres que $|a\rangle$ et $|b\rangle$, les deux niveaux qui se croisaient en I sont donc déplacés et viennent se croiser en un point I' décalé par rapport à I d'une quantité δ_c du second ordre en V (donc du second ordre en ω_1) (cf. fig. 1).

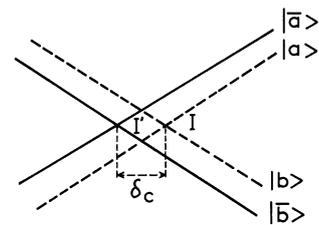


FIG. 1.

Quant aux états propres de (S), ils sont à l'ordre zéro identiques aux états propres non perturbés de \mathcal{H}_0 , $|a\rangle$ et $|b\rangle$. Aux ordres supérieurs, ils sont donnés au voisinage du croisement de niveaux par des développements classiques de la théorie des perturbations non dégénérées qui traduisent la contamination des niveaux aux différents ordres sous l'effet des transitions

virtuelles non résonnantes. Sous la forme implicite de Wigner-Brillouin, ils s'écrivent (à un coefficient de normalisation près) :

$$|\bar{a}\rangle = |a\rangle + \frac{Q}{E_a - \mathcal{H}_0} V |a\rangle + \frac{Q}{E_a - \mathcal{H}_0} V \frac{Q}{E_a - \mathcal{H}_0} V |a\rangle + \dots$$

$$(Q = 1 - P). \quad (\text{I.A.6})$$

On reconnaît dans (I.A.6) le développement de l'opérateur F' défini dans la référence [1] (relation II.B.8) et pris pour la valeur $z = E_a^-$:

$$|\bar{a}\rangle = F'(E_a^-) |a\rangle. \quad (\text{I.A.7})$$

— Cas de deux niveaux $|a\rangle$ et $|b\rangle$ couplés entre eux : Le couplage peut être soit direct ($\bar{R}_{ab} = V_{cb} \neq 0$) soit indirect *via* q états intermédiaires distincts de $|a\rangle$ et $|b\rangle$ (\bar{R}_{ab} d'ordre $q + 1$). $\tilde{\mathcal{H}}$ possède des éléments non diagonaux et ses énergies propres s'écrivent :

$$E_{ab,\pm} = \frac{E_a + E_b + \bar{R}_{aa} + \bar{R}_{bb}}{2} \pm \sqrt{\left(\frac{E_a + \bar{R}_{aa} - E_b - \bar{R}_{bb}}{2}\right)^2 + |\bar{R}_{ab}|^2}. \quad (\text{I.A.8})$$

La structure de cette expression est très claire (voir fig. 2) : sous l'effet des transitions virtuelles vers les

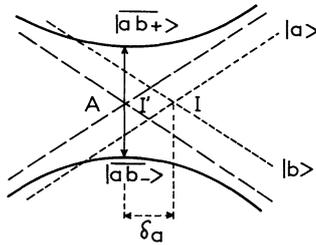


FIG. 2.

niveaux $|i\rangle$ autres que $|a\rangle$ et $|b\rangle$ et décrites par les éléments de matrice diagonaux \bar{R}_{aa} et \bar{R}_{bb} , les niveaux $|a\rangle$ et $|b\rangle$ (en pointillé) qui se croisaient en I sont déplacés (traits tirés) et viennent se croiser en I' décalé par rapport à I d'une quantité δ_a du second ordre en V ; sous l'effet des transitions réelles entre $|a\rangle$ et $|b\rangle$ décrites par l'élément non diagonal \bar{R}_{ab} , les niveaux ainsi déplacés se repoussent suivant les deux branches d'une hyperbole pour constituer un anticroisement centré en I' ; la distance minimale A des deux niveaux qui s'anticroisent est proportionnelle à l'intensité R_{ab} du couplage, c'est-à-dire à $|\omega_1|^{q+1}$ (anticroisement d'ordre $q + 1$).

Quant aux états propres de (S) au voisinage de I' , ils sont, à l'ordre zéro qui seul nous intéressera ici, constitués par un mélange des deux états « non

perturbés » $|a\rangle$ et $|b\rangle$ que l'on peut mettre sous la forme :

$$|\overline{ab}, +\rangle = \cos \frac{\theta}{2} |a\rangle + \sin \frac{\theta}{2} |b\rangle$$

$$|\overline{ab}, -\rangle = -\sin \frac{\theta}{2} |a\rangle + \cos \frac{\theta}{2} |b\rangle$$

avec :

$$\text{tg} \frac{\theta}{2} = \frac{2\bar{R}_{ab}}{E_a + \bar{R}_{aa} - E_b - \bar{R}_{bb}}. \quad (\text{I.A.9})$$

Les niveaux d'énergie du système (S) se déduisent très simplement des considérations précédentes : pour une polarisation de radiofréquence σ (linéaire perpendiculaire à H_0), nous avons vu dans [1] que les niveaux qui se croisent dans les champs « pairs » tels que $\omega_0 = 2p\omega$ ne sont couplés à aucun ordre, alors que les niveaux qui se croisent dans les champs « impairs » tels que $\omega_0 = (2p + 1)\omega$ sont couplés à l'ordre $2p + 1$: les premiers continuent à se couper en un croisement déplacé par rapport au croisement correspondant de

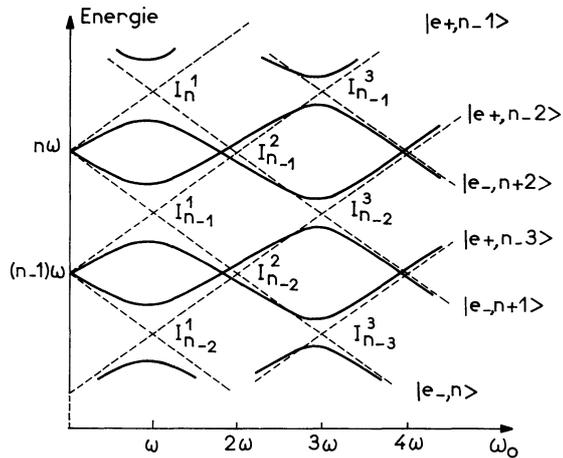


FIG. 3.

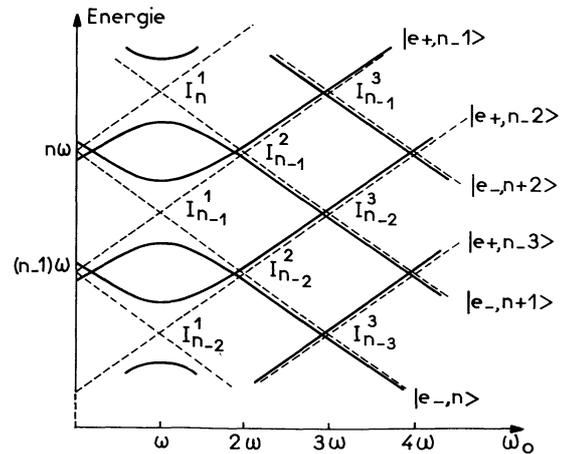


FIG. 4.

\mathcal{H}_0 d'une quantité du second ordre en ω_1 vers les champs faibles alors que les seconds forment des anticroisements d'ordre $2p + 1$ dont le centre est également déplacé d'une quantité du second ordre en ω_1 par rapport au croisement correspondant de \mathcal{H}_0 , le spectre des niveaux d'énergie de (S) étant représenté en traits pleins sur la figure 3.

La figure 4 représente, en traits pleins, les niveaux d'énergie du système (S) dans le cas d'un champ de radiofréquence σ_+ tournant perpendiculaire à H_0 . Dans ce cas, le calcul des niveaux d'énergie peut s'effectuer sans approximations : le niveau $|e_-, n\rangle$ n'est couplé qu'au niveau $|e_+, n-1\rangle$ (cf. appendice I de [1]) et nous sommes ramenés rigoureusement au problème de la diagonalisation d'une matrice 2×2 : seuls les croisements $\omega_0 = \omega$ deviennent des anticroisements non déplacés, tous les autres croisements restant des croisements de (S) déplacés. Les niveaux d'énergie prennent la forme d'hyperboles admettant les niveaux non perturbés pour asymptotes.

La figure 5 représente les niveaux d'énergie du système (S) dans le cas d'un champ de radiofréquence

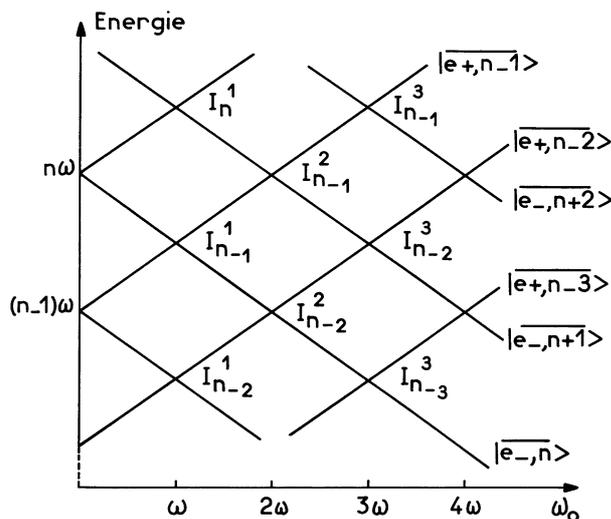


FIG. 5.

linéaire π parallèle à H_0 . Seuls les niveaux de même spin sont alors couplés entre eux (cf. appendice I de [1]) et les niveaux de \mathcal{H}_0 qui se croisent ne sont couplés à aucun ordre : tous les croisements restent des croisements de niveaux de \mathcal{H} . Ce cas peut d'ailleurs faire l'objet d'un traitement rigoureux [4]. On montre que les niveaux d'énergie de \mathcal{H} sont identiques à ceux de \mathcal{H}_0 (à une translation en énergie $-\lambda^2/4\omega$ près), les états propres correspondants s'écrivent :

$$|\bar{e}_\pm, n\rangle = |e_\pm\rangle e^{\mp \lambda/2\omega(a^\dagger - a)} |n\rangle.$$

Dans le cas d'un spin $J > 1/2$, la détermination des niveaux d'énergie de \mathcal{H} , bien que plus compliquée, s'effectue d'une façon tout à fait analogue. Nous allons l'illustrer en revenant au cas d'un champ de radio-

fréquence linéaire en polarisation σ : dans un premier temps, nous commençons par déterminer les niveaux de \mathcal{H}_0 ; ils sont constitués par une succession de diagrammes Zeeman du spin J séparés les uns des autres par l'énergie ω d'un photon de radiofréquence (traits pointillés sur la figure 6 dans le cas d'un spin $J = 1$). Le spectre présente alors une infinité de croisements dans les champs tels que $(m - m')\omega_0 = (n - n')\omega$.

Il nous faut diagonaliser \mathcal{H} en ces divers croisements qui peuvent correspondre à des multiplicités dégénérées d'ordre supérieur à 2 : si $P\bar{R}P$ est purement diagonal, les niveaux de \mathcal{H}_0 qui se croisent ne sont pas couplés et correspondent à des croisements de (S); si $P\bar{R}P$ possède par contre des éléments non diagonaux, les niveaux correspondants sont couplés par la perturbation et se repoussent pour former des anticroisements qui peuvent faire intervenir plus de deux niveaux et dont la configuration exacte dépend de la diagonalisation de \mathcal{H} . Or, d'après les règles de sélection établies en appendice I de [1], pour une polarisation σ , seuls les niveaux tels que Δm et Δn ont la même parité, peuvent être couplés par V : dans le cas d'un spin $J = 1$, les niveaux $|e_{-1}, n+1\rangle$ et $|e_{+1}, n\rangle$ ne sont pas couplés et le croisement $\omega_0 = \omega/2$ reste un croisement de niveaux de (S). Il en est de même du croisement $\omega_0 = 3\omega/2$ des niveaux $|e_{-1}, n+1\rangle$ et $|e_{+1}, n-2\rangle$ et en général de tous les croisements de niveaux « demi-entiers » $\omega_0 = (2p + 1)\omega/2$ (cf. fig. 6). Tous ces croisements subissent des déplacements radia-

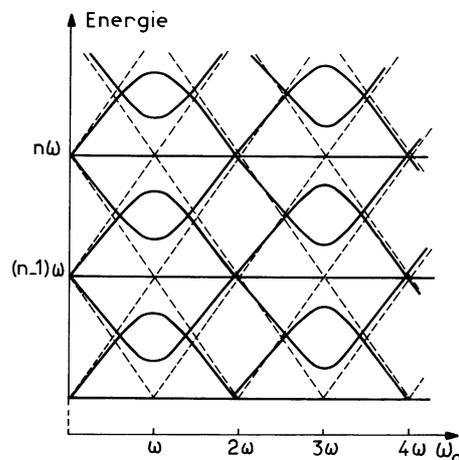


FIG. 6.

tifs du second ordre en ω_1 , positifs ou négatifs suivant le croisement envisagé et entièrement calculables à partir des éléments diagonaux de $P\bar{R}P$.

Par contre, les niveaux $|e_{-1}, n+1\rangle$, $|e_0, n\rangle$ et $|e_{+1}, n-1\rangle$ sont couplés par la perturbation V et forment dans le champ $\omega_0 = \omega$ un anticroisement à trois niveaux dont le calcul se ramène à la diagonalisation d'une matrice 3×3 . Il en est de même des niveaux $|e_{-1}, n+1\rangle$, $|e_0, n-2\rangle$ et $|e_{+1}, n-5\rangle$

dans le champ $\omega_0 = 3\omega$, et en général des niveaux qui se croisent aux points de croisements « impairs » $\omega_0 = (2p + 1)\omega$, qui conduisent à des anticroisements à trois niveaux déplacés.

Il nous reste à traiter les croisements « pairs » $\omega_0 = 2p\omega$ qui, dans le cas d'un spin $J = 1/2$, corres-

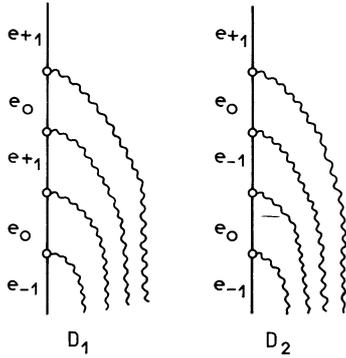


FIG. 7.

pondent à des niveaux qui ne peuvent être couplés à aucun ordre par V . Plaçons-nous dans un champ tel que $\omega_0 = 2\omega$. Les trois niveaux qui s'y croisent sont, par exemple, les niveaux $|e_{-1}, n + 1\rangle$, $|e_0, n - 1\rangle$ et $|e_{+1}, n - 3\rangle$. Si les niveaux $|e_{-1}, n + 1\rangle$ et $|e_0, n - 1\rangle$ d'une part, $|e_0, n - 1\rangle$ et $|e_{+1}, n - 3\rangle$ d'autre part ne peuvent être couplés entre eux; il n'en est pas de même des niveaux $|e_{-1}, n + 1\rangle$ et $|e_{+1}, n - 3\rangle$ pour lesquels les nombres quantiques n et m diffèrent d'un entier pair.

On devrait donc s'attendre à un anticroisement de ces deux niveaux. Nous allons voir qu'il n'en est rien. Calculons en effet l'élément non diagonal :

$$R_{ab} = \langle e_{+1}, n - 3 | R | e_{-1}, n + 1 \rangle$$

de l'opérateur déplacement; il lui correspond, à l'ordre le plus bas (4^e ordre), les deux diagrammes D_1 et D_2 de la figure 7, R_{ab} s'obtenant en effectuant la somme des contributions de ces deux diagrammes qui ne diffèrent que par l'une de leurs transitions intermédiaires. Les contributions correspondantes R_1 et R_2 s'obtiennent immédiatement :

$$R_1 = \frac{\langle e_{+1}, n - 3 | V | e_0, n - 2 \rangle \langle e_0, n - 2 | V | e_{\pm 1}, n - 1 \rangle \langle e_{\pm 1}, n - 1 | V | e_0, n \rangle \langle e_0, n | V | e_{-1}, n + 1 \rangle}{[\bar{E} - (n - 2)\omega] [\bar{E} \mp \omega_0 - (n - 1)\omega] [\bar{E} - n\omega]}$$

et en y remplaçant ω_0 par 2ω et \bar{E} par l'énergie $(n - 1)\omega$ du croisement de niveaux, on constate sans peine que $R_1 + R_2 = 0$.

Le couplage entre les deux niveaux $|e_{-1}, n + 1\rangle$ et $|e_{+1}, n - 3\rangle$ s'annule ainsi sous l'effet de l'interférence destructrice des deux amplitudes de transition décrites par les diagrammes (D_1) et (D_2).

Ce résultat, établi ici à l'ordre le plus bas, est valable à tous les ordres. On peut le considérer comme une conséquence du théorème de Majorana, établi classiquement [5], qui implique que les transitions entre les sous-niveaux Zeeman d'un spin J quelconque ne peuvent être résonnantes que pour les champs où elles sont résonnantes dans le cas d'un spin $J = 1/2$, c'est-à-dire avec la polarisation σ de la radiofréquence, pour les champs impairs tels que $\omega_0 = (2p + 1)\omega$. Il en résulte que le croisement pair $\omega_0 = 2\omega$, et plus généralement tous les croisements pairs $\omega_0 = 2p\omega$ doivent rester des croisements de (S) pour un spin J quelconque différent de $1/2$. Le spectre de la figure 6 se trouve ainsi entièrement justifié ⁽²⁾.

⁽²⁾ Remarquons que les grandeurs physiques relatives à l'atome « habillé » par la radiofréquence ne peuvent évoluer qu'aux diverses fréquences de Bohr associées aux niveaux d'énergie des figures 3 à 6. Il existe ainsi une relation étroite entre ces diagrammes et les « diagrammes de fréquence » introduits par Pryce [6] et Series [7] à partir du traitement classique d'un champ de radiofréquence tournant. Mentionnons enfin l'étude par Shirley [8] des diagrammes de fréquence associés à un champ de radiofréquence linéaire.

B. INTERPRÉTATION DES RÉSONANCES EN TERMES DE CROISEMENTS ET D'ANTICROISEMENTS DE (S). — Nous allons maintenant, au moyen des diagrammes d'énergie précédents, donner une nouvelle interprétation synthétique des diverses résonances étudiées précédemment. Il est bien connu que la lumière diffusée par un atome libre présente des variations résonnantes toutes les fois que l'on balaie le champ magnétique au voisinage d'une valeur correspondant à un croisement [9] ou anticroisement [10] de deux sous-niveaux de l'état excité. Les résonances magnétiques étudiées dans [1] ne sont autres que les mêmes phénomènes relatifs à l'atome « habillé ». En d'autres termes, effectuer la résonance magnétique, c'est « habiller » l'atome, c'est-à-dire encore faire apparaître dans l'état excité de ce dernier des croisements et anticroisements de niveaux d'énergie qui n'existaient pas sur l'atome « nu ».

Dans toute cette partie, nous supposons, comme dans [1], que l'excitation optique a une grande largeur spectrale Δ (excitation broad-line) et qu'elle permet donc de préparer l'état excité en un temps $1/\Delta$ très court devant les temps d'évolution caractéristiques $1/\Gamma$ et $1/|\gamma H_1|$. Nous prendrons pour la radiofréquence une polarisation σ .

1. Transitions à un ou plusieurs quanta de radiofréquence. — Nous supposons ici $J = 1/2$. Initialement, le système est dans l'état $|f, n\rangle$. Nous l'excitons en lumière σ_- et nous regardons la probabilité de diffusion d'un photon σ_+ . Plaçons-nous au voisinage d'un

anticroisement de niveaux de l'atome « habillé » $\omega_0 = (2p + 1)\omega$. L'absorption optique porte le système instantanément dans l'état propre de \mathcal{H}_0 : $|a\rangle = |e_-, n\rangle$ (\mathcal{H}_1 commute avec la radiofréquence et ne peut changer n). Cherchons la probabilité $P_{a \rightarrow b}(t)$ pour que (S) soit à l'instant t dans l'état propre non perturbé $|b\rangle = |e_+, n - (2p + 1)\rangle$, c'est-à-dire encore pour que l'atome soit passé de $|e_-\rangle$ à $|e_+\rangle$ en absorbant $2p + 1$ photons de radiofréquence, ce qui se traduit par la diffusion d'un photon optique σ_+ . $P_{a \rightarrow b}(t)$ s'exprime simplement à partir de l'expression (I. A. 9) des états propres perturbés $|\overline{ab}, \pm\rangle$. Loin du point d'anticroisement ($\theta \sim 0$), $|\overline{ab}, +\rangle \simeq |a\rangle$. $|a\rangle$ est alors pratiquement un état stationnaire et $P_{a \rightarrow b}(t)$ est très faible. Au voisinage de l'anticroisement au contraire, (S) est à l'instant $t = 0$ dans une superposition des états propres $|\overline{ab}, +\rangle$ et $|\overline{ab}, -\rangle$ que l'on obtient en inversant (I. A. 9) :

$$|a\rangle = \cos \frac{\theta}{2} |\overline{ab}, +\rangle - \sin \frac{\theta}{2} |\overline{ab}, -\rangle.$$

(S) subit alors une évolution propre importante et $P_{a \rightarrow b}(t)$ prend une valeur notable. De façon plus précise, $|a\rangle$ devient, à l'instant t $|a(t)\rangle$ avec :

$$\begin{aligned} |a(t)\rangle &= e^{-i\mathcal{H}t} |a\rangle \\ &= \cos \frac{\theta}{2} e^{-iE_{\overline{ab}+}t} |\overline{ab}, +\rangle + \sin \frac{\theta}{2} e^{-iE_{\overline{ab}-}t} |\overline{ab}, -\rangle. \end{aligned}$$

La probabilité $P_{a \rightarrow b}(t)$ s'écrivant finalement :

$$P_{a \rightarrow b}(t) = |\langle b | a(t) \rangle|^2 = \sin^2 \theta \sin^2 \left(\frac{E_{\overline{ab}+} - E_{\overline{ab}-}}{2} \right) t. \quad (\text{I. B. 1})$$

La formule (I. B. 1) n'est autre que la formule bien connue de Breit et Rabi. En explicitant $\sin^2 \theta$, en pondérant $P_{a \rightarrow b}(t)$ par la probabilité $\Gamma e^{-\Gamma t} dt$ pour que l'émission du photon diffusé ait lieu entre les instants t et $t + dt$ et en intégrant sur t , on retrouve l'expression (II. C. 6) de [1]. Nous montrons ainsi que la *résonance magnétique ordinaire et les transitions à plusieurs quanta* sont étroitement liées aux *anticroisements* de l'atome « habillé ».

2. *Nouvelles raies de résonance magnétique.* — Supposons maintenant que les polarisations d'excitation et de détection sont *cohérentes*. On voit alors apparaître des variations résonnantes de la lumière diffusée aux différents croisements de niveaux de (S) : $\omega_0 = 2p\omega$ pour un spin $J = 1/2$, $\omega_0 = 2p\omega$ et $\omega_0 = (2p + 1)\frac{\omega}{2}$ pour un spin $J > 1/2$ (cf. fig. 6 pour $J = 1$)⁽³⁾.

(3) En toute rigueur, dès que $J > 1$, il existe d'autres croisements de niveaux, par exemple $\omega_0 = \omega/3$, $2\omega/3$ pour $J \geq 3/2$. On peut cependant montrer que par suite du caractère dipolaire électrique de la transition, aucune résonance n'apparaît en ces points pour une excitation broad-line [11].

Nous avons dans [1] interprété ces résonances en termes d'interférence entre des diagrammes faisant intervenir des transitions optiques et de radiofréquence entre niveaux *non perturbés* de \mathcal{H}_0 . Nous les interprétons ici comme correspondant à l'*effet Francken* [9] de l'atome habillé : cet effet se produit lorsque deux états intermédiaires de diffusion sont possibles; l'amplitude de diffusion est alors une somme de deux termes qui interfèrent de façon résonnante au croisement des deux niveaux intermédiaires en question. Une condition essentielle pour l'observation de cet effet est que les deux chemins de diffusion correspondant aux deux états intermédiaires soient ouverts : pour $\omega_0 = 2\omega$ (spin 1/2), il faut que les deux niveaux perturbés qui se croisent (par exemple $|\overline{a}\rangle = |e_-, n + 2\rangle$ et $|\overline{b}\rangle = |e_+, n\rangle$) puissent être atteints tous les deux par excitation optique à partir du même état fondamental $|f, n\rangle$. Ceci impose des conditions sur la polarisation de la lumière incidente et diffusée qui doit être *cohérente*. La règle de sélection $\Delta n = 0$ à laquelle obéit l'excitation optique interdit d'autre part l'excitation directe du niveau « non perturbé » $|e_-, n + 2\rangle$ à partir du niveau $|f, n\rangle$. Par contre, le niveau perturbé $|\overline{e_-, n + 2}\rangle$ peut être atteint, car dans le développement de perturbation de cet état :

$$|\overline{e_-, n + 2}\rangle = |\overline{a}\rangle = F'(E_{\overline{a}}) |a\rangle$$

figure au 2^e ordre en V l'état $|e_-, n\rangle$ (cf. formule (I. A. 6)). De même, l'émission du photon diffusé doit permettre sur les deux chemins la retombée vers un même état fondamental (par exemple $|f, n\rangle$), ce qui fait intervenir à nouveau une contamination du 2^e ordre du niveau perturbé $|\overline{e_-, n + 2}\rangle$. Finalement, le signal observé est du 4^e ordre en V (de façon générale, il est d'ordre $4p$ pour la résonance $\omega_0 = 2p\omega$)⁽⁴⁾ et il correspond à l'interférence des deux amplitudes de diffusion :

$$A_{\overline{a}}^{\overline{b}} = \langle \overline{fn}' \mathbf{k}' \lambda' | \mathcal{H}_1 | \overline{a} \rangle \frac{1}{E - E_{\overline{a}} + \frac{i\Gamma}{2}} \langle \overline{a} | \mathcal{H}_1 | \overline{fn} \mathbf{k} \lambda \rangle. \quad (\text{I. B. 2})$$

Ces amplitudes sont identiques à l'expression (II. B. 15) de [1] à condition d'y remplacer les éléments de matrice :

$$\langle \overline{fn}' \mathbf{k}' \lambda' | \mathcal{H}_1 | \overline{a} \rangle = \langle \overline{fn}' \mathbf{k}' \lambda' | \mathcal{H}_1 | F'(E_{\overline{a}}) | \overline{a} \rangle$$

(4) Nous raisonnons ici dans le cas d'une polarisation σ de la radiofréquence. Dans le cas d'un champ tournant σ_+ , nous avons vu (cf. [1]) qu'en dehors de la résonance $\omega_0 = 0$, le seul croisement observable est le croisement $\omega_0 = 2\omega$. Pour tous les autres croisements $\omega_0 = k\omega$ ($k > 2$), il est en effet impossible d'atteindre les deux niveaux qui se croisent à partir du même niveau $|f, n\rangle$: ceci est dû au fait que chaque niveau n'est alors contaminé que par un seul autre niveau, correspondant à l'absorption ou à l'émission d'un seul photon de radiofréquence.

par $\langle fn' \mathbf{k}' \lambda' | \mathcal{H}'_1 \bar{F}' | \frac{a}{b} \rangle$ qui décrivent la contamination des fonctions propres permettant d'atteindre les niveaux résonnants à l'ordre le plus bas.

3. *Modulation des signaux optiques.* — Il est bien connu en pompage optique que la lumière diffusée par un atome libre possédant de la « cohérence hertzienne » dans l'état fondamental peut être modulée à la fréquence d'oscillation $\omega/2\pi$ de cette cohérence [12]. Cette modulation de la lumière de fluorescence aux fréquences de l'état fondamental provient d'un transfert de cohérence de l'état fondamental à l'état excité et est d'autant plus importante que les séparations énergétiques dans l'état excité sont plus voisines de ω .

Revenons maintenant à l'atome « habillé » dont nous n'avons étudié jusqu'à présent les niveaux d'énergie que dans l'état excité. Dans l'état fondamental, les niveaux sont les états $|f, n\rangle$. Donc, même si l'atome « nu » est diamagnétique 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 $|f, n\rangle$ et l'atome « habillé » possède de la « cohérence hertzienne » dans son état fondamental, oscillant aux fréquences $q\omega/2\pi$ (q entier). Il découle alors de ce qui a été dit plus haut que la lumière diffusée peut être modulée aux fréquences $q\omega/2\pi$. Nous réinterprétons ainsi de façon différente les modulations étudiées dans l'appendice 4 de [1]. Si nous nous reportons à la figure 3, nous voyons qu'il est possible d'isoler toute une série de couples de niveaux dont la distance varie en fonction du champ et qui passent à une distance $q\omega$ l'un de l'autre pour les valeurs de ω_0 correspondant aux divers croisements et anticroisements (par exemple, les deux niveaux $|e_+, n\rangle$ et $|e_-, n\rangle$ passent à la distance 2ω l'un de l'autre dans le champ $\omega_0 = 2\omega$, ce qui explique l'apparition d'un signal modulé à 2ω résonnant dans ce champ). On conçoit ainsi que les diverses modulations puissent être résonnantes pour les valeurs de ω_0 qui correspondent aux résonances statiques étudiées au paragraphe précédent. Nous ne développerons pas le calcul quantitatif de ces modulations qui conduit aux mêmes résultats que ceux obtenus dans la référence [11] ⁽⁵⁾.

II. Le moment magnétique de l'atome « habillé ».

— L'étude des niveaux d'énergie de (S) que nous

⁽⁵⁾ Notons à nouveau l'analogie de ce point de vue avec celui des diagrammes de fréquence utilisés par Series *et al.* [7] pour étudier les modulations de la lumière de fluorescence dans une expérience de double résonance. Insistons cependant sur le fait que ces auteurs ont introduit leurs diagrammes de fréquence par un traitement classique de la radiofréquence et uniquement pour un champ tournant σ_+ , ce qui limite considérablement le nombre des résonances et des fréquences de modulation observables (cf. note ⁽⁴⁾).

avons faite au paragraphe précédent n'est valable que dans le cadre de la théorie des perturbations :

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

et nous ne savons pour l'instant rien du comportement des niveaux d'énergie lorsque le nombre n de photons (ou encore l'intensité de la radiofréquence) devient très grand. En particulier, le développement diagrammatique utilisé dans [1], n'est alors plus valable car il diverge. Nous allons montrer cependant que le point de vue adopté ici s'applique toujours et qu'il permet en particulier d'étudier les niveaux d'énergie de l'atome « habillé » en champ magnétique H_0 faible pour des intensités quelconques de la radiofréquence. La pente de ces niveaux en fonction de H_0 nous donnera le facteur de Landé, c'est-à-dire encore le « moment magnétique » de l'atome « habillé ».

Nous supposons dans toute la suite que les photons de radiofréquence ont une polarisation linéaire σ .

A. NIVEAUX D'ÉNERGIE DE (S) EN CHAMP FAIBLE. — Si le champ magnétique H_0 est suffisamment petit :

$$\omega_0 \ll \omega$$

nous sommes amenés à considérer l'opérateur :

$$\mathcal{H}'_0 = \omega a^\dagger a + V = \omega a^\dagger a + \lambda J_x (a + a^\dagger) \quad (\text{II. A. 1})$$

comme hamiltonien *non perturbé* de notre problème et à traiter l'interaction Zeeman $\omega_0 J_z$ comme une *perturbation*.

1. *Diagonalisation de \mathcal{H}'_0 .* — Elle a été traitée en détail par ailleurs [4] pour un spin $J = 1/2$. Nous la reprenons rapidement ici dans le cas d'un spin J quelconque. L'hamiltonien \mathcal{H}'_0 commute avec J_x ; il en résulte qu'on peut le décomposer en $(2J + 1)$ hamiltoniens \mathcal{H}'_{om} ($-J \leq m \leq J$) agissant chacun à l'intérieur d'un sous-espace propre $|e_m, n\rangle_x$ de m donné. ($|e_m\rangle_x$ est l'état propre de J_x de valeur propre m et l'on pose $|e_m\rangle_x |n\rangle = |e_m, n\rangle_x$). On peut écrire :

$$\begin{aligned} \mathcal{H}'_{om} &= \omega a^\dagger a + \lambda m (a + a^\dagger) \\ &= \omega \left(a^\dagger + \frac{\lambda m}{\omega} \right) \left(a + \frac{\lambda m}{\omega} \right) - \frac{m^2 \lambda^2}{\omega}. \end{aligned} \quad (\text{II. A. 2})$$

Introduisons l'opérateur unitaire de Glauber [13] :

$$D \left(\frac{\lambda m}{\omega} \right) = e^{-\frac{\lambda m}{\omega} (a^\dagger - a)}. \quad (\text{II. A. 3})$$

Il vient :

$$\mathcal{H}'_{om} = D \left(\frac{\lambda m}{\omega} \right) \left[\omega a^\dagger a - \frac{m^2 \lambda^2}{\omega} \right] D^\dagger \left(\frac{\lambda m}{\omega} \right). \quad (\text{II. A. 4})$$

On en déduit immédiatement le spectre de \mathcal{H}'_{om} :

$$E_{(m, n)_x} = n\omega - \frac{m^2 \lambda^2}{\omega} \quad (\text{II. A. 5})$$

et ses états propres :

$$\begin{aligned} |e_m, n\rangle_x &= e^{-\frac{\lambda m}{\omega} (a^\dagger - a)} |e_m, n\rangle_x \\ &= e^{-\frac{\lambda J_x}{\omega} (a^\dagger - a)} |e_m, n\rangle_x. \end{aligned} \quad (\text{II. A. 6})$$

Si on néglige ⁽⁶⁾ le terme $-\frac{m^2\lambda^2}{\omega}$, les $2J + 1$ niveaux $|\overline{e_m}, n\rangle_x$ sont dégénérés, d'énergie $n\omega$.

2. *Diagonalisation de \mathcal{H}* . — Étudions maintenant l'effet de la perturbation $\omega_0 J_z$ dans la multiplicité des $(2J + 1)$ niveaux dégénérés : à l'ordre zéro, il faut diagonaliser la perturbation à l'intérieur de la multiplicité. Les éléments de matrice s'écrivent :

$$\begin{aligned} & \omega_{0x} \langle \overline{e_m}, n | J_z | \overline{e_{m'}}, n \rangle_x \\ &= \omega_{0x} \langle e_m | J_z | e_{m'} \rangle_x \langle n | e^{(m-m')\frac{\lambda}{\omega}(a^\dagger - a)} | n \rangle. \end{aligned} \quad (\text{II.A.7})$$

L'élément de matrice de J_z au second membre de (II.A.7) impose la condition $m - m' = \pm 1$. Il apparaît alors en facteur l'élément de matrice $\langle n | e^{\pm \lambda/\omega(a^\dagger - a)} | n \rangle$ qui, pour des valeurs suffisamment grandes de n , est égal à $J_0\left(\frac{\omega_1}{\omega}\right)$ [J_0 fonction de Bessel ordinaire d'ordre zéro]; on a donc finalement :

$$\omega_{0x} \langle \overline{e_m}, n | J_z | \overline{e_{m'}}, n \rangle_x = \omega_0 J_0\left(\frac{\omega_1}{\omega}\right) \langle e_m | J_z | e_{m'} \rangle_x \quad (\text{II.A.8})$$

et la diagonalisation de \mathcal{H} se ramène alors à celle de J_z dans la base $|e_m\rangle_x$ des états propres de J_x : la perturbation $\omega_0 J_z$ lève la dégénérescence, chacun des $2J + 1$ niveaux dégénérés étant déplacé de la quantité $m\omega_0 J_0\left(\frac{\omega_1}{\omega}\right)$ ($-J \leq m \leq J$). Quant aux vecteurs propres de \mathcal{H} , que nous noterons $|\overline{e_m}, n\rangle$, ils s'obtiennent à partir des $|e_m, n\rangle_x$ par une transformation \mathcal{R} identique à celle qui permet d'obtenir les états propres $|e_m\rangle$ de J_z à partir des $|e_m\rangle_x$:

$$\begin{aligned} |\overline{e_m}, n\rangle &= \sum_{m'} \mathcal{R}_{mm'} |\overline{e_{m'}}, n\rangle_x \\ &= \sum_{m'} \mathcal{R}_{mm'} e^{-\frac{\lambda J_x}{\omega}(a^\dagger - a)} |e_{m'}, n\rangle_x \\ &= e^{-\frac{\lambda J_x}{\omega}(a^\dagger - a)} \sum_{m'} \mathcal{R}_{mm'} |e_{m'}, n\rangle_x \\ &= e^{-\frac{\lambda J_x}{\omega}(a^\dagger - a)} |e_m, n\rangle. \end{aligned} \quad (\text{II.A.9})$$

B. FACTEUR DE LANDÉ DES NIVEAUX D'ÉNERGIE DE L'ATOME « HABILLÉ ». — Les énergies propres de \mathcal{H} s'écrivent donc au voisinage du champ nul :

$$E_{\overline{m}} = n\omega + m\omega_0 J_0\left(\frac{\omega_1}{\omega}\right). \quad (\text{II.B.1})$$

⁽⁶⁾ Cela est totalement justifié : d'après la relation (I.A.4) de la référence [1], on a en effet

$$\frac{m^2\lambda^2}{\omega} = \frac{m^2(\gamma H_1)^2}{4\omega} \frac{1}{n}$$

ce qui est une quantité inobservable étant donné le très grand nombre n de photons dans le champ de radiofréquence.

Les niveaux d'énergie varient linéairement en fonction de H_0 . Leur pente définit donc un « facteur de Landé » de l'atome « habillé » dont la valeur dépend de ω_1/ω , donc du nombre n de photons de radiofréquence. Nous appellerons $g^{(S)}(n)$ ce facteur de Landé qui est égal à celui de l'atome libre g_0 multiplié par $J_0(\omega_1/\omega)$:

$$g^{(S)}(n) = g_0 J_0(\omega_1/\omega). \quad (\text{II.B.2})$$

La courbe de la figure 8 représente les variations de $g^{(S)}$ en fonction de l'argument $\omega_1/\omega = \frac{2\lambda\sqrt{n}}{\omega}$.

Lorsqu'on augmente ω_1/ω (donc n) à partir de la

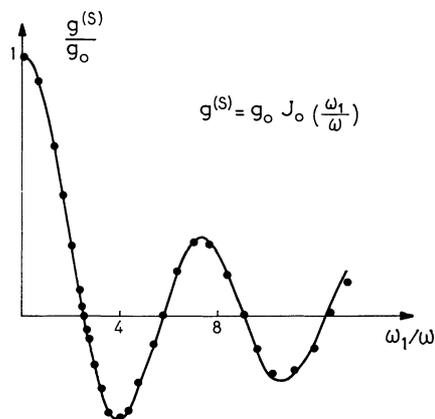


FIG. 8.

valeur zéro, le facteur de Landé $g^{(S)}(n)$ décroît à partir de la valeur g_0 de l'atome « nu » : les pentes des niveaux d'énergie correspondants diminuent. Pour la valeur de ω_1/ω correspondant au premier zéro de J_0 , le facteur de Landé s'annule : il y a coalescence des niveaux d'énergie en champ faible. Si on augmente encore ω_1/ω , le facteur de Landé s'inverse, la pente des niveaux augmente en valeur absolue et passe par un minimum, etc. Lorsqu'on explore des niveaux correspondant à des nombres de photons de radiofréquence croissants, on observe ainsi une modification continue du facteur de Landé qui subit une *annulation* et une *inversion* pour chaque zéro de la fonction de Bessel J_0 .

Remarquons que le facteur de Landé $g^{(S)}$ n'est pas une quantité isotrope. Nous ne l'avons en effet défini que pour des champs magnétiques H_0 perpendiculaires au champ de radiofréquence linéaire qui « habille » le système atomique. Dans le cas où H_0 est parallèle au champ de radiofréquence, on montre au contraire que le facteur de Landé n'est pas altéré et reste égal à celui de l'atome « nu » (cf. niveaux d'énergie de la figure 5).

Il nous reste, pour finir, à relier les deux domaines de perturbation (ω_1 petit d'une part et ω_0 petit d'autre part) que nous venons d'étudier séparément. Dans ce but, isolons sur le diagramme des niveaux de la

figure 3 un « fuseau » A de deux niveaux d'énergie correspondant à un nombre n de photons donné. Nous représenterons sur la figure 9 le niveau qui part du champ nul avec une pente positive en trait plein, et

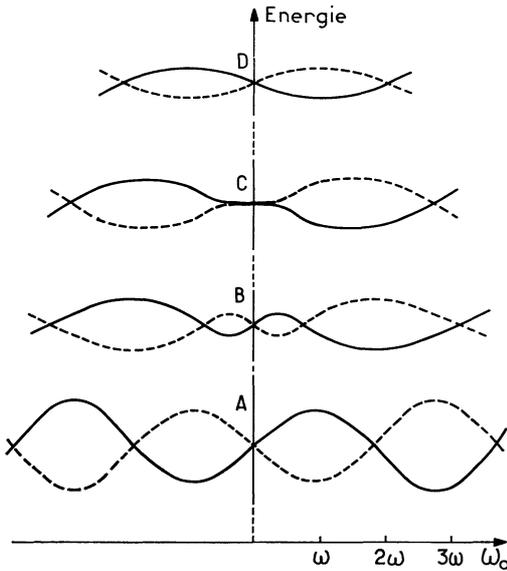


FIG. 9.

en pointillé celui qui en part avec une pente négative. Le « fuseau », symétrique par rapport au champ statique nul, comporte une série de « nœuds » aux croisements pairs $\omega_0 = 2p\omega$ et une série de « ventres » aux croisements impairs $\omega_0 = (2p + 1)\omega$. Envisageons maintenant un autre fuseau B correspondant à un nombre n' de photons plus important (cf. fig. 9). Les croisements de niveaux se déplacent vers le champ nul lorsque n augmente et il en résulte que les « nœuds » de B sont plus proches du champ nul que ceux de A. D'autre part, la distance des deux branches d'un anticroisement est également une fonction croissante de n et les « ventres » du fuseau B sont donc plus « aplatis » que ceux de A. En considérant ainsi des nombres de photons de plus en plus élevés, on finit par sortir du cadre du traitement de perturbation du § I, mais on conçoit que les fuseaux se déforment de façon continue, leurs nœuds se rapprochant du champ $H_0 = 0$, tandis que la pente des deux niveaux en champ nul diminue, jusqu'à prendre une forme C pour laquelle les deux croisements symétriques par rapport au champ nul, initialement en $\omega_0 = \pm 2\omega$, sont venus se rejoindre en $H_0 = 0$, les deux niveaux (en pointillé et en traits pleins) du fuseau sont alors tangents en trois points et partent du champ zéro avec une pente nulle. Cette description se trouve justifiée par l'étude précédente qui montre qu'au voisinage de $H_0 = 0$ les niveaux se comportent bien de cette façon : la première annulation du facteur de Landé $g^{(S)}$ correspond à l'arrivée en champ nul des deux croisements $\omega_0 = \pm 2\omega$. Si on augmente encore n , le niveau en

pointillé passe au-dessus du niveau en trait plein (fuseau D) et le facteur de Landé change de signe. Ce sont alors les croisements $\omega_0 = \pm 4\omega$ qui continuent à s'approcher du champ nul jusqu'à s'y confondre pour la deuxième annulation de $g^{(S)}$ correspondant au deuxième zéro de J_0 , etc., l'arrivée en champ nul des croisements $\omega_0 = \pm 2p\omega$ correspondant à la $p^{\text{ième}}$ annulation du facteur de Landé.

La modification du facteur de Landé de l'atome en présence de radiofréquence entraîne une modification corollaire de toutes les propriétés physiques liées au paramagnétisme du niveau atomique étudié. Cependant, l'effet de la radiofréquence n'est pas seulement de modifier les niveaux d'énergie de l'atome, donc son facteur de Landé; il y a également une modification profonde des fonctions propres du système (S) (cf. relation (II.A.9)). La modification des propriétés magnétiques du niveau atomique sous l'effet de la radiofréquence sera ainsi due aussi bien à l'altération du facteur de Landé qu'à la contamination des fonctions propres de l'atome « habillé ».

Nous allons voir comment les propriétés magnétiques de l'atome « habillé » en champ faible se reflètent sur son spectre d'absorption optique et sur ses propriétés de diffusion (dépolariation magnétique).

III. Absorption de photons optiques par l'atome « habillé ». — Nous supposons que le niveau de résonance a un spin $J = 1$.

Le spectre d'absorption de l'atome « nu » dans un champ H_0 est décomposé en trois raies dont l'écartement est égal à la fréquence de Larmor ω_0 et la polarisation respectivement σ_+ , π et σ_- par rapport à la direction Oz de H_0 : c'est le triplet Zeeman normal (cf. fig. 10 a).

En présence d'un champ de radiofréquence σ , nous avons vu que la pente des sous-niveaux Zeeman au voisinage du champ nul se trouve modifiée : on doit donc s'attendre à une modification de la séparation

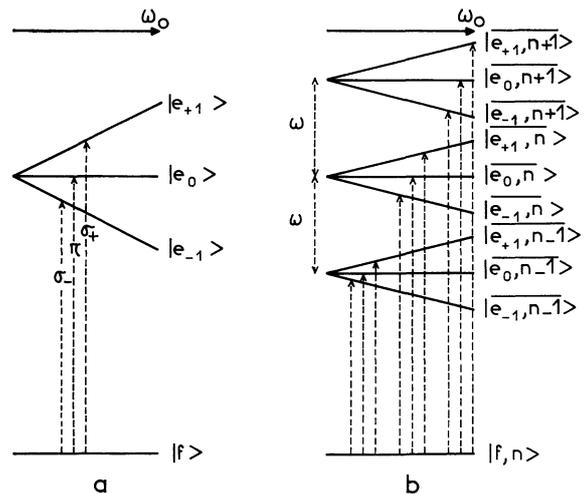


FIG. 10.

des raies du triplet. D'autre part, l'opérateur dipolaire électrique peut posséder un élément de matrice non nul entre l'état $|f, n\rangle$ et un niveau « contaminé » $|\overline{e_{m_1}, n_1}\rangle$ correspondant à un nombre n_1 de photons différent de n ; il va alors apparaître dans le spectre d'absorption une « bande » latérale déplacée de la quantité $(n_1 - n)\omega$ par rapport à la fréquence centrale de l'atome « nu ». Chacune des bandes latérales présente elle-même une structure Zeeman (cf. fig. 10 b).

En général, dans un champ magnétique H_0 quelconque, le spectre d'absorption de l'atome « habillé » sera constitué de raies correspondant aux différentes énergies propres du système « atome + photons de radiofréquence » dans ce champ.

Pour déterminer le spectre d'absorption (position, intensité et polarisation des différentes raies), il nous faut commencer par calculer les éléments de matrice de l'opérateur dipolaire électrique \mathcal{H}_I entre les états propres de l'atome « habillé ».

A. LES ÉLÉMENTS DE MATRICE DE \mathcal{H}_I (en champ faible). — On a, d'après (II.A.9) :

$$\begin{aligned} \langle \overline{e_{m_1}, n_1} | \mathcal{H}_I | f n k \lambda \rangle &= \langle e_{m_1}, n_1 | e^{+\frac{\lambda J_x}{\omega} (a^\dagger - a)} \mathcal{H}_I | f n k \lambda \rangle \\ &= \langle e_{m_1}, n_1 | e^{+\frac{\lambda J_x}{\omega} (a^\dagger - a)} \mathcal{H}_I e^{-\frac{\lambda J_x}{\omega} (a^\dagger - a)} | f n k \lambda \rangle \end{aligned} \quad (\text{III.A.1})$$

(on peut en effet, sans rien changer au résultat, introduire l'opérateur $e^{-\frac{\lambda J_x}{\omega} (a^\dagger - a)}$ à la droite de \mathcal{H}_I car l'état $|f n k \lambda\rangle$ sur lequel il agit est diamagnétique et son action se réduit à celle de l'opérateur unité). Nous ramenons ainsi le calcul des éléments de matrice de \mathcal{H}_I entre états propres de \mathcal{H} au calcul des éléments de matrice de l'opérateur « renormalisé » :

$$\overline{\mathcal{H}_I} = e^{\frac{\lambda J_x}{\omega} (a^\dagger - a)} \mathcal{H}_I e^{-\frac{\lambda J_x}{\omega} (a^\dagger - a)}$$

entre états propres *non perturbés* de \mathcal{H}_0 .

Afin d'effectuer simplement ce calcul, nous allons commencer par séparer les parties radiales et angulaires des éléments de matrice dipolaire électrique sous la forme [12] :

$$\begin{aligned} \langle e_m | \mathcal{H}_I | f k \lambda \rangle &= A_k \langle e_m | \mathbf{e}_\lambda \cdot \mathbf{D} | f \rangle \\ \langle e_m | \mathcal{H}_I | f k' \lambda' \rangle &= A_{k'} \langle e_m | \mathbf{e}_{\lambda'} \cdot \mathbf{D} | f \rangle \end{aligned} \quad (\text{III.A.2})$$

et nous développerons les vecteurs polarisations \mathbf{e}_λ et $\mathbf{e}_{\lambda'}$ sur la base $\mathbf{e}_\pm^{(x)}$, $\mathbf{e}_0^{(x)}$ des polarisations σ_+ , σ_- et π par rapport à Ox :

$$\begin{aligned} \mathbf{e}_\lambda &= \sum_q \varepsilon_q \mathbf{e}_q^{(x)} \\ \mathbf{e}_{\lambda'} &= \sum_{q'} \varepsilon_{q'}' \mathbf{e}_{q'}^{(x)} \end{aligned} \quad (\text{III.A.3})$$

ce qui permet d'écrire :

$$\mathbf{e}_\lambda \cdot \mathbf{D} = \sum_q \varepsilon_q D_q^{(x)}; \quad \mathbf{e}_{\lambda'} \cdot \mathbf{D} = \sum_{q'} \varepsilon_{q'}' D_{q'}^{(x)} \quad (\text{III.A.4})$$

$D_q^{(x)}$ représentant les composantes standard rapportées à la direction Ox de l'opérateur dipolaire électrique :

$$\begin{aligned} D_\pm^{(x)} &= \mp \frac{1}{\sqrt{2}} [D_y \pm i D_z] \\ D_0^{(x)} &= D_x. \end{aligned} \quad (\text{III.A.5})$$

Nous obtenons alors immédiatement comme conséquence des relations de commutation des opérateurs tensoriels irréductibles :

$$e^{\frac{\lambda J_x}{\omega} (a^\dagger - a)} D_q^{(x)} e^{-\frac{\lambda J_x}{\omega} (a^\dagger - a)} = e^{\frac{q\lambda}{\omega} (a^\dagger - a)} D_q^{(x)} \quad (\text{III.A.6})$$

ce qui permet de séparer dans les éléments de matrice « renormalisés » les variables de radiofréquence et les variables atomiques et d'écrire, compte tenu de (III.A.1) :

$$\begin{aligned} \langle \overline{e_{m_1}, n_1} | \mathcal{H}_I | f n k \lambda \rangle \\ = A_k \sum_q \varepsilon_q \langle n_1 | e^{\frac{q\lambda}{\omega} (a^\dagger - a)} | n \rangle \langle e_{m_1} | D_q^{(x)} | f \rangle. \end{aligned} \quad (\text{III.A.7})$$

En utilisant la relation établie par ailleurs [4] et valable dès que $n_1 - n$ est grand en valeur absolue :

$$\langle n_1 | e^{\frac{q\lambda}{\omega} (a^\dagger - a)} | n \rangle = J_{n_1 - n} \left(\frac{q\omega_1}{\omega} \right) \quad (\text{III.A.8})$$

($J_{n_1 - n}$ est la fonction de Bessel ordinaire d'ordre $n_1 - n$), il vient :

$$\begin{aligned} \langle \overline{e_{m_1}, n_1} | \mathcal{H}_I | f n k \lambda \rangle \\ = A_k \sum_q \varepsilon_q J_{n_1 - n} \left(\frac{q\omega_1}{\omega} \right) \langle e_{m_1} | D_q^{(x)} | f \rangle. \end{aligned} \quad (\text{III.A.9})$$

B. LE SPECTRE D'ABSORPTION DE L'ATOME « HABILLÉ ». — Plaçons-nous dans des conditions d'excitation « narrow-line » (largeur Δ de la raie excitatrice faible devant Γ et ω). Le spectre d'absorption comporte une série de raies dont les fréquences correspondent aux différents niveaux d'énergie de l'atome « habillé » et dont les intensités sont proportionnelles aux carrés des éléments de matrice calculés plus haut. Ces raies, de forme lorentzienne, de largeur Γ , se répartissent sur une bande centrale ($n_1 = n$) et sur des bandes latérales ($n_1 \neq n$), chaque bande étant constituée de raies séparées de l'écart Zeeman $\omega_0 J_0(\omega_1/\omega)$.

Le signal d'absorption $\mathcal{S}_{k\lambda}$ à la fréquence E_k s'écrit :

$$\begin{aligned} \mathcal{S}_{k\lambda} &= Cte \\ &\times \sum_{m_1 n_1} \frac{|\langle \overline{e_{m_1}, n_1} | \mathcal{H}_I | f n k \lambda \rangle|^2}{\left[E_k - E_0 + (n - n_1)\omega - m_1 \omega_0 J_0 \left(\frac{\omega_1}{\omega} \right) \right]^2 + \frac{\Gamma^2}{4}} \end{aligned} \quad (\text{III.B.1})$$

Ce résultat évident peut être également obtenu en calculant la section efficace totale de diffusion obtenue par sommation sur tous les états finaux de la section efficace différentielle (formule (II.C.2) de la référence [1] dans laquelle on remplace $u(E_k)$ par la

fonction $\delta(E_k)$. Remarquons que nous avons admis implicitement que les niveaux $|e_{m_1}, n_1\rangle$ de l'atome « habillé » ont la même largeur naturelle Γ que ceux de l'atome « nu ». Nous justifierons plus loin ce point.

Nous allons préciser maintenant la structure du spectre d'absorption pour diverses polarisations simples \mathbf{e}_λ du rayonnement incident : il suffit pour cela de calculer les éléments de matrice de \mathcal{H}_I à l'aide de (III.A.9).

1. Polarisation σ parallèle à Ox. — Nous avons alors $\mathbf{e}_\lambda = \mathbf{e}_x$ et $\varepsilon_q = \delta_{q,0}$, (III.A.9) s'écrit :

$$\begin{aligned} \langle \overline{e_{m_1}, n_1} | \mathcal{H}_I | f n \mathbf{k} \lambda \rangle &= A_k J_{n_1-n}(0) \langle e_{m_1} | D_0^{(x)} | f \rangle \\ &= A_k \delta_{n, n_1} \langle e_{m_1} | D_0^{(x)} | f \rangle \end{aligned} \quad \text{(III.B.2)}$$

(car $J_{n_1-n}(0) = 0$ si $n_1 \neq n$).

Dans ce cas particulièrement simple, l'opérateur « renormalisé » \mathcal{H}_I a les mêmes éléments de matrice que \mathcal{H}_I : il n'y a pas de bandes latérales ($n_1 = n$) et les intensités des raies d'absorption de l'atome « habillé » sont les mêmes que celles de l'atome « nu » : le spectre se compose de deux raies d'intensités égales, indépendantes de l'intensité de la radiofréquence, et déplacées par rapport à la fréquence centrale E_0 des quantités $\pm \omega_0 J_0\left(\frac{\omega_1}{\omega}\right)$ (voir fig. 11).

Tout se passe ici comme si l'effet du champ de

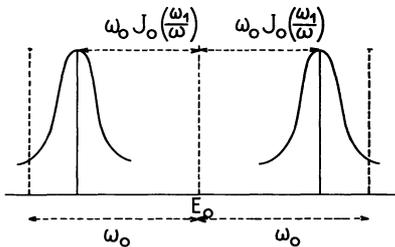


FIG. 11.

radiofréquence a été simplement de modifier le facteur de Landé de l'atome. En particulier, pour toutes les valeurs de ω_1 correspondant aux zéros de J_0 , l'effet Zeeman est supprimé et les deux raies d'absorption se trouvent confondues à la fréquence E_0 .

2. Polarisation σ^+ , σ^- et π par rapport à Oz. — Appelons $\mathbf{e}_q^{(z)}$ ($q = \pm 1, 0$) les vecteurs polarisations correspondant respectivement aux polarisations σ_\pm et π par rapport à Oz. Afin de déterminer les éléments de matrice de \mathcal{H}_I , il nous faut connaître les coefficients du développement des $\mathbf{e}_q^{(z)}$ sur les $\mathbf{e}_q^{(x)}$ et les éléments de matrice $\langle e_{m_1} | D_q^{(x)} | f \rangle$.

Nous avons :

$$\begin{aligned} \mathbf{e}_\pm^{(z)} &= \mp \frac{1}{\sqrt{2}} (\mathbf{e}_x \pm i \mathbf{e}_y) = \frac{i}{2} \mathbf{e}_+^{(x)} \mp \frac{\sqrt{2}}{2} \mathbf{e}_0^{(x)} - \frac{i}{2} \mathbf{e}_-^{(x)} \\ \mathbf{e}_0^{(z)} &= \mathbf{e}_z = i \frac{\sqrt{2}}{2} [\mathbf{e}_+^{(x)} + \mathbf{e}_-^{(x)}] \end{aligned} \quad \text{(III.B.3)}$$

et :

$$\begin{aligned} \langle e_{\pm 1} | D_+^{(x)} | f \rangle &= - \langle e_{\pm 1} | D_-^{(x)} | f \rangle = - \frac{i}{2} \\ \langle e_0 | D_+^{(x)} | f \rangle &= \langle e_0 | D_-^{(x)} | f \rangle = i \frac{\sqrt{2}}{2} \\ \langle e_0 | D_0^{(x)} | f \rangle &= 0 \\ \langle e_{+1} | D_0^{(x)} | f \rangle &= - \langle e_{-1} | D_0^{(x)} | f \rangle = - \frac{\sqrt{2}}{2} \end{aligned} \quad \text{(III.B.4)}$$

On déduit alors aisément à l'aide de (II.A.9), (III.B.3) et (III.B.4) et en remarquant que l'on a :

$$J_{n_1-n}(0) = \delta_{n, n_1}$$

et :

$$\begin{aligned} J_{n_1-n}\left(\frac{\omega_1}{\omega}\right) &= (-1)^{n_1-n} J_{n_1-n}\left(-\frac{\omega_1}{\omega}\right) \\ \langle \overline{e_{+1}, n_1} | \mathbf{e}_\pm^{(z)} \mathbf{D} | f n \rangle &= \frac{1}{4} [1 + (-1)^{n_1-n}] J_{n_1-n}\left(\frac{\omega_1}{\omega}\right) \pm \frac{1}{2} \delta_{nn} \\ \langle \overline{e_{-1}, n_1} | \mathbf{e}_\pm^{(z)} \mathbf{D} | f n \rangle &= \frac{1}{4} [1 + (-1)^{n_1-n}] J_{n_1-n}\left(\frac{\omega_1}{\omega}\right) \mp \frac{1}{2} \delta_{nn} \\ \langle \overline{e_0, n_1} | \mathbf{e}_\pm^{(z)} \mathbf{D} | f n \rangle &= - \frac{\sqrt{2}}{4} [1 - (-1)^{n_1-n}] J_{n_1-n}\left(\frac{\omega_1}{\omega}\right) \end{aligned} \quad \text{(III.B.5)}$$

et :

$$\begin{aligned} \langle \overline{e_{\pm 1}, n_1} | \mathbf{e}_0^{(z)} \mathbf{D} | f n \rangle &= \frac{\sqrt{2}}{4} [1 - (-1)^{n_1-n}] J_{n_1-n}\left(\frac{\omega_1}{\omega}\right) \\ \langle \overline{e_0, n_1} | \mathbf{e}_0^{(z)} \mathbf{D} | f n \rangle &= - \frac{1}{2} [1 + (-1)^{n_1-n}] J_{n_1-n}\left(\frac{\omega_1}{\omega}\right). \end{aligned} \quad \text{(III.B.6)}$$

En élevant au carré ces éléments de matrice, on détermine l'intensité des raies sur les bandes centrales et latérales, ce que nous avons résumé dans le tableau de la figure 12 en distinguant la bande centrale ($n_1 - n = 0$), les bandes latérales « paires » telles que $(n_1 - n) \omega = 2k\omega$ ($k \geq 0$) et les bandes latérales « impaires » telles que :

$$(n_1 - n) \omega = (2k + 1) \omega \quad (k \geq 0).$$

Nous représentons chaque raie par un trait plein vertical et nous rappelons, pour chaque polarisation, en pointillé, la raie d'absorption en absence de radiofréquence. L'intensité des raies et leur écartement dépendent du rapport ω_1/ω qui figure en argument de toutes les fonctions de Bessel présentes dans le tableau. Nous n'avons pas pu représenter « à l'échelle » les intensités relatives des différentes raies et les hauteurs des traits verticaux sont simplement indicatives.

Nous vérifions aisément que si le champ de radio-

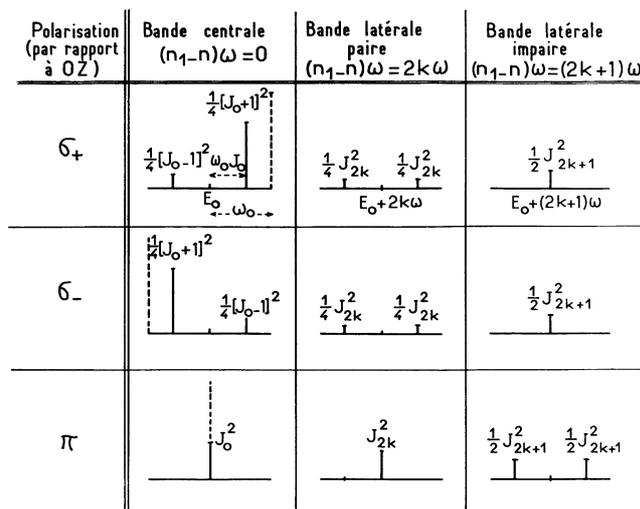


FIG. 12.

fréquence est nul ($\omega_1/\omega = 0$) les bandes latérales disparaissent et on retrouve sur les trois polarisations les spectres d'absorption bien connus de l'atome « nu ».

Nous constatons également qu'en polarisation circulaire σ_{\pm} , il apparaît les raies $\Delta m = \pm 1$ sur la bande centrale et les bandes latérales paires, la raie $\Delta m = 0$ sur les bandes latérales impaires, ces conclusions étant inversées pour la polarisation linéaire π . Ce résultat est une conséquence de la conservation du moment cinétique global du système (S) + champ optique : en effet, l'absorption optique résonnante sur une bande centrale ou latérale paire peut être décrite comme un processus d'absorption d'un photon optique d'énergie $E_k = E_0 - 2k\omega$, suivi d'un nombre pair de processus d'absorption ou d'émission de photons de radiofréquence, de polarisation σ . Si le photon optique a une polarisation circulaire, le moment cinétique de l'atome subit donc un changement Δm impair qui ne peut être que $\Delta m = \pm 1$. 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 cinétique transféré à l'atome par le photon optique de polarisation circulaire et les photons de radiofréquence est nécessairement pair, ce qui impose à la transition d'être $\Delta m = 0$. Toutes ces conclusions sont inversées pour une polarisation optique π .

Les effets précédents sont difficiles à observer sur une transition optique, même si l'on dispose d'une source monochromatique à cause du mouvement des atomes (effet Doppler). Nous espérons par contre pouvoir les observer sur les transitions hyperfines de l'état fondamental d'atomes alcalins, l'hyperfréquence jouant le rôle de l'onde optique monochromatique et l'effet Doppler étant négligeable dans ce cas.

Remarque. — L'étude du spectre d'absorption de l'atome « habillé » au voisinage d'un anticroisement

est également très intéressante et permet de retrouver très simplement l'effet *Autler-Townes* [2].

Revenons, pour simplifier, au cas d'un spin $J = 1/2$ en couplage faible (γH_1 petit). Supposons l'excitation optique polarisée en σ_+ de sorte que $|fnk\sigma_+\rangle$ n'est couplé par \mathcal{H}_I qu'au seul niveau « non perturbé » $|a\rangle = |e_+, n\rangle$: en absence de radiofréquence, le spectre d'absorption est constitué par une seule raie.

La radiofréquence couple notamment $|a\rangle$ au niveau $|b\rangle = |e_-, n+1\rangle$ et au voisinage de l'anticroisement $\omega_0 = \omega$, les états propres de l'atome « habillé » $|\overline{ab}_+\rangle$ et $|\overline{ab}_-\rangle$ sont constitués par un mélange des niveaux $|a\rangle$ et $|b\rangle$ donné par (I.A.9). \mathcal{H}_I possède alors deux éléments de matrice reliant $|fnk\sigma_+\rangle$ respectivement à $|\overline{ab}_+\rangle$ et à $|\overline{ab}_-\rangle$, car chacun de ces deux niveaux contient le niveau $|a\rangle$: on voit apparaître dans le spectre d'absorption deux raies dont les fréquences correspondent aux énergies des deux niveaux $|\overline{ab}_+\rangle$ et $|\overline{ab}_-\rangle$ qui s'anticroisent. L'écartement de ces raies est minimum et proportionnel à γH_1 au point d'anticroisement. Les intensités des raies sont proportionnelles à $\sin^2 \frac{\theta}{2}$ et $\cos^2 \frac{\theta}{2}$, θ étant défini par (I.A.9). Elles sont notamment égales au point d'anticroisement et leur somme est constante lorsqu'on varie l'intensité de la radiofréquence ou lorsqu'on balaie le champ H_0 . Une transition spectrale est donc dédoublée lorsqu'on effectue la résonance magnétique entre l'un des deux niveaux de la transition et un troisième. Ceci n'est autre que l'effet Autler-Townes. Le point de vue présenté ici a l'avantage de donner une interprétation énergétique simple de cet effet et d'en permettre aisément le calcul, non seulement dans le cas de la résonance magnétique ordinaire (anticroisement $\omega_0 = \omega$), mais aussi dans le cas de transitions à plusieurs quanta ($\omega_0 = (2p+1)\omega$) pour lesquelles on doit observer un dédoublement analogue, la séparation des raies étant alors d'ordre $(\gamma H_1)^{2p+1}$.

C. ABSORPTION D'UNE RAIE LARGE. — L'absorption d'une raie large s'obtient en pondérant par le profil $u(E_k)$ de la raie excitatrice l'absorption monochromatique calculée précédemment et en intégrant sur E_k .

1. *Raie infiniment large.* — Supposons tout d'abord la raie excitatrice infiniment large. L'absorption totale est alors proportionnelle à la somme des intensités des diverses raies du spectre d'absorption calculée plus haut :

$$\mathcal{S}_\lambda = \text{Cte} \times \sum_{m_1 n_1} |\langle \overline{e_{m_1}, n_1} | \mathcal{H}_I | fnk\lambda \rangle|^2. \quad (\text{III.C.1})$$

De la relation de fermeture :

$$\sum_{m_1 n_1} |\overline{e_{m_1}, n_1}\rangle \langle \overline{e_{m_1}, n_1}| = \sum_{mn} |e_m, n\rangle \langle e_m, n| = 1$$

on déduit aisément la règle de somme :

$$\sum_{m_1 n_1} |\langle \overline{e_{m_1}, n_1} | \mathcal{H}_I | fnk\lambda \rangle|^2 = \sum_m |\langle e_m | \mathcal{H}_I | fnk\lambda \rangle|^2 \quad (\text{III.C.2})$$

ce qui montre que \mathcal{S}_λ est indépendant du niveau de radiofréquence : l'absorption totale est donc la même pour l'atome « nu » et pour l'atome « habillé ». L'effet de la radiofréquence a été tout simplement de modifier la répartition du spectre d'absorption. L'interprétation physique de ce résultat est simple. Les trains d'ondes correspondant à une raie infiniment large passent en un temps infiniment court sur l'atome, de sorte que celui-ci n'a pas le temps de se coupler à la radiofréquence.

Remarque. — On peut démontrer également la règle de somme :

$$\sum_{\substack{n \\ \mathbf{k}\lambda}} |\langle e_{m_1, n_1} | \mathcal{H}_I | f \mathbf{k}\lambda \rangle|^2 = \sum_{\mathbf{k}\lambda} |\langle e_{m_1} | \mathcal{H}_I | f \mathbf{k}\lambda \rangle|^2 = \text{Cte} \times \Gamma \quad (\text{III. C.3})$$

la constante figurant dans (III. C.3) étant indépendante de m_1 .

(III. C.3) exprime que la probabilité totale d'émission d'un photon à partir d'un niveau excité quelconque de l'atome « habillé » est indépendante de ce niveau et est la même que pour un niveau excité quelconque de l'atome « nu ». En d'autres termes, l'émission spontanée est la même pour l'atome « habillé » et pour l'atome « nu ». Ainsi se trouve justifié le résultat utilisé dans le paragraphe précédent (en toute rigueur, il faut encore remarquer que ce résultat n'est valable que si la densité spectrale des fluctuations du vide, qui varie en E_k^2 , est sensiblement constante sur toute l'étendue du spectre d'absorption de l'atome « habillé », ce qui suppose que γH_1 , ω sont très petits devant la fréquence optique E_0 , condition très largement réalisée en pratique).

2. *Raie de largeur finie.* — Supposons maintenant la raie excitatrice de largeur Δ finie grande cependant devant ω_1 , ω , ω_0 , Γ (cf. fig. 13).

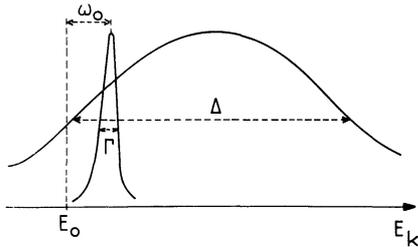


FIG. 13.

Revenant à l'atome « nu », imaginons que la fréquence centrale d'absorption E_0 tombe sur l'aile de la raie excitatrice et que l'on observe l'absorption en polarisation σ^+ en balayant le champ statique H_0 . Ce faisant, l'écart ω_0 entre la raie d'absorption σ^+ et E_0 varie, et il résulte clairement de la figure 13 que l'intensité absorbée varie comme ω_0/Δ (ce qui, en fait, n'est autre que la précession de Larmor pendant le temps de passage, $1/\Delta$, du paquet d'ondes).

On peut alors se demander si, pour l'atome « habillé », l'effet précédent n'est pas réduit dans le rapport $g^{(s)}/g_0$ des facteurs de Landé de l'atome « habillé » et « nu ». Nous allons montrer qu'il n'en est rien au 1^{er} ordre en $1/\Delta$. En effet, l'absorption totale s'écrit :

$$\mathcal{S} = \sum_{m_1, n_1} \int u(E_k) dE_k \frac{\langle f \mathbf{n}\mathbf{k}\lambda | \mathbf{e}_\lambda^* \mathbf{D} | e_{m_1, n_1} \rangle \langle e_{m_1, n_1} | \mathbf{e}_\lambda \mathbf{D} | f \mathbf{n}\mathbf{k}\lambda \rangle}{(E_k + n\omega - E_0 - E_{m_1, n_1})^2 + \frac{\Gamma^2}{4}} \quad (\text{III. C.4})$$

(III. C.4) s'écrit encore :

$$\mathcal{S} = \sum_{m_1, n_1} \int u(E_k - n\omega + E_{m_1, n_1}) dE_k \frac{\langle f \mathbf{n}\mathbf{k}\lambda | \mathbf{e}_\lambda^* \mathbf{D} | e_{m_1, n_1} \rangle \langle e_{m_1, n_1} | \mathbf{e}_\lambda \mathbf{D} | f \mathbf{n}\mathbf{k}\lambda \rangle}{(E_k - E_0)^2 + \frac{\Gamma^2}{4}} \quad (\text{III. C.5})$$

$E_{m_1, n_1} - n\omega$ étant de l'ordre de ω_0 , ω , ω_1 est petit devant Δ et l'on peut écrire (7) :

$$u(E_k - n\omega + E_{m_1, n_1}) = u(E_k) + (E_{m_1, n_1} - n\omega) \frac{\partial u(E_k)}{\partial E_k} + \dots \quad (\text{III. C.6})$$

Reportons (III. C.6) dans (III. C.5); l'intégration sur E_k revient à remplacer dans le développement (III. C.6) E_k par E_0 , car $\Gamma \ll \Delta$. En utilisant par ailleurs le fait que :

$$\sum_{m_1, n_1} (E_{m_1, n_1} - n\omega) | e_{m_1, n_1} \rangle \langle e_{m_1, n_1} | = \mathcal{H} - n\omega$$

il vient pour l'absorption :

$$\mathcal{S}_\lambda = u(E_0) \langle f \mathbf{n}\mathbf{k}\lambda | \mathbf{e}_\lambda^* \mathbf{D} \cdot \mathbf{e}_\lambda \mathbf{D} | f \mathbf{n}\mathbf{k}\lambda \rangle + \frac{\partial u}{\partial E} \Big|_{E_0} \langle f \mathbf{n}\mathbf{k}\lambda | \mathbf{e}_\lambda^* \mathbf{D} (\mathcal{H} - n\omega) \mathbf{e}_\lambda \mathbf{D} | f \mathbf{n}\mathbf{k}\lambda \rangle \quad (\text{III. C.7})$$

a.ec : $\mathcal{H} = \omega_0 J_z + \omega a^\dagger a + \lambda J_x (a + a^\dagger)$.

L'opérateur dipolaire électrique ne changeant pas le nombre de photons de radiofréquence n , on voit que le terme $\lambda J_x (a + a^\dagger)$ n'a pas d'élément de matrice dans (III. C.7); la contribution du terme $\omega a^\dagger a$ s'annule avec le terme $-n\omega$, il ne reste finalement que le terme Zeeman $\omega_0 J_z$ et on obtient la même expression que pour l'atome « nu » (8). (Remarquons que si le

(7) Le développement (III. C.6) est en puissances de $1/\Delta$, mais l'interaction entre l'atome et la radiofréquence est traitée à tous les ordres : E_{m_1, n_1} est la valeur propre exacte. De même $| e_{m_1, n_1} \rangle$ est ici un état propre exact et non plus un état propre à l'ordre zéro en ω_0 comme dans la relation (II. A.9).

(8) En utilisant les intensités des raies d'absorption calculées au § III. B.2 dans des cas particuliers de polarisation, on obtient un signal en $\omega_0/\Delta J_0^2(\omega_1/\omega)$, ce qui semble contredire le résultat précédent. Le paradoxe est levé quand on remarque que ces intensités sont calculées avec des fonctions propres à l'ordre 0 seulement en ω_0 (cf. § II. A.2), alors que le calcul rigoureux présenté ici utilise les fonctions propres et les valeurs propres exactes (cf. note (7)).

champ de radiofréquence est cohérent, on peut avoir des n différents aux deux extrémités de l'élément de matrice, $\lambda J_x(a + a^\dagger)$ donne alors en général une contribution non nulle et \mathcal{S} comporte une modulation au 1^{er} ordre en ω_1/Δ résultant physiquement de la modulation en amplitude ou en direction du champ total $\mathbf{H}_0 + \mathbf{H}_1 \cos \omega t$.)

On pourrait croire, à ce stade, que les effets de modification du facteur de Landé sont inobservables avec une excitation en raie large. Nous allons montrer qu'il n'en est rien lorsqu'au lieu de mesurer l'absorption totale, on mesure la section efficace de diffusion dans une direction donnée. C'est le cas de la dépolarisation magnétique ou effet Hanle que nous étudions dans le paragraphe suivant et qui nous a permis d'observer expérimentalement la variation du facteur de Landé. Physiquement, la mesure de l'absorption totale se fait sur les paquets d'ondes transmis qui n'ont interagi avec l'atome qu'un temps $1/\Delta$ extrêmement court. Par contre, les paquets d'ondes 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 ($1/|\omega_1| \ll 1/\Gamma$)⁽⁹⁾.

(9) C'est bien ce qui se passe également dans les expériences décrites en I où l'observation de la lumière diffusée permet de détecter les transitions à plusieurs quanta et les divers croisements de l'atome « habillé ».

IV. La dépolarisation magnétique de l'atome « habillé ». — Nous avons vu que la lumière diffusée par un niveau atomique paramagnétique subit une variation résonnante au voisinage du champ nul, pourvu que les polarisations lumineuses d'excitation et de détection soient *cohérentes* [1]. C'est l'effet Hanle [3] bien connu de dépolarisation magnétique. La largeur en champ de la résonance observée est, comme pour toute résonance de croisement de niveaux, proportionnelle à la largeur naturelle Γ des niveaux qui se croisent et inversement proportionnelle à leur pente, donc à leur facteur de Landé, la dépolarisation magnétique étant d'autant plus efficace dans un champ donné que le moment magnétique de l'atome est plus grand. D'où l'idée d'observer le même signal en présence d'un champ de radiofréquence en polarisation σ , ou encore d'étudier la *dépolarisation magnétique* de la lumière diffusée par l'atome « habillé ».

Nous supposons donc le champ H_0 aligné le long de Oz, le champ de radiofréquence aligné le long de Ox et nous étudierons la diffusion $|\mathbf{k}\lambda\rangle \rightarrow |\mathbf{k}'\lambda'\rangle$, \mathbf{e}_λ et $\mathbf{e}_{\lambda'}$ étant des polarisations cohérentes par rapport à Oz, au voisinage du champ H_0 nul. Nous supposons enfin une excitation optique en *raie infiniment large*. La section efficace de diffusion est alors donnée par la formule (II.C.4) de la référence [1]. En y introduisant deux fois la relation de fermeture sur les états propres $|e_m, n\rangle$, on obtient :

$$\begin{aligned} \mathcal{S}_{\mathbf{k}\lambda \rightarrow \mathbf{k}'\lambda'} &= \text{Cte} \times \sum_{n'} \sum_{\substack{m_1 n_1 \\ m_2 n_2}} \iint dE_k dE_{k'} \delta[E_k - E_{k'} + (n - n') \omega] \\ &\times \frac{\langle fn' \mathbf{k}'\lambda' | \mathcal{H}_I | e_{m_1, n_1} \rangle \langle e_{m_1, n_1} | \mathcal{H}_I | fn\mathbf{k}\lambda \rangle \langle fn\mathbf{k}\lambda | \mathcal{H}_I | e_{m_2, n_2} \rangle \langle e_{m_2, n_2} | \mathcal{H}_I | fn' \mathbf{k}'\lambda' \rangle}{\left(E_k + n\omega - E_0 - E_{m_1 n_1} + i \frac{\Gamma}{2} \right) \left(E_k + n\omega - E_0 - E_{m_2 n_2} - i \frac{\Gamma}{2} \right)}. \end{aligned} \quad (\text{IV.1})$$

L'intégration sur E_k revient à remplacer E_k par $E_{k'} + (n' - n) \omega$. L'intégration sur $E_{k'}$ s'effectue alors immédiatement par les résidus, et on obtient :

$$\begin{aligned} \mathcal{S}_{\mathbf{k}\lambda \rightarrow \mathbf{k}'\lambda'} &= 2i\pi \text{Cte} \sum_{n'} \sum_{\substack{m_1 n_1 \\ m_2 n_2}} \\ &\times \frac{\langle fn' \mathbf{k}'\lambda' | \mathcal{H}_I | e_{m_1, n_1} \rangle \langle e_{m_1, n_1} | \mathcal{H}_I | fn\mathbf{k}\lambda \rangle \langle fn\mathbf{k}\lambda | \mathcal{H}_I | e_{m_2, n_2} \rangle \langle e_{m_2, n_2} | \mathcal{H}_I | fn' \mathbf{k}'\lambda' \rangle}{E_{m_2 n_2} - E_{m_1 n_1} + i\Gamma}. \end{aligned} \quad (\text{IV.2})$$

Nous voyons apparaître dans cette formule les termes d'interférence des amplitudes de transition correspondant à tous les couples de chemins possibles passant par les niveaux $|e_{m_1, n_1}\rangle$ et $|e_{m_2, n_2}\rangle$. Chacun de ces termes d'interférence n'est important que si les énergies $E_{m_1 n_1}$ et $E_{m_2 n_2}$ des deux états intermédiaires de la diffusion sont égales à Γ près (cf. § I.D de la référence [1]). Comme la fréquence ω est beaucoup plus grande que Γ , ceci n'est possible que si $n_1 = n_2$. Nous négligerons donc toutes les cohérences entre états à nombre de photons de radiofréquence différents et nous ferons $n_1 = n_2$ dans (IV.2) qui peut s'écrire :

$$\begin{aligned} \mathcal{S}_{\mathbf{k}\lambda \rightarrow \mathbf{k}'\lambda'} &= 2i\pi \text{Cte} \sum_{n'} \sum_{n_1} \sum_{\substack{m_1 \\ m_2}} \\ &\frac{\langle fn' \mathbf{k}'\lambda' | \mathcal{H}_I | e_{m_1, n_1} \rangle \langle e_{m_1, n_1} | \mathcal{H}_I | fn\mathbf{k}\lambda \rangle \langle fn\mathbf{k}\lambda | \mathcal{H}_I | e_{m_2, n_1} \rangle \langle e_{m_2, n_1} | \mathcal{H}_I | fn' \mathbf{k}'\lambda' \rangle}{(m_2 - m_1) \omega_0 J_0 \left(\frac{\omega_1}{\omega} \right) + i\Gamma}. \end{aligned} \quad (\text{IV.3})$$

Il suffit d'exprimer les éléments de matrice de (IV.3) à l'aide de (III.A.9) et on obtient finalement :

$$\mathcal{S}_{\mathbf{k}\lambda \rightarrow \mathbf{k}'\lambda'} = 2i\pi \text{Cte} |A_k|^2 |A_{k'}|^2 \sum_{\substack{q_1 q_2 m_1 \\ q'_1 q'_2 m_2}} \varepsilon_{q'_1}^* \varepsilon_{q_1} \varepsilon_{q_2}^* \varepsilon_{q'_2} K_{q_1 q_2} \left(\frac{\omega_1}{\omega} \right) + i\Gamma \quad (\text{IV.4})$$

$$\frac{\langle f | D_{q'_1}^{(\alpha)\dagger} | e_{m_1} \rangle \langle e_{m_1} | D_{q_1}^{(\alpha)} | f \rangle \langle f | D_{q_2}^{(\alpha)\dagger} | e_{m_2} \rangle \langle e_{m_2} | D_{q'_2}^{(\alpha)} | f \rangle}{(m_2 - m_1) \omega_0 J_0 \left(\frac{\omega_1}{\omega} \right) + i\Gamma}$$

avec :

$$K_{\substack{q_1 q_2 \\ q'_1 q'_2}} = \sum_{n', n_1} J_{n'-n_1} \left(q'_1 \frac{\omega_1}{\omega} \right) J_{n_1-n} \left(q_1 \frac{\omega_1}{\omega} \right) J_{n-n_1} \left(q_2 \frac{\omega_1}{\omega} \right) \quad (\text{IV.5})$$

$K_{\substack{q_1 q_2 \\ q'_1 q'_2}}$ se transforme aisément en utilisant une règle de somme classique sur les fonctions de Bessel :

$$K_{\substack{q_1 q_2 \\ q'_1 q'_2}} = J_0 \left[(q_1 - q_2) \frac{\omega_1}{\omega} \right] J_0 \left[(q'_1 - q'_2) \frac{\omega_1}{\omega} \right]. \quad (\text{IV.6})$$

Le signal apparaît ainsi sur (IV.4) comme une somme de termes dépendant des quatre indices q_1, q_2, q'_1, q'_2 dans chacun desquels on a pu séparer la contribution des variables atomiques (éléments de matrice de $D_q^{(\alpha)}$) des variables de radiofréquence qui décrivent la contamination des niveaux de l'atome « habillé » ($K_{\substack{q_1 q_2 \\ q'_1 q'_2}}$). Au dénominateur d'énergie apparaît, d'autre part, le facteur de Landé de l'atome « habillé ».

Nous pouvons, par un choix convenable des polarisations, mettre clairement en évidence la modification du facteur de Landé : envisageons le cas où \mathbf{e}_λ et $\mathbf{e}_{\lambda'}$, tout en étant cohérents par rapport à Oz, sont *non cohérents* par rapport à Ox. Nous avons alors :

$$\mathbf{e}_\lambda = \mathbf{e}_q^{(\alpha)}; \quad \mathbf{e}_{\lambda'} = \mathbf{e}_{q'}^{(\alpha)}$$

$$\varepsilon_{q_1} = \delta_{qq_1}; \quad \varepsilon_{q_2} = \delta_{qq_2}; \quad \varepsilon_{q'_1} = \delta_{q'q'_1}; \quad \varepsilon_{q'_2} = \delta_{q'q'_2}.$$

Les seuls coefficients K qui interviennent alors dans (IV.4) sont ceux où $q_1 = q_2 = q$ et $q'_1 = q'_2 = q'$, et on a $K_{\substack{qq \\ q'q'}} = J_0^2(0) = 1$.

Les variables de radiofréquence disparaissent au numérateur de (IV.4). Finalement, nous voyons que le signal d'effet Hanle de l'atome « habillé » est identique à celui de l'atome « nu » à condition de remplacer la fréquence de Larmor ω_0 par $\omega_0 J_0 \left(\frac{\omega_1}{\omega} \right)$: tout se passe *dans ce cas* comme si l'effet du champ de radiofréquence avait été simplement de modifier le facteur de Landé de l'atome « nu ». Les courbes d'effet Hanle ont la même forme que pour l'atome « nu » et seule leur largeur varie.

Nous avons vérifié expérimentalement ce résultat dans le cas du pompage optique transversal du ^{199}Hg

de spin nucléaire $I = 1/2$ pour lequel la théorie qui précède peut se généraliser aisément [14]. Chacune des courbes des figures 14 a et 14 b correspond au signal Hanle mesuré pour une amplitude déterminée

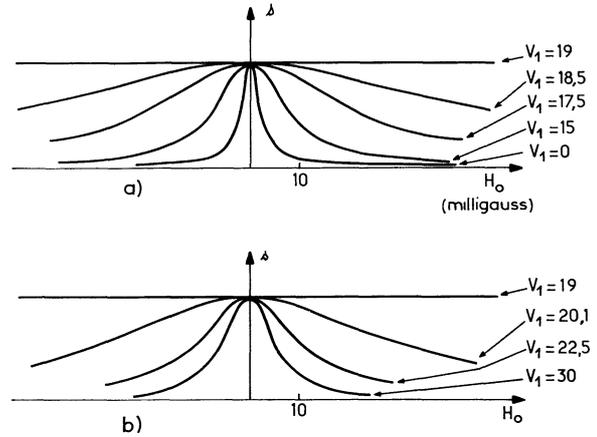


FIG. 14.

de H_1 , repérée par le voltage V_1 proportionnel à H_1 aux bornes des bobines de radiofréquence. Lorsque H_1 augmente, la résonance s'élargit considérablement sans se déplacer ni changer d'intensité. La largeur de la résonance devient *infinie* pour la valeur de H_1 correspondant à la première annulation du facteur de Landé de l'atome « habillé », puis diminue considérablement et passe par un minimum pour s'élargir à nouveau, etc. Les points de la figure 8 représentent les valeurs expérimentales du rapport $g^{(S)}/g_0$ déduites de la mesure des largeurs des résonances. L'accord avec la courbe théorique est très bon.

En conclusion, nous voyons que le point de vue de l'atome « habillé » par des photons de radiofréquence développé dans cet article est très fructueux puisqu'il permet de retrouver très simplement toutes les propriétés des résonances étudiées dans [1], d'éclairer d'un jour nouveau certains phénomènes bien connus comme l'effet Autler-Townes et de prévoir certains effets nouveaux. Ce point de vue peut se généraliser à tous les cas où un système atomique ou moléculaire interagit avec deux champs C_1 et C_2 dont l'un peut être intense, C_1 (ici le champ de radiofréquence) et l'autre faible, C_2 (ici le champ optique). C_2 est alors diffusé par l'atome « habillé » par C_1 . Cette idée est

appliquée dans la référence [15] à l'étude de l'effet Raman inverse.

Nous avons pu déjà observer certains des effets nouveaux prévus (en particulier la modification des

courbes de dépolarisation magnétique). D'autres expériences sont actuellement en cours : collisions d'échange entre alcalins « habillés », spectre d'absorption hyperfréquence d'alcalins « habillés ».

BIBLIOGRAPHIE

- [1] COHEN-TANNOUDJI (C.) et HAROCHE (S.), *J. Physique* 1969, **30**, 125.
- [2] AUTLER (S. H.) et TOWNES (C. H.), *Phys. Rev.*, 1955, **100**, 703.
- [3] HANLE (W.), *Z. Physik*, 1924, **30**, 93.
- [4] POLONSKY (N.) et COHEN-TANNOUDJI (C.), *J. Physique*, 1965, **26**, 409.
- [5] BLOCH (F.) et RABI (I.), *Rev. Mod. Phys.*, 1945, **17**, 237.
- [6] PRYCE (M. H. L.), *Phys. Rev.*, 1950, **77**, 136.
- [7] DODD (J. N.) et SERIES (G. W.), *Proc. Roy. Soc.*, 1961, A **263**, 353.
- [8] SHIRLEY (J. H.), *Phys. Rev.*, 1965, **138**, 4 B, 979.
- [9] COLEGROVE (F. D.), FRANKEN (P. A.), LEWIS (R. R.) et SANDS (R. H.), *Phys. Rev. Letters*, 1959, **3**, 420.
- [10] ECK (T. G.), FOLDY (L. L.) et WIEDER (H.), *Phys. Rev. Letters*, 1963, **10**, 239. Pour une étude théorique de la diffusion de la lumière au voisinage d'un croisement ou d'un anticroisement de niveaux atomiques, voir aussi : C. COHEN-TANNOUDJI, Cargèse Lectures in Physics, Gordon and Breach, 1967.
- [11] HAROCHE (S.), Thèse de 3^e cycle, Paris, 1967.
- [12] COHEN-TANNOUDJI (C.), Thèse, Paris, 1962 ; *Ann. Physique*, 1962, **7**, 423 et 469.
- [13] GLAUBER (R. J.), *Phys. Rev.*, 1963, **131**, 6, 2766-2788.
- [14] COHEN-TANNOUDJI (C.) et HAROCHE (S.), *C. R. Acad. Sc.*, 1966, **262**, 268.
- [15] Voir article des auteurs dans « Polarisation, matière et rayonnement », Livre de Jubilé en l'honneur d'Alfred Kastler, édité par la Société Française de Physique, P.U.F., 1969.