

Le concept d'atome « habillé » par des photons Quelques exemples d'application

C. COHEN-TANNOUDJI ET S. HAROCHE

Faculté des Sciences de Paris
et Laboratoire de Spectroscopie Hertzienne de l'E.N.S., associé au C.N.R.S.

On a souvent à étudier l'interaction d'un atome ou d'une molécule avec deux champs électromagnétiques C_1 et C_2 , l'un intense, C_1 , l'autre faible, C_2 . Nous nous proposons de montrer ici qu'il est très fructueux de considérer que C_2 interagit avec le système global atome + champ C_1 couplés, que l'on peut encore appeler l'atome « habillé » par les photons du champ C_1 .

Nous illustrons notre discussion avec des exemples empruntés à deux domaines qui ont toujours passionné Alfred Kastler : les méthodes optiques de la résonance magnétique (double résonance) et l'effet Raman. Dans la première partie, C_2 est le faisceau de pompage optique, C_1 le champ de radiofréquence utilisé pour faire la résonance magnétique. Nous étudions le diagramme énergétique de l'atome « habillé » (§ A) puis montrons comment il est possible d'interpréter les divers types de résonance magnétique rencontrés dans les expériences de pompage optique longitudinal et transversal en termes d'anticroisements ou de croisements de niveaux de l'atome habillé (§ B). Le concept d'atome « habillé » se révèle également très fructueux pour étudier la modification du moment magnétique d'un atome par couplage avec un champ de radiofréquence (§ C) et certaines applications de cet effet que l'on peut envisager (§ D). Dans la deuxième partie, C_1 est une onde laser intense interagissant avec une molécule, C_2 un spectre continu dont on étudie l'absorption

par la molécule habillée par les photons de C_1 . Le problème posé est celui de l'effet Raman inverse dont on montre le lien étroit avec l'effet Autler-Townes.

I. — EXPÉRIENCES DE DOUBLE RÉSONANCE

Dans une expérience de double résonance, l'atome est porté par excitation optique dans un niveau excité; nous supposons, pour simplifier, que ce niveau a un moment cinétique $J = 1/2$. Soit $|\pm\rangle$ les deux sous-niveaux Zeeman dans un champ statique H_0 . Un champ de radiofréquence $H_1 \cos \omega t$, perpendiculaire à H_0 , induit des transitions entre ces deux sous-niveaux, transitions que l'on détecte sur la lumière réémise par l'atome.

Nous allons montrer qu'il est très fructueux de raisonner d'emblée sur l'atome « habillé » par les photons de radiofréquence. Aussi commençons-nous par étudier son diagramme énergétique.

A) Diagramme énergétique de l'atome « habillé »

Nous supposons que l'on peut négliger le couplage entre l'atome dans l'état fondamental et la radiofréquence. Dans l'état excité, le hamiltonien \mathcal{H} de l'atome habillé s'écrit ($\hbar = 1$) :

$$\mathcal{H} = \omega_0 J_z + \omega a^\dagger a + \lambda(a + a^\dagger) J_x. \quad (1)$$

Le premier terme représente l'énergie Zeeman ($\omega_0 = \gamma H_0$, γ étant le rapport gyromagnétique de l'état excité); le deuxième, l'énergie du champ de radiofréquence (a^\dagger et a sont les opérateurs de création et d'annihilation d'un photon de radiofréquence); le troisième terme, le couplage entre l'atome et la radiofréquence : on l'obtient à partir du hamiltonien $-\gamma H_1 J_x \cos \omega t$ en quantifiant le champ de radiofréquence; λ est une constante de couplage. Si $\langle n \rangle$ et $\langle H_1 \rangle$ sont le nombre moyen de photons et l'amplitude moyenne du champ de radiofréquence, on démontre aisément [1] la relation :

$$\gamma \langle H_1 \rangle = 2\lambda \sqrt{\langle n \rangle}. \quad (2)$$

Les états propres de $\mathcal{H}_0 = \omega_0 J_z + \omega a^\dagger a$ sont les états $|\pm, n\rangle$, d'énergie $\pm \frac{\omega_0}{2} + n\omega$. n est le nombre de photons de

radiofréquence. On a représenté en pointillé sur la figure 1 les niveaux d'énergie de \mathcal{H}_0 en fonction de ω_0 . Ce sont des lignes droites se coupant pour toutes les valeurs de ω_0 telles que $\omega_0 = p\omega$ (p entier positif, négatif ou nul). Nous nous proposons d'étudier les niveaux de \mathcal{H} lorsque n varie autour d'une valeur moyenne $\langle n \rangle$ suffisamment petite pour que le couplage $V = \lambda J_x (a + a^\dagger)$ puisse être traité comme une perturbation par rapport à \mathcal{H}_0 (un autre cas extrême sera étudié en C).

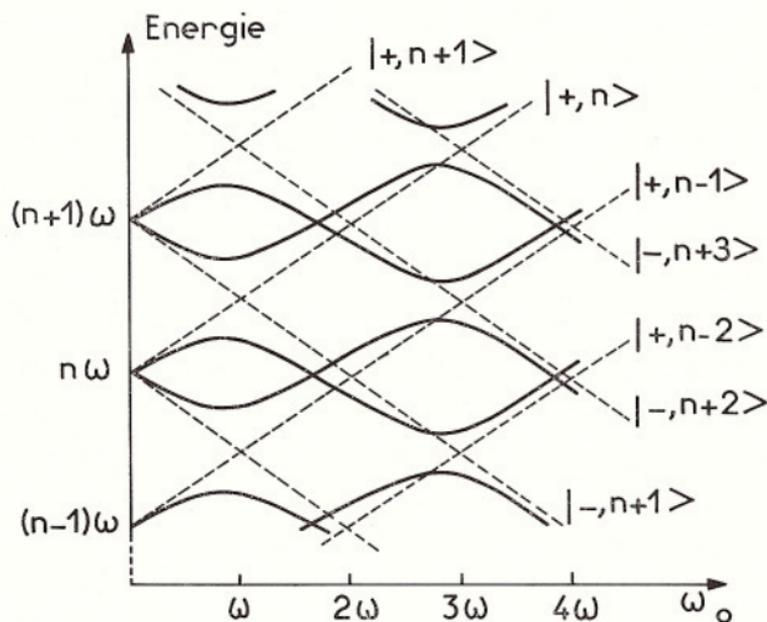


FIG. 1

Comme $V \ll \mathcal{H}_0$, l'effet de V ne sera important qu'au voisinage d'un point de croisement de deux niveaux de \mathcal{H}_0 , c'est-à-dire lorsque $\omega_0 = p\omega$. Deux cas sont alors à distinguer :

1. *Croisements pairs* : $\omega_0 = 2q\omega$ (q entier ≥ 0).

La structure de V est telle que l'état $|\pm, n\rangle$ est couplé uniquement aux deux états $|\mp, n+1\rangle$ et $|\mp, n-1\rangle$ (conservation du moment cinétique). On en déduit aisément que, en un point de croisement pair, V ne connecte à aucun ordre les deux niveaux non perturbés $|a\rangle$ et $|b\rangle$ qui se croisent. Les deux états perturbés $|\bar{a}\rangle$ et $|\bar{b}\rangle$ (en traits pleins sur la figure 1) se croisent donc toujours. Par suite du couplage de $|a\rangle$ et $|b\rangle$ avec les autres états $|i\rangle$ de \mathcal{H}_0 , $|\bar{a}\rangle$ et $|\bar{b}\rangle$ sont déplacés par

rapport à $|a\rangle$ et $|b\rangle$ d'une quantité du 2^e ordre en V , c'est-à-dire proportionnelle à $\langle H_1 \rangle^2$. Le nouveau point de croisement est donc décalé par rapport à l'ancien d'une quantité du second ordre en $\langle H_1 \rangle$, entièrement calculable.

2. Croisements impairs : $\omega_0 = (2q + 1) \omega$ (q entier ≥ 0)

On vérifie aisément qu'en un point de croisement impair $\omega_0 = (2q + 1) \omega$ les deux états non perturbés $|c\rangle$ et $|d\rangle$ qui se croisent sont couplés par V via $2q$ états intermédiaires. Par exemple, les deux états $|+, n\rangle$ et $|- , n + 1\rangle$ ($q = 0$) sont couplés directement; les deux états $|+, n - 1\rangle$ et $|- , n + 2\rangle$ ($q = 1$) sont couplés par l'intermédiaire des deux états $|- , n\rangle$ et $|+, n + 1\rangle$. $|c\rangle$ et $|d\rangle$ étant couplés, les deux états perturbés $|\bar{c}\rangle$ et $|\bar{d}\rangle$ ne se croisent plus : ils se repoussent et forment ce que l'on appelle un « anticroisement ». Par suite du couplage de $|c\rangle$ et $|d\rangle$ avec les états $|i\rangle$ autres que $|c\rangle$ et $|d\rangle$, le centre de l'anticroisement, c'est-à-dire le point où les deux niveaux $|\bar{c}\rangle$ et $|\bar{d}\rangle$ sont le plus rapprochés, est décalé par rapport à l'ancien point de croisement d'une quantité, ϵ , du 2^e ordre en $\langle H_1 \rangle$ entièrement calculable; la distance minimale entre $|\bar{c}\rangle$ et $|\bar{d}\rangle$, Δ , est d'ordre $2q + 1$ en $\langle H_1 \rangle$. Au voisinage du point de croisement, les états propres et les valeurs propres de \mathcal{H} subissent donc des variations importantes. Le calcul correspondant est très simple (diagonalisation d'une matrice hermitique 2×2).

Le diagramme énergétique de l'atome habillé a donc l'allure représentée sur la figure 1 (trait plein). Il présente toute une série de points de croisements et d'anticroisements.

B) Interprétation de diverses résonances magnétiques

1. Transitions à un ou plusieurs quanta de radiofréquence

Plaçons-nous au voisinage d'un croisement impair, par exemple $\omega_0 = 3\omega$. Initialement le système est dans l'état $|F, n\rangle$ (atome dans l'état fondamental F en présence de n photons de radiofréquence). Si l'excitation optique est en polarisation σ^- et a une largeur spectrale suffisamment grande, on montre aisément que l'absorption d'un photon optique porte le système dans l'état $|- , n\rangle$, c'est-à-dire dans un état propre de \mathcal{H}_0

(le hamiltonien d'interaction avec le champ optique commute avec la radiofréquence et ne peut changer n). Au voisinage de $\omega_0 = 3\omega$ les deux états propres de \mathcal{H}_0 , $|c\rangle = |-, n\rangle$ et $|d\rangle = |+, n-3\rangle$ sont fortement couplés. Il y a donc une certaine probabilité, $P_{c \rightarrow d}(t)$, pour qu'au bout d'un temps t le système soit passé de $|c\rangle$ à $|d\rangle$, c'est-à-dire que l'atome soit passé de $|-\rangle$ à $|+\rangle$ en absorbant trois photons de radiofréquence, ce qui se traduit expérimentalement par l'émission d'un photon optique σ^+ . $P_{c \rightarrow d}(t)$ est donnée par une formule de type Rabi, très facilement calculable puisque l'on connaît les fonctions d'ondes et les énergies des états perturbés $|\bar{c}\rangle$ et $|\bar{d}\rangle$ qui s'anticroisent. En pondérant $P_{c \rightarrow d}(t)$ par $\Gamma e^{-\Gamma t}$ (Γ , inverse de la durée de vie radiative de l'état excité) et en intégrant sur t , on obtient la probabilité de transition moyenne, c'est-à-dire la forme de la raie de résonance magnétique. On trouve une courbe de Lorentz, centrée autour de la valeur de ω_0 correspondant au centre de l'anticroisement, c'est-à-dire décalée par rapport à $\omega_0 = 3\omega$ d'une quantité ϵ du 2^e ordre en $\langle H_1 \rangle$ (déplacement radiatif). L'intensité de la résonance est proportionnelle au carré de la distance minimale, Δ , entre $|\bar{c}\rangle$ et $|\bar{d}\rangle$, donc à $\langle H_1 \rangle^6$; la largeur de la résonance est proportionnelle à $\sqrt{\Gamma^2 + \Delta^2}$; donc, pour $\langle H_1 \rangle$ grand, à $\langle H_1 \rangle^3$ (élargissement radiatif).

Le raisonnement précédent se généralise à tous les croisements impairs de \mathcal{H}_0 et permet de montrer que la résonance magnétique ordinaire à un quantum et les transitions à plusieurs quanta, étudiées en détail par J.-M. Winter [3], sont liées étroitement aux *anticroisements de l'atome habillé*, les caractéristiques des résonances (intensité, élargissement et déplacement radiatifs) étant reliées très simplement aux paramètres géométriques, ϵ et Δ , de l'anticroisement. L'interprétation de la résonance en termes de photons est également très claire (transition $|-, n\rangle \rightarrow |+, n-2q-1\rangle$).

2. Nouvelles résonances magnétiques observées en pompage optique transversal

Si l'on excite l'atome avec de la lumière σ_- et qu'on détecte la lumière σ_+ réémise, on ne constate aucune variation résonnante autour des valeurs $\omega_0 = 2q\omega$. Ceci n'est pas surprenant

car les deux états non perturbés qui se croisent pour ces valeurs de ω_0 ne sont couplés à aucun ordre. Si cependant les polarisations d'excitation et de détection sont des superpositions linéaires de σ^+ et σ^- (c'est en particulier le cas dans les expériences de pompage optique *transversal*), on voit apparaître des variations résonnantes de la lumière réémise autour des valeurs $\omega_0 = 2q\omega$. L'interprétation de ces nouvelles résonances est très simple si l'on raisonne sur l'atome habillé : elles correspondent à l'effet *Franken* [4] de l'atome habillé.

Franken a montré en effet que la lumière diffusée par un atome libre présente, dans certains cas, des variations résonnantes toutes les fois que le champ magnétique a une valeur correspondant à un croisement de deux niveaux d'énergie. Le même effet existe pour l'atome habillé et son interprétation est la suivante : si, dans le processus de diffusion résonnante d'un photon optique, il y a deux états intermédiaires, l'amplitude de diffusion est une somme de deux termes, un pour chaque état intermédiaire. Lorsqu'on élève au carré pour obtenir la section efficace, il apparaît un terme d'interférence dont on montre aisément qu'il n'est important que lorsque les deux états intermédiaires ont même énergie, c'est-à-dire au point de croisement, d'où l'apparition d'une résonance sur la lumière diffusée lorsqu'on varie le champ autour de ce point. Une condition importante pour l'observation de cet effet est que les deux chemins de diffusion correspondant aux deux états intermédiaires soient ouverts : il faut pour cela que les deux niveaux perturbés qui se croisent, par exemple $|\bar{a}\rangle = |-, n+2\rangle$ et $|\bar{b}\rangle = |+, n\rangle$ pour $\omega_0 \sim 2\omega$, puissent être atteints tous les deux par excitation optique à partir d'un même état fondamental, par exemple $|F, n\rangle$. Ceci impose tout d'abord des conditions sur la polarisation de la lumière incidente et diffusée du type de celles mentionnées plus haut et permet de comprendre pourquoi ces résonances ne sont observables qu'en pompage optique transversal. Par suite de la règle de sélection, $\Delta n = 0$, satisfaite par l'excitation optique et déjà mentionnée plus haut, on voit également que l'état $|\bar{a}\rangle = |-, n+2\rangle$ ne peut être atteint à partir de $|F, n\rangle$ que parce que, dans le développement de perturbation de cet état, figure, au 2^e ordre en V , l'état $|-, n\rangle$, ce que l'on peut interpréter en disant que l'atome dans l'état $|-\rangle$, en présence

de $n + 2$ photons de radiofréquence, peut en absorber *virtuellement* 2, puis les réémettre. Ainsi, à la différence du cas étudié en 1), où il s'agissait d'absorptions *réelles* de un ou plusieurs quanta de radiofréquence, on voit que ces nouvelles résonances sont liées à des effets d'interférence entre deux amplitudes de diffusion optique, les deux chemins étant ouverts grâce à des absorptions et réémissions virtuelles de plusieurs quanta de radiofréquence. Enfin, la résonance est centrée autour du point de croisement des deux niveaux perturbés $|\bar{a}\rangle$ et $|\bar{b}\rangle$, ce qui explique son déplacement radiatif en $\langle H_1 \rangle^2$ observé lorsqu'on augmente $\langle H_1 \rangle$.

On peut interpréter ainsi certaines des résonances observées par Series *et al.* dans l'état excité 6^3P_1 de Hg [5]; les résonances que nous avons observées dans l'état fondamental 6^1S_0 de ^{199}Hg [6] (dans ce cas, l'atome et la radiofréquence n'interagissent que dans l'état fondamental et la théorie précédente s'applique à condition de raisonner sur les « trous » laissés par l'excitation optique dans l'état fondamental); les résonances observées par pompage optique transversal dans un champ magnétique modulé en amplitude [7] (dans ce cas, H_1 et H_0 sont parallèles et le diagramme énergétique de l'atome habillé présente uniquement des croisements). Enfin, le traitement présenté ici permet de donner une interprétation physique simple des diagrammes de fréquence de Pryce [8] et Series [5] : ces diagrammes donnent les fréquences d'évolution propre de l'atome « habillé ».

En conclusion, nous voyons que l'on peut interpréter de façon très synthétique les divers types de résonance magnétique rencontrés dans les expériences de double résonance en termes de croisements ou d'anticroisements de l'atome « habillé ».

C) Moment magnétique de l'atome habillé

Étudions maintenant ce que devient le diagramme de la figure 1 lorsque $\langle H_1 \rangle$ devient suffisamment grand pour que le couplage $V = \lambda J_x (a + a^\dagger)$ ne puisse plus être traité comme une perturbation. Il n'est alors plus possible de faire des calculs quantitatifs, sauf au voisinage de $\omega_0 = 0$, où l'on peut considérer $\omega_0 J_z$ comme une perturbation vis-à-vis de :

$$\mathcal{H}'_0 = \omega a^\dagger a + \lambda J_x (a + a^\dagger).$$

Un tel traitement de perturbation doit donner la pente des niveaux d'énergie au voisinage du champ nul, c'est-à-dire encore le moment magnétique de l'atome habillé.

La diagonalisation de \mathcal{H}'_0 peut être effectuée exactement.

On trouve [2] que les valeurs propres sont $n\omega - \frac{\lambda^2}{4\omega}$, les états propres correspondants étant de la forme $|\epsilon \rangle_x | \bar{n}_\epsilon \rangle$, où $|\epsilon \rangle_x$, avec $\epsilon = \pm 1$, est un état propre de J_x et

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

Pour chaque valeur de n , les états $|\pm \rangle_x | \bar{n}_\pm \rangle$ ont même énergie. La diagonalisation de $\omega_0 J_z$ dans le sous-espace de ces deux états donne les deux valeurs $\pm \frac{\omega_0}{2} \langle \bar{n}_+ | \bar{n}_- \rangle$. Or, on démontre que, pour n suffisamment grand,

$$\langle \bar{n}_+ | \bar{n}_- \rangle = J_0 \left(2\lambda \frac{\sqrt{n}}{\omega} \right) = J_0 \left(\gamma \frac{\langle H_1 \rangle}{\omega} \right) = J_0 \left(\frac{\omega_1}{\omega} \right)$$

où J_0 est la fonction de Bessel d'ordre 0. Au voisinage de $\omega_0 = 0$, les énergies perturbées sont donc de la forme $n\omega - \frac{\lambda^2}{4\omega} \pm \frac{\omega_0}{2} J_0 \left(\frac{\omega_1}{\omega} \right)$ et, par suite, le moment magnétique de l'atome habillé diffère de celui de l'atome libre par le facteur $J_0 \left(\frac{\omega_1}{\omega} \right)$.

L'étude expérimentale de cet effet a été faite en étudiant l'effet Hanle de l'état fondamental de ^{199}Hg [9]. La largeur des courbes d'effet Hanle est inversement proportionnelle au facteur de Landé du niveau étudié. On constate que lorsqu'on fait interagir l'atome avec un champ de radiofréquence cette largeur varie comme $\left[J_0 \left(\frac{\omega_1}{\omega} \right) \right]^{-1}$. En particulier, elle devient infinie pour les valeurs de ω_1/ω correspondant aux zéros de J_0 .

Ainsi, nous voyons que l'on peut modifier de façon spectaculaire le moment magnétique d'un atome en l'habillant avec des photons de radiofréquence. Nous allons maintenant décrire quelques projets d'expériences utilisant cette propriété.

D) Prolongements en cours

1. Collisions d'échange et transfert de moment transversal entre deux alcalins habillés

Rappelons le mécanisme des collisions d'échange : au cours d'une collision entre deux alcalins A et B (par exemple, Rb et Cs), il y a une certaine probabilité pour que les deux électrons de valence de A et B s'échangent. La collision dure un temps trop court pour que les spins nucléaires soient affectés. Après la collision, spins électroniques et nucléaires se recouplent pour donner \vec{F}_A et \vec{F}_B et les différents moments transversaux précèdent alors autour du champ H_0 aux fréquences de Larmor hyperfines $\pm g_A \mu_B H_0$ et $\pm g_B \mu_B H_0$ (rappelons que, pour un alcalin, les facteurs de Landé des deux niveaux hyperfins de l'état fondamental sont égaux en valeur absolue mais de signe opposé, si l'on néglige toutefois le moment nucléaire).

Pour plusieurs couples d'alcalins, par exemple ^{85}Rb et ^{133}Cs , $g_A \neq g_B$. Il s'ensuit que le moment transversal ne peut passer de A à B par collision d'échange, car il a une fréquence d'évolution propre différente sur A et sur B. Au cours d'une collision donnée, il y a bien échange de moment transversal, mais les effets des collisions successives se moyennent globalement à zéro au cours du temps. Il n'en est évidemment pas de même pour le moment longitudinal qui ne précesse pas autour du champ et qui peut, par suite, s'échanger de façon appréciable entre A et B, ce qui permet d'orienter A par pompage optique, puis B par échange.

Supposons que l'on soumette alors les deux atomes à l'action d'un champ de radiofréquence. Il faut alors raisonner sur les facteurs de Landé des atomes « habillés » $g'_A = g_A J_0 \left(\frac{g_A \mu_B H_1}{\omega} \right)$ et $g'_B = g_B J_0 \left(\frac{g_B \mu_B H_1}{\omega} \right)$. La figure 2 montre que si $g_A \neq g_B$, on peut trouver toute une série de valeurs de H_1 telles que $g'_A = g'_B$. Pour ces valeurs de H_1 , le moment transversal doit pouvoir s'échanger de façon appréciable entre les deux alcalins « habillés ». En introduisant le champ de radiofréquence avec

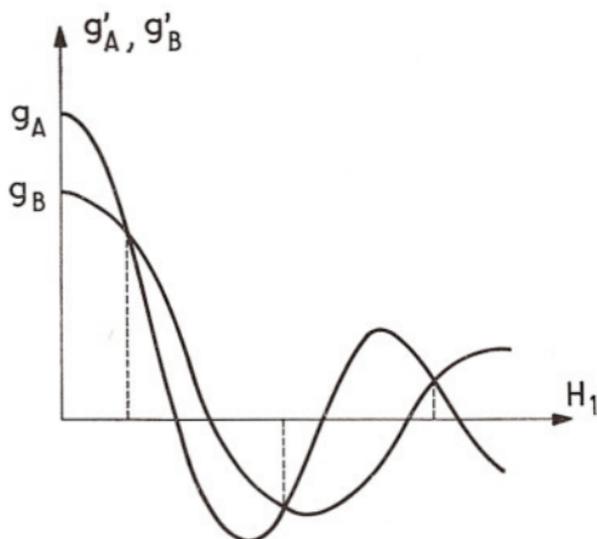


FIG. 2

une amplitude convenable, on doit donc pouvoir faire apparaître une sorte de « cross-relaxation » entre les deux alcalins.

2. Transitions hyperfines d'un atome alcalin habillé

Soient F_1 et F_2 les deux niveaux hyperfins d'un alcalin. Comme nous l'avons déjà dit plus haut, $g_{F_1} = -g_{F_2}$. Les spectres de transition hyperfine en polarisation σ_+ , σ_- ou π se composent donc d'une série de raies distantes de $2g_{F_1}\mu_B H_0$. Seule la raie 0-0 est indépendante du champ H_0 , ce qui lui fait jouer un rôle privilégié dans les horloges atomiques ou les masers.

Supposons que l'on soumette l'alcalin à l'action d'un champ de radiofréquence. Les deux facteurs de Landé g_{F_1} et g_{F_2} vont être modifiés et de la même façon en valeur relative puisque $g_{F_1} = -g_{F_2}$ et que J_0 est une fonction paire. L'écart entre les raies des divers spectres hyperfins va donc diminuer puis s'annuler lorsque H_1 est tel que $J_0 = 0$. (En fait, il apparaît également des raies satellites distantes de $n\omega$.) Le traitement de perturbation présenté plus haut (§ C) permet de calculer entièrement ces spectres (intensité, position, ...) et l'on peut espérer une moins grande sensibilité des transitions hyperfines de l'atome « habillé » aux inhomogénéités du champ statique.

II. — EFFET RAMAN INVERSE

A) Position du problème

— Soit a , b , c , trois niveaux d'énergie d'une molécule. a et b sont deux niveaux vibrationnels, c un niveau électronique excité (fig. 3).

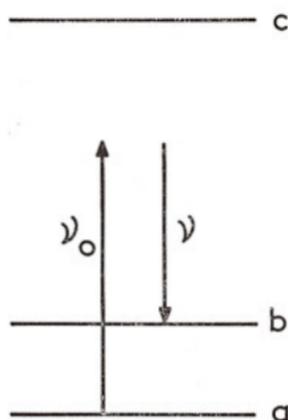


FIG. 3

Dans l'effet Raman ordinaire, un photon ν_0 est envoyé sur la molécule dans l'état a . Ce photon ν_0 est absorbé, un photon ν est émis, l'atome se retrouvant dans l'état b . On a :

$$\boxed{h\nu_0 + E_a = h\nu + E_b.} \quad (3)$$

Si n photons ν (de vecteur d'onde \vec{k} et de polarisation \vec{e}_λ) sont déjà présents, la diffusion Raman se trouve augmentée dans la proportion $\frac{n+1}{1}$ par rapport à ce qu'elle était en l'absence de tout photon ν . On a un « effet Raman stimulé ».

— On envoie maintenant sur le système simultanément une onde laser très intense de fréquence ν , contenant un nombre très élevé, n , de photons ν et un spectre continu de faible intensité.

Chacune des fréquences du spectre continu va donner naissance à un effet Raman ordinaire ou spontané, sauf la fréquence ν_0 — satisfaisant à la relation (3) — qui va donner naissance à un effet Raman stimulé et qui, par suite, va être absorbée plus que les autres. Il va donc apparaître dans le spectre continu une raie d'absorption à la fréquence ν_0 , d'autant

plus importante que l'intensité présente à la fréquence ν est plus grande. C'est l'*effet Raman inverse* [10].

Notons que, si le spectre continu incident est suffisamment large, il y a également une autre raie d'absorption très intense, à la fréquence $\nu_{ac} = \frac{E_c - E_a}{h}$. C'est l'*absorption de résonance ordinaire*.

L'effet Raman, aussi bien stimulé que spontané, est exalté lorsque ν et ν_0 se rapprochent des fréquences moléculaires $\nu_{bc} = (E_c - E_b)/h$ et $\nu_{ac} = (E_c - E_a)/h$. Nous nous proposons d'étudier ce qui se passe lorsque $\nu \rightarrow \nu_{bc}$.

B) La molécule « habillée »

Comme plus haut, nous considérons la molécule habillée par les photons ν , et étudions l'absorption du spectre continu par ce système.

Supposons tout d'abord que la molécule et les photons ν coexistent sans interagir. Sur la figure 4 sont portés, en pointillé, certains des niveaux d'énergie du système global en fonction de ν : $|a, n\rangle$, molécule dans l'état a , n photons ν , énergie $E_a + nh\nu$; $|b, n+1\rangle$, molécule dans l'état b , $n+1$ photons ν , énergie $E_b + (n+1)h\nu$; $|c, n\rangle$, molécule dans l'état c , n photons ν , énergie $E_c + nh\nu$. Les niveaux $|c, n\rangle$ et $|b, n+1\rangle$ se coupent en un point I d'abscisse $\nu = \nu_{bc}$.

Le hamiltonien d'interaction V entre la molécule et les photons ν a un élément de matrice non nul entre les états $|b, n+1\rangle$ et $|c, n\rangle$: la molécule, dans l'état b , peut en effet absorber un photon et passer dans l'état c . Sous l'effet de V , le croisement de la figure 4 devient un anticroisement. La distance minimale $I'I''$ entre les états perturbés est proportionnelle à l'élément de matrice de V entre $|b, n+1\rangle$ et $|c, n\rangle$, donc à $\sqrt{n+1}$ (élément de matrice de l'opérateur d'annihilation d'un photon), c'est-à-dire encore au champ électrique de l'onde lumineuse.

On voit également sur la figure 4 que, sous l'effet du couplage, le niveau $|a, n\rangle$ est légèrement déplacé. Ceci provient d'un anticroisement du niveau $|a, n\rangle$ avec le niveau $|c, n-1\rangle$ (non représenté sur la figure). L'abscisse du centre de cet anti-

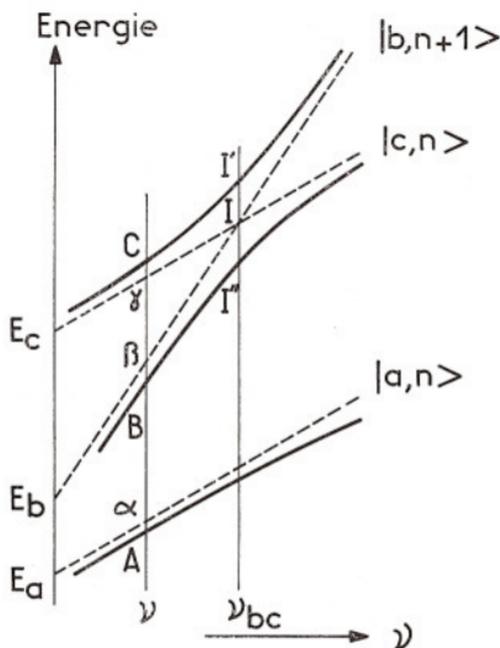


FIG. 4

croisement, ν_{ac} , est supérieure à ν_{bc} , de sorte que pour $\nu \leq \nu_{bc}$ on ne voit que la « queue » de l'anticroisement.

Soient A, B, C les niveaux perturbés correspondant à une valeur donnée de ν ; α , β , γ les niveaux non perturbés. Le vecteur d'état $|\bar{C}\rangle$ du niveau perturbé C s'écrit :

$$|\bar{C}\rangle = \cos \theta |c, n\rangle + \sin \theta |b, n+1\rangle \quad (4)$$

où θ est entièrement calculable en fonction de ν , ν_{bc} , V (diagonalisation d'une matrice 2×2). On a de même :

$$|\bar{B}\rangle = -\sin \theta |c, n\rangle + \cos \theta |b, n+1\rangle. \quad (5)$$

Lorsque $\nu = \nu_{bc}$, on trouve que $\theta = -\pi/4$, de sorte qu'on a les combinaisons linéaires antisymétriques et symétriques de $|c, n\rangle$ et $|b, n+1\rangle$. Si ν est très différent de ν_{bc} , θ est petit : on peut dire que $|\bar{C}\rangle$ (ou $|\bar{B}\rangle$) résulte d'une légère contamination de $|c, n\rangle$ (ou $|b, n+1\rangle$) par $|b, n+1\rangle$ (ou $|c, n\rangle$). ν étant fixé, cette contamination est d'autant plus importante que le nombre de photons ν est plus grand. Enfin, pour $|\bar{A}\rangle$, nous négligeons pour simplifier la contamination de $|a, n\rangle$ par $|c, n-1\rangle$ (on pourrait en tenir compte aisément) de sorte que :

$$|\bar{A}\rangle = |a, n\rangle. \quad (6)$$

C) Absorption du spectre continu par la molécule habillée

$\nu \neq \nu_{bc}$ étant fixé, les fréquences d'absorption de (5) sont $\nu_{AC} = \frac{E_C - E_A}{h}$ et $\nu_{AB} = \frac{E_B - E_A}{h}$. ν_{AC} et ν_{AB} sont voisines de $\nu_{\alpha\gamma} = \frac{E_\gamma - E_\alpha}{h} = \nu_{ac}$ et $\nu_{\alpha\beta} = \frac{E_\beta - E_\alpha}{h} = \frac{E_b - E_a}{h} + \nu = \nu_0$ (relation (3)).

Nous retrouvons ainsi très simplement l'existence de deux fréquences d'absorption pour le spectre continu, ν_{AC} et ν_{BC} voisines de ν_{ac} et ν_0 . Mais nous voyons en plus que ν_{AC} et ν_{BC} diffèrent légèrement de ν_{ac} et ν_0 , à cause des valeurs non nulles de γC , βB , αA qui sont des quantités petites, proportionnelles à θ^2 et par suite à l'intensité lumineuse à la fréquence ν . Ces déplacements radiatifs sont du type de ceux étudiés par Javan par une autre méthode [11].

Passons maintenant à l'étude de l'intensité des raies d'absorption. Si P est l'opérateur dipole électrique de la molécule, les intensités I_{AC} et I_{AB} des deux raies d'absorption sont respectivement proportionnelles à $|\langle \bar{A} | P | \bar{C} \rangle|^2$ et $|\langle \bar{A} | P | \bar{B} \rangle|^2$. Comme P commute avec les variables du champ laser, il ne peut changer n et on en déduit très aisément :

$$\begin{aligned} I_{AC} &\sim \cos^2 \theta |P_{ac}|^2 \\ I_{AB} &\sim \sin^2 \theta |P_{ac}|^2 \end{aligned} \quad (7)$$

P_{ac} étant l'élément de matrice de P entre a et c .

Loin du point d'anticroisement, θ est petit, la raie d'absorption de résonance ν_{AC} est beaucoup plus intense que la raie Raman inverse ν_{AB} . Si on augmente l'intensité lumineuse à la fréquence ν , l'intensité de la raie ν_{AC} varie peu ($\cos^2 \theta \sim 1 - \frac{\theta^2}{2} \sim 1$). Par contre, celle de la raie Raman inverse augmente proportionnellement à θ^2 ($\sin^2 \theta \sim \theta^2$) et donc à l'intensité lumineuse à la fréquence ν . La raie Raman inverse est donc très sensible à l'intensité d'irradiation ν .

Au point d'anticroisement ($\nu = \nu_{bc}$), on ne peut plus séparer nettement raie de résonance et raie Raman inverse, le mélange

entre les états $|b, n + 1\rangle$ et $|c, n\rangle$ étant alors total. Lorsque, à intensité constante de l'irradiation ν , ν se rapproche de ν_{bc} , les raies d'absorption ν_{AB} et ν_{AC} se rapprochent l'une de l'autre; l'intensité de ν_{AC} diminue, celle de ν_{BC} augmente, leur somme restant constante ($\cos^2 \theta + \sin^2 \theta = 1$). Lorsque $\nu = \nu_{bc}$, les deux raies ont une intensité égale et sont à une distance minimum l'une de l'autre, proportionnelle au champ électrique de l'onde laser. Puis, si ν augmente encore, les deux raies s'éloignent de nouveau.

Finalement, l'effet que nous venons de décrire n'est autre que l'effet Autler-Townes [12], dont nous donnons ainsi une nouvelle démonstration, peut-être plus simple et plus parlante grâce au diagramme de la figure 4.

Conclusion

En conclusion, dans les deux cas traités, nous avons quantifié soit un champ de radiofréquence (première partie), soit le champ optique d'un laser (deuxième partie). Ceci peut paraître compliqué, puisque dans les deux cas, le nombre de photons étant très grand, le traitement classique est entièrement valable. En fait, nous espérons avoir montré que la quantification de ces deux champs permet au contraire d'introduire des images plus globales, très simples et très utiles, les difficultés mathématiques ne dépassant jamais celles de la diagonalisation d'une matrice 2×2 .

BIBLIOGRAPHIE

- [1] N. POLONSKY et C. COHEN-TANNOUDJI, *J. Phys.*, 26, 1965, 409.
- [2] C. COHEN-TANNOUDJI et S. HAROCHE, *C.R. Ac. Sci.*, 262, 1966, 37.
C. COHEN-TANNOUDJI, Cours donné à l'École d'été de Cargèse, Session 1967, Gordon & Breach (à paraître).
- [3] J.-M. WINTER, Thèse, Paris, 1958; *Ann. de Phys.*, 4, 1959, 745.
- [4] F. D. COLEGROVE, P. A. FRANKEN, R. R. LEWIS, R. H. SANDS, *Phys. Rev. Lett.*, 3, 1959, 420.
P. A. FRANKEN, *Phys. Rev.*, 121, 1961, 508.
- [5] J. N. DODD, G. W. SERIES, *Proc. Roy. Soc., A* 263, 1961, 353.
J. N. DODD, G. W. SERIES, M. J. TAYLOR, *Proc. Roy. Soc., A* 273, 1963, 41.
- [6] C. COHEN-TANNOUDJI et S. HAROCHE, *C. R. Ac. Sci.*, 261, 1965, 5400.
S. HAROCHE, Thèse 3^e cycle, Paris, 1967.

- [7] E. B. ALEXANDROV, O. B. CONSTANTINOV, B. I. PERELI, B. A. KHODOVOY, *Theor. Phys. USSR*, 45, 1963, 503.
C.-J. FAVRE, E. GENEUX, *Phys. Letters*, 8, n° 3, 1964, 190.
N. POLONSKY, C. COHEN-TANNOUDJI, *C. R. Ac. Sci.*, 260, 1965, 5231.
- [8] M. H. L. PRYCE, *Phys. Rev.*, 77, 1950, 136.
- [9] C. COHEN-TANNOUDJI, S. HAROCHE, *C. R. Ac. Sci.*, 262, 1966, 268.
- [10] W. J. JONES, B. P. STOICHEFF, *Phys. Rev. Letters*, 13, 1964, 657.
- [11] A. JAVAN, *Proc. of Intern. School of Physics « E. Fermi »*, Course XXXI (Acad. Press, New York, 1964), p. 284.
- [12] S. H. AUTLER, C. H. TOWNES, *Phys. Rev.*, 100, 1955, 703.
C. H. TOWNES, A. L. SCHAWLOW, *Microwave Spectroscopy*, McGraw Hill, 1955, p. 279.