

ATOMES « HABILLES » PAR DES PHOTONS OPTIQUES OU DE RADIOFREQUENCES

INTRODUCTION

Lorsqu'on irradie un atome avec des photons dont la fréquence ν coïncide avec l'une des fréquences de Bohr atomiques $\left(\frac{E_2 - E_1}{h}\right)$, il se produit en général une absorption résonnante d'un photon avec passage de l'atome du niveau inférieur $|E_1\rangle$ au niveau supérieur $|E_2\rangle$. Si le niveau $|E_1\rangle$ est le niveau fondamental, le niveau $|E_2\rangle$ le niveau excité de résonance et si les photons incidents sont polarisés, on sait qu'il apparaît des différences de population entre les divers sous-niveaux Zeeman de $|E_2\rangle$. La retombée de l'atome dans l'état fondamental par **émission spontanée** d'un photon fait apparaître également des différences de population entre les sous-niveaux Zeeman de $|E_1\rangle$. C'est le principe bien connu du **pompage optique** qui permet de transférer aux atomes une partie du moment cinétique transporté par les photons polarisés. L'inégalité de population ainsi réalisée entre les sous-niveaux Zeeman de $|E_2\rangle$ ou $|E_1\rangle$ peut être ensuite modifiée par des absorptions résonnantes de photons de radiofréquence ; la mesure précise de ces fréquences de résonance fournit des informations précieuses sur la structure interne des niveaux $|E_2\rangle$ et $|E_1\rangle$.

Les considérations précédentes pourraient faire croire que les effets de l'interaction entre l'atome et les photons incidents ne se manifestent qu'à résonance, c'est-à-dire lorsque l'énergie globale est conservée à l'issue du processus d'absorption. En fait, il n'en est rien et le but de ce qui suit est de décrire quelques effets liés au couplage entre un atome et des photons optiques ou de radiofréquence non résonnants. La conservation de l'énergie est en effet moins stricte en mécanique quantique qu'en mécanique classique, et le système global atome+champ électromagnétique peut passer intermédiairement par des états dont l'énergie est différente de celle de l'état initial et final, pourvu que la durée de cette transition intermédiaire, appelée encore **transition virtuelle**, soit suffisamment courte (inférieure à $\frac{\hbar}{\Delta E}$, où ΔE est le défaut d'énergie). L'atome peut donc absorber et réémettre virtuellement les photons non résonnants qui arrivent sur lui ; pour visualiser ce processus, on dit que l'atome est « **habillé** » par les photons du champ dans lequel il est plongé. Ses propriétés physiques ne sont plus les mêmes que celles de l'atome isolé.

Les effets étudiés ci-dessous peuvent être qualifiés de « **stimulés** » dans la mesure où ils sont provoqués par des photons incidents. Il existe également des effets « **spontanés** » bien connus qui apparaissent en l'absence de tout photon incident et qui jouent un rôle fondamental en électrodynamique quantique. C'est ainsi qu'un atome ou un électron, isolé peut émettre spontanément un photon et le réabsorber virtuellement. On peut montrer qu'il en résulte entre autres effets un déplacement des niveaux atomiques appelé « **Lamb-shift** » et une anomalie du moment magnétique de spin de l'électron libre par rapport à la valeur prévue par la théorie de Dirac (anomalie $g-2$). On peut établir un parallèle étroit entre ces effets spontanés et les effets stimulés qui apparaissent lors d'une irradiation non résonnante.

1.- Interaction d'un atome avec des photons optiques non résonnants.

On se propose d'étudier l'effet d'une irradiation lumineuse non résonnante sur l'état fondamental d'un atome. Auparavant rappelons quelques propriétés de l'émission spontanée.

1.1. Emission spontanée

Un atome est initialement dans le niveau excité $|e\rangle$ d'énergie E_0 au dessus du fondamental (Fig.1a). L'interaction avec le champ électromagnétique couple cet état à toute une série d'autres états où l'atome se trouve dans le niveau fondamental $|f\rangle$ en présence d'un photon d'énergie E (Fig.1b). La résolution de l'équation de Schrödinger du système permet de montrer que, sous l'effet de ce couplage, l'énergie E_0 de l'état initial doit être remplacée par

$$E_0 \rightarrow E_0 + \Delta E - i\frac{\Gamma}{2} \quad (1)$$

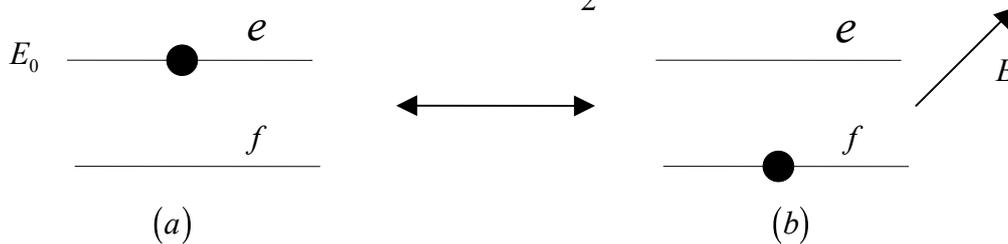
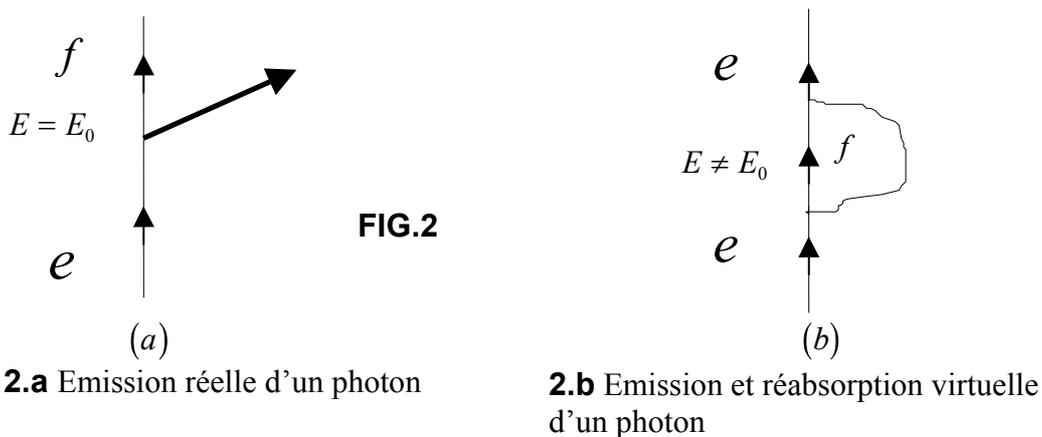


FIG.1.- Etats du système intervenant dans le processus d'émission spontanée.

où ΔE et Γ sont des constantes réelles. Le facteur d'évolution temporelle en $e^{-\frac{i}{\hbar}E_0t}$ devient par suite

$$e^{-\frac{i}{\hbar}E_0t} \rightarrow e^{-\frac{i}{\hbar}(E_0+\Delta E)t} e^{-\frac{\Gamma t}{2}} \quad (2)$$

et la probabilité de trouver l'atome dans l'état excité décroît exponentiellement en $e^{-\Gamma t}$. Cette évolution irréversible de l'état excité est due à la possibilité pour l'atome d'émettre réellement un photon (Fig.2a) avec conservation de l'énergie globale : $E = E_0$. Si $E \neq E_0$, le couplage entre les états des figures 1a et 1b continue cependant d'exister et peut être décrit en termes d'émissions et de réabsorptions virtuelles d'un photon par l'atome (Fig.2b). Ce sont ces processus qui sont responsables du déplacement en énergie ΔE de l'état excité (Lamb-shift).



2.a Emission réelle d'un photon

2.b Emission et réabsorption virtuelle d'un photon

2.- Etude du processus d'absorption

L'état initial correspond maintenant à l'atome dans le niveau $|f\rangle$ en présence d'un photon incident d'énergie E_i (Fig.3.a). Cet état est couplé aux états des figures 3.b et 3.c, d'énergie E_0 et E déjà décrits plus haut.

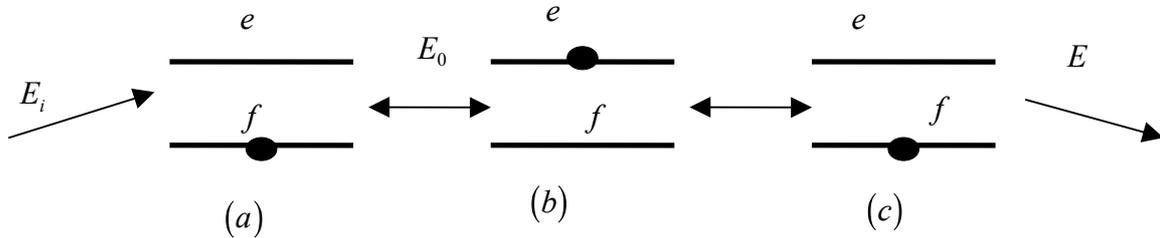
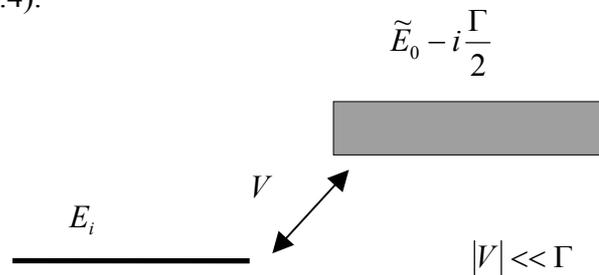


FIG.3.- Etats du système intervenant dans le processus d'absorption

Pour déterminer l'évolution du système, on peut prendre le point de vue simple suivant : dans le domaine optique, l'absorption est faible devant l'émission spontanée ; le couplage entre l'état 3b et l'ensemble des états 3c (l'énergie E et la direction du photon émis peuvent être quelconques). L'évolution de l'état 3b est donc essentiellement déterminée par le couplage avec 3c et peut être décrite, comme nous l'avons vu plus haut, en remplaçant E_0 par $\tilde{E}_0 - i\frac{\Gamma}{2}$ (avec $\tilde{E}_0 = E_0 + \Delta E$). On est alors ramené à un problème plus simple où l'état initial d'énergie E_i est couplé à un seul état dont l'énergie est complexe $\left(\tilde{E}_0 - i\frac{\Gamma}{2}\right)$, c'est-à-dire possédant une certaine largeur (Fig.4).



FIF.4.- Modèle simple pour l'étude du processus d'absorption.

Si V désigne ce couplage, il s'agit de diagonaliser la matrice

$$\begin{pmatrix} E_i & V \\ V^* & \tilde{E}_0 - i\frac{\Gamma}{2} \end{pmatrix} \quad (3)$$

avec la condition $|V| \ll \Gamma$ (4) puisque l'absorption est faible devant l'émission spontanée.

La matrice (3) étant non hermitique, celle de ses valeurs propres qui tend vers E_i lorsque $|V|$ tend vers zéro est en général complexe. L'effet du couplage est donc de remplacer E_i par

$$E_i \rightarrow E_i + \Delta' - i\frac{\Gamma'}{2} \quad (5)$$

où Δ' et Γ' sont des quantités réelles que l'on peut interpréter comme représentant respectivement le déplacement et l'instabilité (ou encore l'élargissement) de l'état fondamental dus à l'interaction avec le photon incident. 2 cas sont particulièrement intéressants à étudier.

i) $E_i = \tilde{E}_0$ le photon incident est en résonance avec l'énergie \tilde{E}_0 de la transition atomique (énergie E_0 corrigée du Lamb-shift ΔE). On trouve alors aisément que :

$$\begin{cases} \Delta' = 0 & (6a) \\ \Gamma' = \Gamma \left(\frac{|V|^2}{\Gamma} \right) & (6b) \end{cases}$$

Le déplacement de l'état fondamental est nul. Par contre, l'instabilité de l'état excité est partiellement communiquée à l'état fondamental. (Notons que si Γ était nul, le couplage entre les deux états non perturbés de même énergie aurait eu au contraire pour effet de repousser les deux états d'une quantité proportionnelle à $|V|$, sans leur conférer aucune instabilité. C'est d'ailleurs ce que l'on trouverait à partir de (3) si l'on prenait la limite $|V| \gg \Gamma$, opposée de (4).)

ii) $|E_i - \tilde{E}_0| \gg \Gamma$. Le photon incident est non résonnant puisque son énergie diffère de celle de la transition atomique d'une quantité supérieure à la largeur naturelle du niveau excité. On trouve alors que

$$\begin{cases} \Delta' = \frac{|V|^2}{E_i - \tilde{E}_0} & (7a) \\ \Gamma' = \Gamma \left(\frac{|V|}{E_i - \tilde{E}_0} \right) & (7b) \end{cases}$$

Dans ce cas, l'état fondamental est déplacé d'une quantité supérieure à son élargissement puisque

$$\frac{|\Delta'|}{\Gamma'} = \frac{|E_i - \tilde{E}_0|}{\Gamma} \gg 1 \quad (8)$$

On voit d'autre part sur (7a) que le signe de Δ' est le même que celui de $E_i - \tilde{E}_0$.

On voit également que ce sont les processus d'absorption réelle d'un photon incident ($E_i = \tilde{E}_0$) qui sont à l'origine de l'élargissement de l'état fondamental. Lorsque les photons incidents sont non résonnants ($E_i \neq \tilde{E}_0$) ils ne peuvent qu'être absorbés et réémis virtuellement. De tels processus ont cependant une importance physique importante : ils déplacent le niveau fondamental. Les conséquences de l'interaction atome-photon se manifestent également sur le photon par apparition dans l'indice de réfraction d'une partie réelle et d'une partie imaginaire décrivant respectivement les phénomènes de dispersion anormale et d'absorption. En particulier, on peut considérer que le photon ne se propage pas pendant qu'il est absorbé virtuellement par l'atome, ce qui explique la modification de sa vitesse de propagation.

Interaction d'un atome avec des photons de radiofréquence non résonnants.

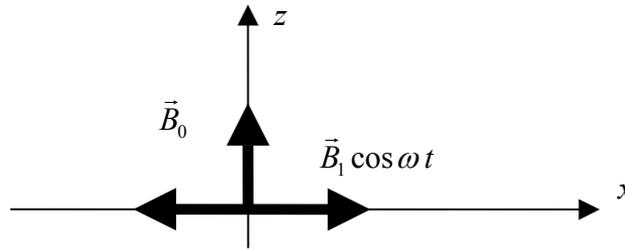
1. Etats du système global atome + champ RF

Considérons un spin $\frac{1}{2}$, \hat{I} , plongé dans un champ statique \vec{B}_0 parallèle à Oz et un champ RF de pulsation ω dont on ne précise pas pour l'instant la polarisation.

En l'absence de tout couplage entre les deux systèmes, les états d'énergie du spin sont les états propres $|+\rangle$ et $|-\rangle$ de I_z , d'énergie $+\frac{\hbar\omega_0}{2}$ et $-\frac{\hbar\omega_0}{2}$ avec $\omega_0 = -\gamma B_0$. Les états du champ RF sont les états $|n\rangle$ comprenant n photons, et d'énergie $n\hbar\omega$ (dans le domaine des RF, on peut négliger le demi quantum $\frac{\hbar\omega}{2}$). Les états $|\pm, n\rangle$ du système global sont donc repérés par 2 nombres quantiques et correspondent à une situation où le spin est dans l'état $|\pm\rangle$ en présence de n photons, l'énergie non perturbée du système étant égale à $\pm\frac{\hbar\omega_0}{2} + n\hbar\omega$.

Il peut paraître surprenant de quantifier un champ RF qui est essentiellement classique. En fait, en procédant ainsi, on traite le champ non comme une perturbation oscillante imposée de l'extérieur, mais comme une partie d'un système global, l'atome + le champ RF, qui est isolé et qui est par suite décrit par un Hamiltonien indépendant du temps. Les calculs s'en trouvent simplifiés par rapport à ceux de la théorie classique qui fait intervenir un Hamiltonien dépendant du temps. En particulier, la quantification du champ réalise d'emblée, et pour une polarisation quelconque de la radiofréquence, l'équivalent du passage dans le référentiel tournant de la théorie classique qui consiste précisément à éliminer la dépendance temporelle de l'Hamiltonien et qui n'est valable que pour un champ RF tournant. De plus, l'adoption dès le départ d'un point de vue quantique permet de préciser clairement le rôle des photons RF dans les divers effets observés.

Pour étudier le couplage entre l'atome et le champ, on suppose que ce dernier a une polarisation linéaire et parallèle à Ox , c'est-à-dire perpendiculaire à \vec{B}_0 .



Disposition relative du champ statique \vec{B}_0 et du champ RF $\vec{B}_1 \cos \omega t$.

L'Hamiltonien d'interaction \hat{V} est proportionnel au produit scalaire du moment cinétique \hat{I} par l'opérateur champ magnétique de radiofréquence. La polarisation de ce dernier étant parallèle à Ox , il s'ensuit que \hat{V} est proportionnel à \hat{I}_x et ne peut par suite coupler l'état $|+\rangle$ qu'à l'état $|-\rangle$ et réciproquement :

$$|+\rangle \leftrightarrow |-\rangle$$

D'autre part, l'opérateur champ magnétique est une combinaison linéaire des opérateurs de création et d'annihilation a^+ et a , et ne peut par suite coupler l'état $|n\rangle$ qu'aux états $|n+1\rangle$ et $|n-1\rangle$:

$$|n-1\rangle \leftarrow |n\rangle \rightarrow |n+1\rangle$$

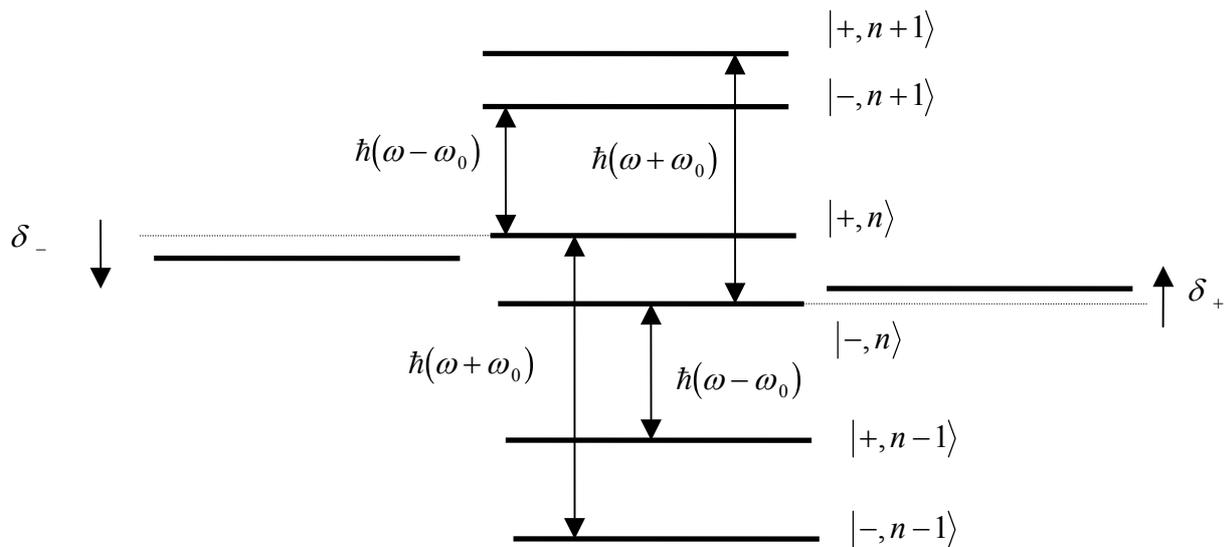
On en déduit les règles de sélection auxquelles satisfait l'Hamiltonien d'interaction \hat{V} . \hat{V} ne couple l'état $|+, n\rangle$ qu'aux 2 états $|-, n+1\rangle$ et $|-, n-1\rangle$, l'état $|-, n\rangle$ qu'aux 2 états $|+, n+1\rangle$ et $|+, n-1\rangle$:

$$\begin{cases} |-, n-1\rangle \leftarrow |+, n\rangle \rightarrow |-, n+1\rangle \\ |+, n-1\rangle \leftarrow |-, n\rangle \rightarrow |+, n+1\rangle \end{cases}$$

L'interprétation physique de ces règles de sélection indique que les seuls processus élémentaires possibles correspondent au passage de l'atome d'un sous-niveau Zeeman à l'autre par émission induite ou absorption d'un photon RF.

Le moment cinétique global est conservé au cours de tels processus. Si l'énergie globale est également conservée, c'est-à-dire si le champ RF est résonnant ($\omega = \omega_0$), on a affaire à des transitions réelles de résonance magnétique qui jouent un rôle très important en spectroscopie hertzienne. Si l'on est hors résonance ($\omega \neq \omega_0$), les processus d'absorption et d'émission induite précédents deviennent virtuels mais peuvent cependant conduire à des effets observables.

Moment magnétique de l'atome habillé par des photons RF



Déplacement des niveaux $|+, n\rangle$ et $|-, n\rangle$ sous l'effet du couplage \hat{V} entre l'atome et le champ RF. Les flèches relient les états qui sont couplés par \hat{V} .

La figure ci-dessus représente les niveaux d'énergie du système global atome + champ RF en champ statique très faible ($\omega_0 \ll \omega$). Ils se regroupent en multiplicités correspondant à un même nombre de photons n , la distance $\hbar\omega$ entre multiplicités étant grande devant l'écart $\hbar\omega_0$ qui sépare 2 états d'une même multiplicité. Les deux flèches partant de l'état $|+, n\rangle$ indiquent les états $|-, n+1\rangle$ et $|-, n-1\rangle$ auxquels ce dernier est couplé par \hat{V} et qui sont à des distances respectivement égales à $\hbar(\omega - \omega_0)$ et $\hbar(\omega + \omega_0)$. Les éléments de matrice correspondant de \hat{V} sont pratiquement égaux (dans la mesure où on peut confondre $\sqrt{n+1}$ et \sqrt{n} lorsque n est très grand) et leur valeur commune K peut être reliée au paramètre $\omega_1 = -\gamma B_1$ qui dans la théorie classique repère la force du couplage (ω_1 est la pulsation de Larmor autour du champ RF classique $\vec{B}_1 \cos \omega t$). On trouve que $K = \frac{\hbar\omega_1}{4}$. Les

deux éléments de matrice de \hat{V} partant de l'état $|-, n\rangle$ sont eux aussi égaux à K .

Si on suppose le couplage faible, c'est-à-dire si $\omega_1 \ll \omega$, on peut utiliser la théorie des perturbations pour évaluer le déplacement de l'état $|+, n\rangle$. On sait qu'un couplage entre 2 états

d'énergie différents les fait se repousser, d'autant plus efficacement que les 2 états sont rapprochés. L'état $|+,n\rangle$ est donc repoussé vers le bas par l'état $|-,n+1\rangle$, vers le haut par l'état $|-,n-1\rangle$. Comme l'état $|-,n+1\rangle$ est plus proche et que les divers éléments de matrice de V sont égaux, on en conclut que le déplacement global δ_+ de l'état $|+,n\rangle$ se fait vers le bas et est donné par l'expression

$$\delta_+ = -K^2 \left(\frac{1}{\omega - \omega_0} - \frac{1}{\omega + \omega_0} \right) = -K^2 \frac{2\omega_0}{\omega^2 - \omega_0^2} \approx -\frac{\omega_1^2}{8\omega^2} \omega_0$$

δ_+ est donc proportionnel à ω_0 . Un raisonnement identique permettrait de montrer que l'état $|-,n\rangle$ est déplacé vers le haut d'une quantité δ_- égale à $-\delta_+$, ce qui fait finalement passer l'écart entre les 2 niveaux $|+,n\rangle$ et $|-,n\rangle$ de la valeur $\hbar\omega_0$ à la valeur $\hbar\omega_0 \left(1 - \frac{\omega_1^2}{4\omega^2} \right)$. Le

facteur de Landé de l'atome est donc multiplié par le facteur $\left(1 - \frac{\omega_1^2}{4\omega^2} \right)$ sous l'effet des absorptions et réémissions induites virtuelles (ou encore des émissions induites et réabsorptions virtuelles) de photons RF.

