Survol de la Spectroscopie Hertzienne (suite)

D. Résonances de cohérence.

① Existence de croisements de niveaux dans le diagramme de l'atome habillé.

Existence de valeurs de ω_0 où 2 niveaux non-perturbés se croisent (donc, possibilité a priori de transitions multiphotoniques), mais ne sont couplés à aucun ordre par V, de sorte que les niveaux perturbés correspondants, éventuellement déplacés, continuent à se croiser (pas d'anticroisement d'ordre supérieur)

Exemples

(i) RF polarisation σ^+ (champ RF tournant $\perp$ à $\vec{B}_0$)

Pb exactement soluble : on obtient une série d'hyperboles (fig. 1) et un certain nombre de croisements de niveaux perturbés apparaissent.

Quand ω_1 augmente, la distance entre les 2 sommets augmente et les 2 croisements entourés d'un rond se rapprochent l'un de l'autre.

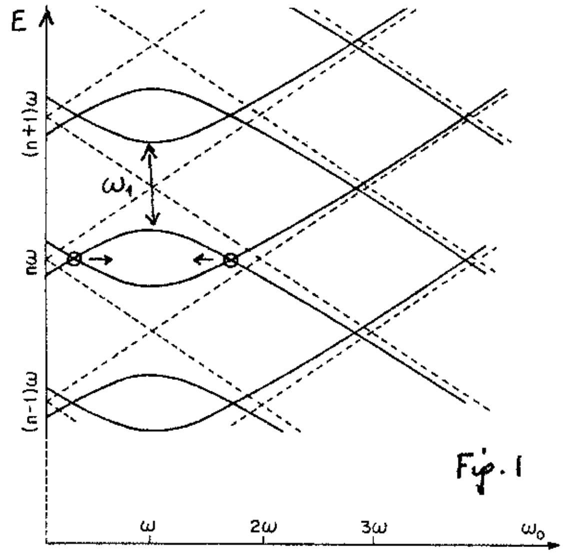


Fig. 1

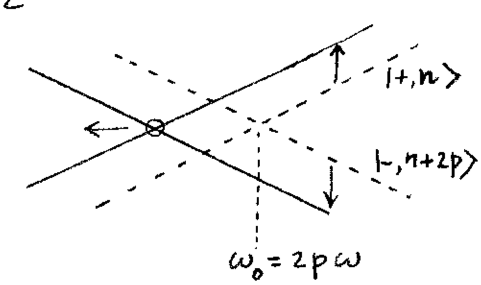
(ii) RF Polarisation σ (Polaris. linéaire $\perp$ à $\vec{B}_0$)

$|+,n\rangle$ et $|-,n+2p\rangle$ se croisent en $\omega_0 = 2p\omega$ $(p = 0, 1, 2, 3 \cdots)$

Necessité d'absorber un nombre impair de photons (σ_+ ou σ_-) pour passer de $|-\rangle$ à $|+\rangle$ $(\Delta M = 1)$, alors que les états qui se croisent diffèrent par un nombre pair de photons. Donc aucun couplage possible à tous les ordres

$|+,n\rangle$ couplé à $|-,n\pm1\rangle$ situés au dessous de lui au voisinage de $\omega_0 = 2p\omega$ est déplacé vers le haut (fig. 2). De même $|-,n+2p\rangle$ couplé à $|+,n+2p\pm1\rangle$ situés au dessus est déplacé vers le bas. Donc le croisement est déplacé vers les champs bas (en ω_1^2).

Fig. 2



(iii) RF Polarisation π (Polaris. linéaire // à $\vec{B}_0$)

Croisement en $\omega_0 = p\omega$ de $|-,n+p\rangle$ et $|+,n\rangle$ $(p = 0, 1, 2 \cdots)$

Les photons π ont un moment cinétique nul / Oz. Donc, absorber un nombre quelconque de photons π ne peut apporter le moment cinétique nécessaire au basculement du spin de $|-\rangle$ à $|+\rangle$.

Conclusion. En ces points de croisement, des arguments de symétrie interdisent aux transitions multiphotoniques correspondantes de satisfaire à la fois la conservation de l'énergie globale et celle du moment cinétique global $\longrightarrow$ impossibilité de transitions multiphotoniques réelles entre les 2 états atomiques.

② Existence de signaux résonnants observables en ces points de croisement.

Analogie avec les résonances de croisement de niveaux d'un atome libre, bien connues en Physique Atomique (effets Hanle, Franken).

La contamination des états perturbés qui se croisent par d'autres états non-perturbés lointains (interprétation de ces contaminations en termes d'absorption ou d'émissions virtuelles de photons par l'atome) est responsable de l'apparition d'une fréquence de Bohr très basse (nulle au point de croisement) sur les grandeurs atomiques "transversales" (perpendiculaires au champ statique $\vec{B}_0$).

Si l'on effectue un pompage optique transversal (préparation initiale du spin dans un état propre de J_x ou J_y), possibilité d'annuler la précession de Larmor du moment transversal atomique au point de croisement puisqu'il n'évolue pas en ce point, donc de l'accumuler. Donc résonances apparaissant sur des signaux proportionnels à ce moment transversal.

Exemple : résonance $\omega_0 = 2\omega$ (en polarisation σ^+ ou σ)

$$\left\{\begin{array}{l} |-,n+2\rangle \rightarrow \overline{|-,n+2\rangle} = |-,n+2\rangle + \varepsilon\,|+,n+1\rangle + \cdots \\ |+,n\rangle \rightarrow \overline{|+,n\rangle} = |+,n\rangle + \varepsilon'\,|-,n+1\rangle + \cdots \end{array}\right. \qquad (IV-1)$$

$$\langle\overline{-,n+2}|\,J_x\,|\overline{+,n}\rangle = \varepsilon\varepsilon'\langle +,n+1|\,J_x\,|-,n+1\rangle + \cdots = \varepsilon\varepsilon' + \cdots \neq 0 \qquad (IV-2)$$

Donc existence d'une composante basse fréquence dans le mouvement de $\langle J_x\rangle$, de fréquence nulle au point de croisement des 2 états perturbés ($\omega_0 \sim 2\omega$)

③ Quelques résultats expérimentaux

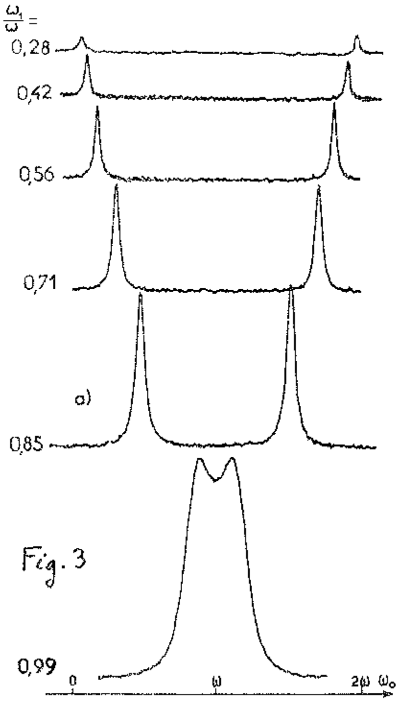


Fig. 3

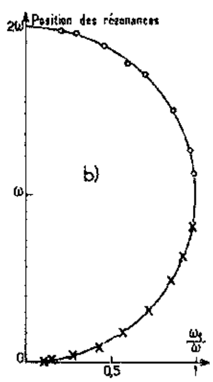


Fig. 4

(i) Polarisation σ^+

Voir M. Le Dourneuf thèse 3ème cycle Paris 1972

Fig 3 : Résonances $\omega_0 \simeq 0$ et $\omega_0 \simeq 2\omega$ pour des valeurs croissantes de ω_1. Le déplacement des 2 résonances l'une vers l'autre quand $\omega_1 \nearrow$ apparaît clairement. (J_x n'a pas d'élément de matrice entre les états perturbés qui se croisent en $\omega_0 = 3\omega, 4\omega, 5\omega \ldots$, donc pas d'autres résonances)

Fig 4 : Position des 2 résonances en fonction de ω_1/ω (Prédictions théoriques : 1/2 cercle)

(ii) Polarisation σ

voir S. Haroche thèse 3ème cycle Paris 1967
C. Cohen-Tannoudji et S. Haroche C.R. (1965), 261, 5400

Fig 5 : Résonance $\omega_0 = 2\omega$ pour diverses valeurs de ω_1 (repérées par le voltage V_1 de la RF)

Fig. 6 : Résonance $\omega_0 = 4\omega$ pour diverses valeurs de ω_1

Les déplacements radiatifs des résonances apparaissent clairement.

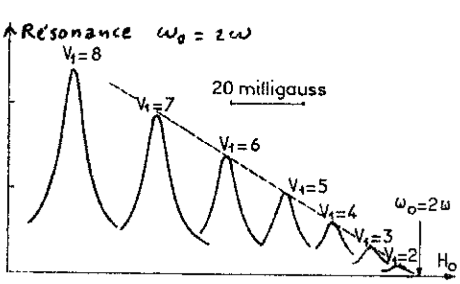


Fig. 5

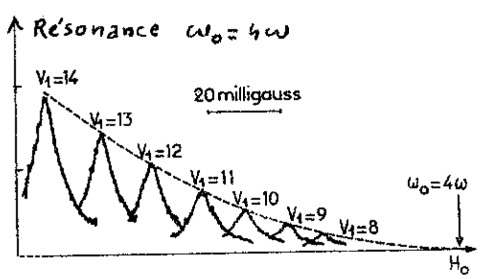


Fig. 6

Intérêt des résonances de cohérence : très fines. S'élargissent très peu quand ω_1 croît.

Aucun élargissement radiatif en polarisation π (N. Polonsky Thèse 3e cycle Paris 1966).

Très faible élargissement en σ^+ ou σ (dû à la variation de pente des niveaux qui se croisent)

Possibilité de tester de manière beaucoup plus précise que pour les résonances magnétiques ordinaires (qui s'élargissent beaucoup plus vite) les termes d'ordre > dans le déplacement radiatif. (C. Fabre, références citées plus haut).

E. Modification des propriétés magnétiques de l'atome habillé

① Position du problème

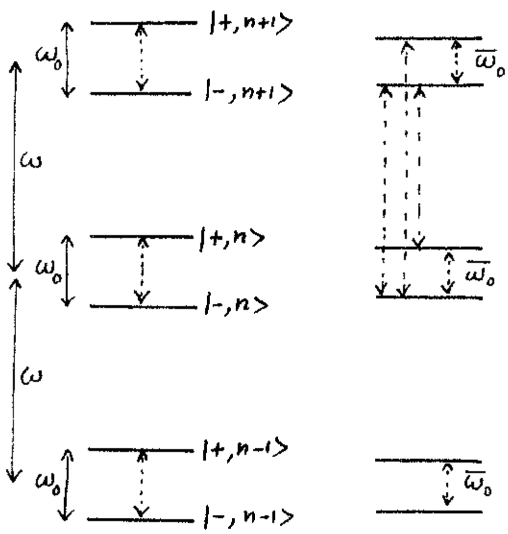


Fig. 7a Fig 7b

– On considère un spin 1/2 dans un champ statique B_0. Fréquence de Larmor ω_0

Photons RF : Fréquence ω

On suppose le champ statique très faible

$$\omega \gg \omega_0 \qquad (IV-3)$$

– On néglige d'abord le couplage entre le spin et les photons RF. La fig. 7a donne les niveaux non perturbés de l'atome habillé. La seule fréquence de Bohr apparaissant dans le mouvement du spin est ω_0 (flèche verticale en pointillés) (fig. 7b)

– On introduit le couplage : les niveaux sont légèrement déplacés et les fonctions d'onde contaminées. Quelles sont les manifestations physiques de ce couplage ?

(i) Nouvelles fréquences de Bohr apparaissant au voisinage de ω : mouvement forcé du spin dans le champ RF

(ii) Modification du mouvement basse fréquence. La fréquence change de ω_0 à $\overline{\omega}_0$ (Si $\omega_0 - \overline{\omega}_0$ est proportionnel à ω_0, interprétation de cet effet comme dû à une variation du facteur g). Par suite de la contamination des fonctions d'ondes, la précession de Larmor n'est plus circulaire (anisotropie des propriétés magnétiques)

– Dans ce §, nous nous attachons à l'étude du point (ii) : Modification des propriétés magnétiques d'un spin 1/2 interagissant avec des photons RF haute fréquence non résonnants.

– On se limite à une polarisation RF linéaire σ, $\perp$ à $\vec{B_0}$

Hamiltonien

$$H = \underbrace{\omega_0 J_z + \omega a^+ a}_{H_0} + \underbrace{\lambda J_x (a + a^+)}_{V} \qquad (IV-4)$$

Comme $\omega_0 \ll \omega$, on ne fait pas r.w.a.

Lien entre la constante de couplage $\lambda = -\gamma \beta_0$ et la fréquence $\omega_1 = -\gamma B_1$ associée au champ classique $B_1 \cos \omega t \, \vec{e}_x$.

$$\omega_1 = 2 \lambda \sqrt{n} \qquad (IV-5)$$

② Etude perturbative $\omega_1 \ll \omega$

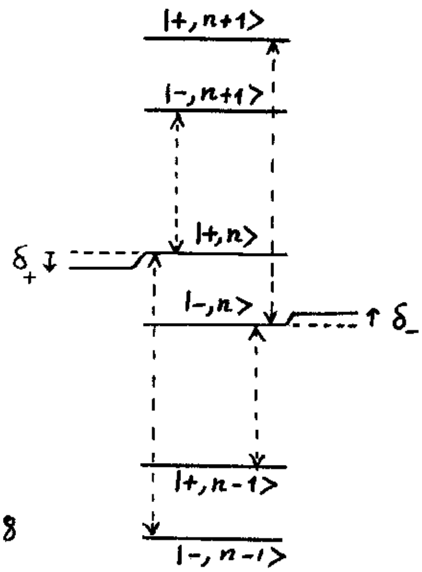


Fig. 8

(i) Modification fréquence de Larmor

- L'état non perturbé $|+,n\rangle$ est couplé par V à $|-,n+1\rangle$ et $|-,n-1\rangle$ (flèches verticales partant de $|+,n\rangle$ sur la fig. 8). D'après (IV-4) et (IV-5) les 2 éléments de matrice correspondants de V sont égaux et valent $\omega_1/4$.

  $|-,n+1\rangle$ repousse $|+,n\rangle$ vers le bas, $|-,n+1\rangle$ repousse $|+,n\rangle$ vers le haut. Comme $|-,n+1\rangle$ est plus proche (distance $\omega-\omega_0$) que $|-,n-1\rangle$ (distance $\omega+\omega_0$), le déplacement global δ_+ de $|+,n\rangle$ est négatif et vaut :

$$\delta_+ = \left(\frac{\omega_1}{4}\right)^2\left[-\frac{1}{\omega-\omega_0}+\frac{1}{\omega+\omega_0}\right] = -\frac{\omega_1^2\omega_0}{8(\omega^2-\omega_0^2)} \simeq -\frac{\omega_1^2\omega_0}{8\omega^2}$$

car $\omega \gg \omega_0$ (IV-6)

- Un calcul analogue montre que le déplacement δ_- de $|-,n\rangle$ est positif et égal à $-\delta_+$.

- Finalement, la fréquence de Larmor ω_0 devient $\bar{\omega}_0$ où

$$\bar{\omega}_0 = \omega_0+\delta_+-\delta_- = \omega_0+2\delta_+ = \omega_0 - \frac{\omega_1^2}{4\omega^2}\omega_0 = \omega_0\left(1-\frac{\omega_1^2}{4\omega^2}\right) \quad \text{(IV-7)}$$

Tout se passe comme si le facteur g était diminué par un facteur $\left(1-\frac{\omega_1^2}{4\omega^2}\right)$

$$g \to \bar{g} = g\left(1-\frac{\omega_1^2}{4\omega^2}\right) \quad \text{(IV-8)}$$

- Interprétation classique de cet effet

Fig. 9

le spin effectue un mouvement de précession forcé autour de $\vec{B}_1\cos\omega t$, à la fréquence $\omega \gg \omega_0$. Au cours de ce mouvement de précession, il garde une longueur constante (fig. 9), de sorte que la résultante moyenne au cours d'une période a une longueur plus petite (traits pointillés de la fig. 9).

(ii) Modification de la précession de Larmor

- Etats perturbés

$$|+,n\rangle \to \overline{|+,n\rangle} = N_+\left[|+,n\rangle - \frac{\omega_1}{4(\omega-\omega_0)}|-,n+1\rangle + \frac{\omega_1}{4(\omega+\omega_0)}|-,n-1\rangle + \cdots\right]$$

$$|-,n\rangle \to \overline{|-,n\rangle} = N_-\left[|-,n\rangle - \frac{\omega_1}{4(\omega+\omega_0)}|+,n+1\rangle + \frac{\omega_1}{4(\omega-\omega_0)}|+,n-1\rangle + \cdots\right] \quad \text{(IV-9)}$$

$N_\pm$ coefficients de normalisation $\quad N_+ = N_- \simeq 1 - \frac{\omega_1^2}{16}\left(\frac{1}{(\omega-\omega_0)^2}+\frac{1}{(\omega+\omega_0)^2}\right)$

- On en déduit :

$$\overline{\langle -,n}|J_x|\overline{+,n\rangle} = N^2\,\frac{1}{2}\left[1+\frac{\omega_1^2}{8(\omega^2-\omega_0^2)}\right]$$

$$\overline{\langle -,n}|J_y|\overline{+,n\rangle} = N^2\,\frac{i}{2}\left[1-\frac{\omega_1^2}{8(\omega^2-\omega_0^2)}\right] \quad \text{(IV-10)}$$

Alors que $|\langle -,n|J_x|+,n\rangle| = |\langle -,n|J_y|+,n\rangle|$, $|\overline{\langle -,n}|J_x|\overline{+,n\rangle}| > |\overline{\langle -,n}|J_y|\overline{+,n\rangle}|$

La précession de Larmor ne se fait plus sur un cercle.

③ Traitement non perturbatif (à tous les ordres en ω_1/ω)

(i) Diagonalisation de l'hamiltonien en champ statique nul

- Pour $\omega_0 = 0$, $$H = H'_0 = \omega a^+ a + \lambda J_x (a + a^+) \qquad (IV\text{-}11)$$

- Séparation de l'espace des états en 2 sous-espaces $\mathcal{E}_+$ et $\mathcal{E}_-$.

$$\begin{aligned} \mathcal{E}_+ &: \quad \{ |+\rangle_x \otimes |n\rangle \quad , n = 0,1,2 \cdots \} \\ \mathcal{E}_- &: \quad \{ |-\rangle_x \otimes |n\rangle \quad , n = 0,1,2 \cdots \} \end{aligned} \qquad (IV\text{-}12)$$

$|\pm\rangle_x$ états propres de J_x : $\qquad J_x |\pm\rangle_x = \pm \frac{1}{2} |\pm\rangle_x \qquad (IV\text{-}13)$

- $\mathcal{E}_+$ et $\mathcal{E}_-$ sont séparément invariants sous l'effet de H'_0.
Dans $\mathcal{E}_+$, H'_0 devient $\quad \omega a^+ a + \frac{\lambda}{2}(a + a^+)$, c-à-d l'hamiltonien d'un oscillateur harmonique déplacé.
Dans $\mathcal{E}_-$, H'_0 devient $\quad \omega a^+ a - \frac{\lambda}{2}(a + a^+)$, c-à-d l'hamiltonien d'un oscillateur harmonique déplacé de la même quantité mais dans l'autre sens.
Ces 2 problèmes sont solubles. On en déduit les états propres et valeurs propres de H'_0. Les états propres se déduisent de $|+\rangle_x |n\rangle$ et $|-\rangle_x |n\rangle$ par des translations respectivement définies par $e^{-\frac{\lambda}{2\omega}(a^+ - a)}$ et $e^{\frac{\lambda}{2\omega}(a^+ - a)}$. Ces états propres s'écrivent donc :

$$|+\rangle_x \overline{|n_+\rangle} = |+\rangle_x \, e^{-\frac{\lambda}{2\omega}(a^+ - a)} |n\rangle \qquad (IV\text{-}14)$$
$$|-\rangle_x \overline{|n_-\rangle} = |-\rangle_x \, e^{\frac{\lambda}{2\omega}(a^+ - a)} |n\rangle \qquad (IV\text{-}15)$$

les valeurs propres associées à (IV-14) et (IV-15) étant toutes deux égales à

$$\left(n + \frac{1}{2}\right)\omega - \frac{\lambda^2}{4\omega} \qquad (IV\text{-}16)$$

- les états $\overline{|n_+\rangle}$ et $\overline{|m_-\rangle}$ ne sont pas orthogonaux même si $n \neq m$ car ils correspondent à des états $|n\rangle$ et $|m\rangle$ d'un oscillateur déplacés dans des sens différents

$$\overline{\langle n_+} | \overline{m_-\rangle} = \langle n | e^{\frac{\lambda}{\omega}(a^+ - a)} | m \rangle \qquad (IV\text{-}17)$$

En développant l'exponentielle en puissances de $\frac{\lambda}{\omega}$ (après avoir appliqué la formule de Glauber), on peut calculer le produit scalaire précédent sous forme d'un développement en séries entière de $\frac{\lambda}{\omega}$. On retrouve alors (en utilisant la formule IV-5) le développement en série d'une fonction de Bessel.

$$\overline{\langle n_+} | \overline{m_-\rangle} = J_{n-m}\left(\frac{\omega_1}{\omega}\right) \qquad (IV\text{-}18)$$

(Voir N. Polonsky : Thèse de 3° cycle Paris 1966
N. Polonsky et C. Cohen-Tannoudji J. Phys. (1965), 26, 409)

(ii) Pente des niveaux en champ nul. Facteur g de l'atome habillé

– Pour $\omega_0 \ll \omega$, on traite l'hamiltonien Zeeman $\omega_0 J_3$ comme une perturbation par rapport à H'_0 donné en IV-11.

– Les états propres de H'_0 se groupent en multiplicités dégénérées de dimension 2, sous-tendues par $|+\rangle_x |\bar{n}_+\rangle$ et $|-\rangle_x |\bar{n}_-\rangle$, et séparés les unes des autres par ω.

Il faut donc diagonaliser la matrice 2×2 représentant $\omega_0 J_3$ dans cette multiplicité, matrice qui s'écrit compte tenu de (IV-18)

$$\frac{\omega_0}{2} \begin{pmatrix} 0 & \langle \bar{n}_+ | \bar{n}_- \rangle \\ \langle \bar{n}_- | \bar{n}_+ \rangle & 0 \end{pmatrix} = \frac{\omega_0}{2} J_0\left(\frac{\omega_1}{\omega}\right) \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix} \qquad (IV-19)$$

et dont les valeurs propres sont $\pm \frac{\omega_0}{2} J_0\left(\frac{\omega_1}{\omega}\right)$

– On voit donc que le facteur g_h de l'atome habillé est relié au facteur g de l'atome libre par

$$g_h = g \; J_0\left(\frac{\omega_1}{\omega}\right) \qquad (IV-20)$$

Sous l'effet des absorptions et réémissions virtuelles de photons RF, le facteur g est donc considérablement modifié : il peut s'annuler et changer de signe (C. Cohen-Tannoudji et S. Haroche C.R. (1966), 262, 268)

(4) Liens avec les transitions à plusieurs quanta et les résonances de cohérence.

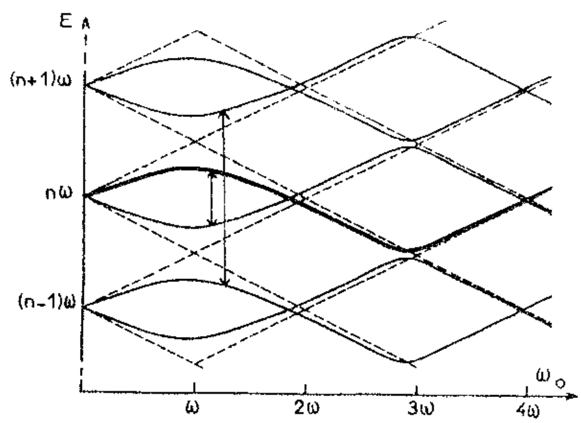


Fig 10. Diagramme d'énergie de l'atome habillé par des photons RF de polarisation σ (Traits pointillés : niveaux non perturbés)

On voit les anticroisements $\omega_0 = \omega$ et $\omega_0 = 3\omega$ correspondant à la résonance magnétique ordinaire et à la transition à 3 quanta.

On voit aussi les croisements $\omega_0 = 0$, $\omega_0 = 2\omega$ et $\omega_0 = 4\omega$ correspondant à des résonances de cohérence.

Quand $\omega_1 \nearrow$, tous les croisements et anticroisements se déplacent vers la gauche. La distance entre les 2 sommets des hyperboles aux anticroisements augmente.

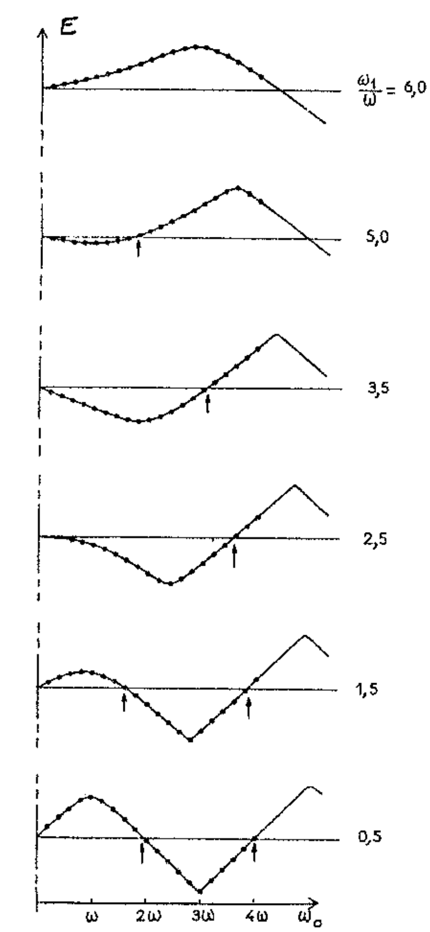


Fig. 11

On peut, pour chaque valeur de ω_0 (et pour une valeur donnée de ω_1) mesurer les fréquences de Bohr de l'atome habillé (flèches verticales), grâce à un 2^e champ sonde ou un pompage transversal en lumière modulée

Fig 11 : A partir des mesures des fréquences de Bohr associées aux flèches de la fig. 10, on peut, pour une valeur donnée de ω_1, déterminer expérimentalement la variation avec ω_0 de l'énergie d'un niveau perturbé de l'atome habillé, celui représenté en traits renforcés sur la fig 10.

La déformation de ce niveau d'énergie quand ω_1 croît est représentée sur la fig 11 pour des valeurs croissantes de ω_1/ω (points expérimentaux représentés par des points). Ces déformations se comprennent très bien à partir du déplacement des résonances à plusieurs quanta et des résonances de cohérence (les flèches verticales de la fig 11 représentent les positions des résonances de cohérence $\omega_0 = 2\omega$ et $\omega_0 = 4\omega$ dont on voit clairement le déplacement vers la gauche quand $\omega_1 \nearrow$).

On voit aussi clairement que la pente en $\omega_0 = 0$, c-à-d le facteur g_h de l'atome habillé, décroît, s'annule (quand la résonance de cohérence initialement en $\omega_0 = 2\omega$ pour $\omega_1 \ll \omega$ est arrivée en $\omega_0 = 0$), change de signe, s'annule de nouveau (quand la résonance de cohérence $\omega_0 = 4\omega$ arrive à son tour en $\omega_0 = 0$) et ainsi de suite ..., ce qui permet de bien comprendre la variation oscillante en $J_0(\frac{\omega_1}{\omega})$ de g_h.

En fait, les traits pleins de la fig. 11 représentent les courbes théoriques obtenues en diagonalisant par ordinateur l'hamiltonien de l'atome habillé sur une base tronquée comportant un nombre suffisant d'états non perturbés de part et d'autre de $|+,n\rangle$.
(C. Cohen-Tannoudji, C. Landré, J. Dupont-Roc et S. Haroche C.R (1970), 270, 73. C. Landré Thèse 3e cycle, Paris 1970)

5 Quelques résultats expérimentaux

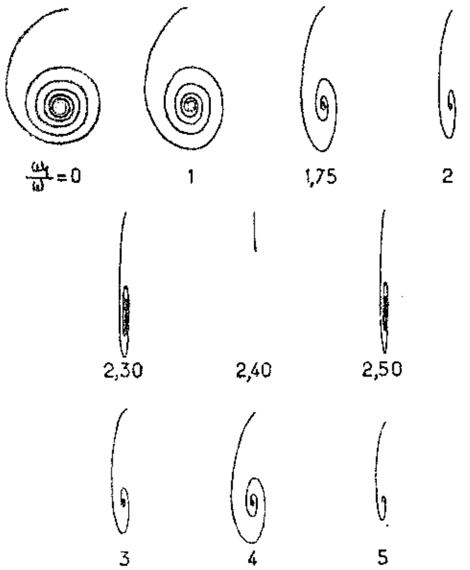


Fig 12

Fig 12 : Précession de Larmor d'atomes de 199Hg dans le plan xOy perpendiculaire à la direction Oz du champ statique $\vec{B}_0$, le champ RF $\vec{B}_1 \cos\omega t$ étant appliqué le long de Ox.

Les composantes $\langle J_x \rangle$ et $\langle J_y \rangle$ sont détectées au moyen de 2 faisceaux lumineux σ^+ se propageant le long de Ox et Oy.

Pour $\omega_1 = 0$, la précession est circulaire (l'amortissement est dû à la relaxation). Dès que ω_1 est $\neq 0$, le nombre de tours pendant le temps de relaxation diminue (g_h diminue) et la précession n'est plus circulaire mais elliptique.

La précession disparaît pour $\omega_1/\omega = 2.4$ (1er zéro de J_0)

(C. Landré, C. Cohen-Tannoudji, J. Dupont-Roc, S. Haroche J. Phys (1970), 31, 971)

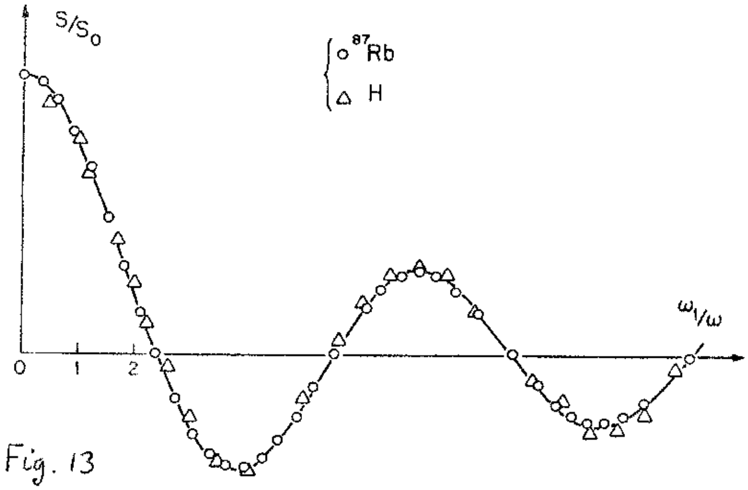


Fig. 13

Fig 13. Ecart des raies du spectre Zeeman hyperfin d'atomes ^{87}Rb et H habillés par des photons RF σ (utilisation d'un maser H pour H, et d'atomes de ^{87}Rb pompés optiquement pour ^{87}Rb)
Vérification de la loi en $J_0(\omega_1/\omega)$ (courbe en traits pleins de la fig. 13)
(S. Haroche, C. Cohen-Tannoudji, C. Audouin et J.P. Schermann Phys. Rev. Lett. (1970), 24, 861)

F. Conclusion : Avantages de l'approche atome habillé

- Existence d'un hamiltonien indépendant du temps. Généralisation à des polarisations quelconques de la R.F. des avantages du référentiel tournant de la théorie classique.

- Interprétation globale et synthétique des différents effets résonnants de la spectroscopie hertzienne.
  Sur des figures comme la fig 10, on voit d'un seul coup la résonance ordinaire et les résonances à plusieurs quanta, les résonances de cohérence, l'effet Autler-Townes...

- Interprétation et calcul précis des effets de saturation. Les positions des résonance sont reliées de manière précise à des caractéristiques géométriques des diagrammes d'énergie (points où la tangente est horizontale, croisements)
  Approche simple pour le calcul des termes d'ordre supérieur dans les déplacements radiatifs

- Compréhension qualitative des phénomènes dans des domaines où aucun calcul perturbatif n'est possible. Par exemple, on peut très bien comprendre qualitativement les déformations des diagrammes d'énergie de la fig 11.

- Interprétation corpusculaire des diverses résonances en termes d'émission et d'absorption réelles ou virtuelles de photons par l'atome.
  Lien entre la variation "stimulée" du facteur g (stimulée parce que produite par des photons incidents) et les effets "spontanés" de renormalisation de l'électrodynamique quantique (anomalie g-2 de l'électron). Problème intéressant : pourquoi g diminue-t-il pour un atome neutre interagissant avec des photons incidents non résonnants alors que g augmente pour un électron libre couplé aux fluctuations du vide ?