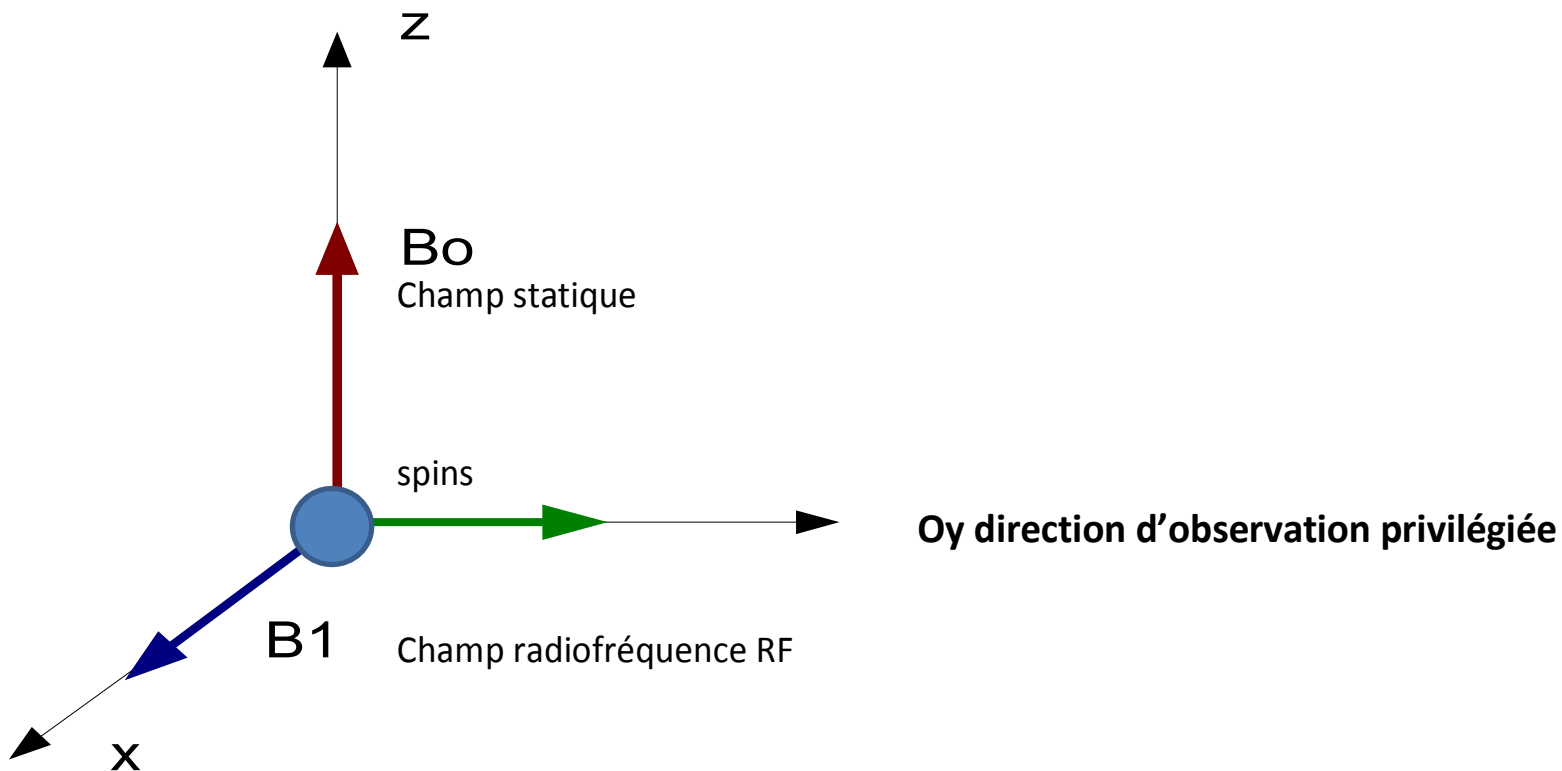


# Quantification du champ magnétique RF irradiant un système de spins électroniques

Spins « habillés » par les photons, transitions à plusieurs photons

Variations du facteur de Landé



Les champs  $\vec{B}_1$  et  $\vec{B}_0$  sont de même ordre de grandeur, ce qui est très inusuel car en général le champ statique est beaucoup plus grand. Le nombre de photons comme le nombre de spins est très grand.  $B_1$  est constant sur l'échantillon et l'émission spontanée est négligeable.

Nous allons étudier le système avec un champ quantifié ou non.

Les expériences portent sur les spins électroniques, au contraire de l'IRM qui concerne les spins des protons.

## I) Les acteurs en présence

- A) Spins en grand nombre (électrons de conduction du lithium métallique ou radical libre)

Moment magnétique associé au spin  $\vec{S}$  :

$$\vec{\mu} = \gamma \hbar \vec{S}$$

$\gamma = -g_0 e/2 m$  facteur gyromagnétique  $\approx -1.8 \cdot 10^{11}$  MKSA pour l'électron

$g_0$  facteur de Landé : 2.023 pour l'électron et  $\hbar \approx 10^{-34}$  J.s

- B) Champ magnétique constant  $B_0$  faible : variable très lentement, quelques Gauss ( $10^{-4}$  Tesla soit 10 fois champ magnétique terrestre)

Effet Zeeman :

$$H_0 = -\vec{\mu} \cdot \vec{B}_0$$

$$E_0 = \pm \gamma \hbar B_0/2 = \pm \hbar \omega_0/2 \quad (+ \text{ pour spin electron } +)$$

avec :  $\omega_0 = |\gamma| |B_0|$

c ) Champ magnétique RF  $B_1$  fort (quelques gauss) à 14 Mhz : très grand nombre de photons  $\approx 10^{18}$  pour  $B_1 \approx 1$  Gauss (au contraire de Haroche dans la cavité à 51 Ghz):

$$H_R = (a^\dagger a + \frac{1}{2}) \hbar \omega \quad \text{d'états propres } |n\rangle \quad E_R = (n + \frac{1}{2}) \hbar \omega \approx n \hbar \omega$$

$$|n(t)\rangle = e^{-iH_R t/\hbar} |n\rangle \approx e^{-in\omega t} |n(0)\rangle$$

$a^\dagger$  et  $a$  opérateurs création et annihilation  $a |n\rangle = \sqrt{n} |n-1\rangle$  et  $a^\dagger |n\rangle = \sqrt{n+1} |n+1\rangle$

En représentation de Heisenberg :  $a(t) = a(0)e^{-i\omega t}$  et  $a^\dagger(t) = a^\dagger(0)e^{+i\omega t}$

Par rapport à  $\vec{B}_0$  les photons sont polarisés  $\pi$ ,  $\sigma+$ ,  $\sigma-$  ou une combinaison  $\sigma+$ ,  $\sigma-$  pour un champ oscillant le long de Ox.

Ce champ magnétique  $2 \vec{B}_1 \cos \omega t = \vec{B}_1 e^{i\omega t} + \vec{B}_1 e^{-i\omega t}$  est quantifié par l'opérateur :

$$|\mathbf{B}_1| = \lambda (a^\dagger + a) / |\gamma|$$

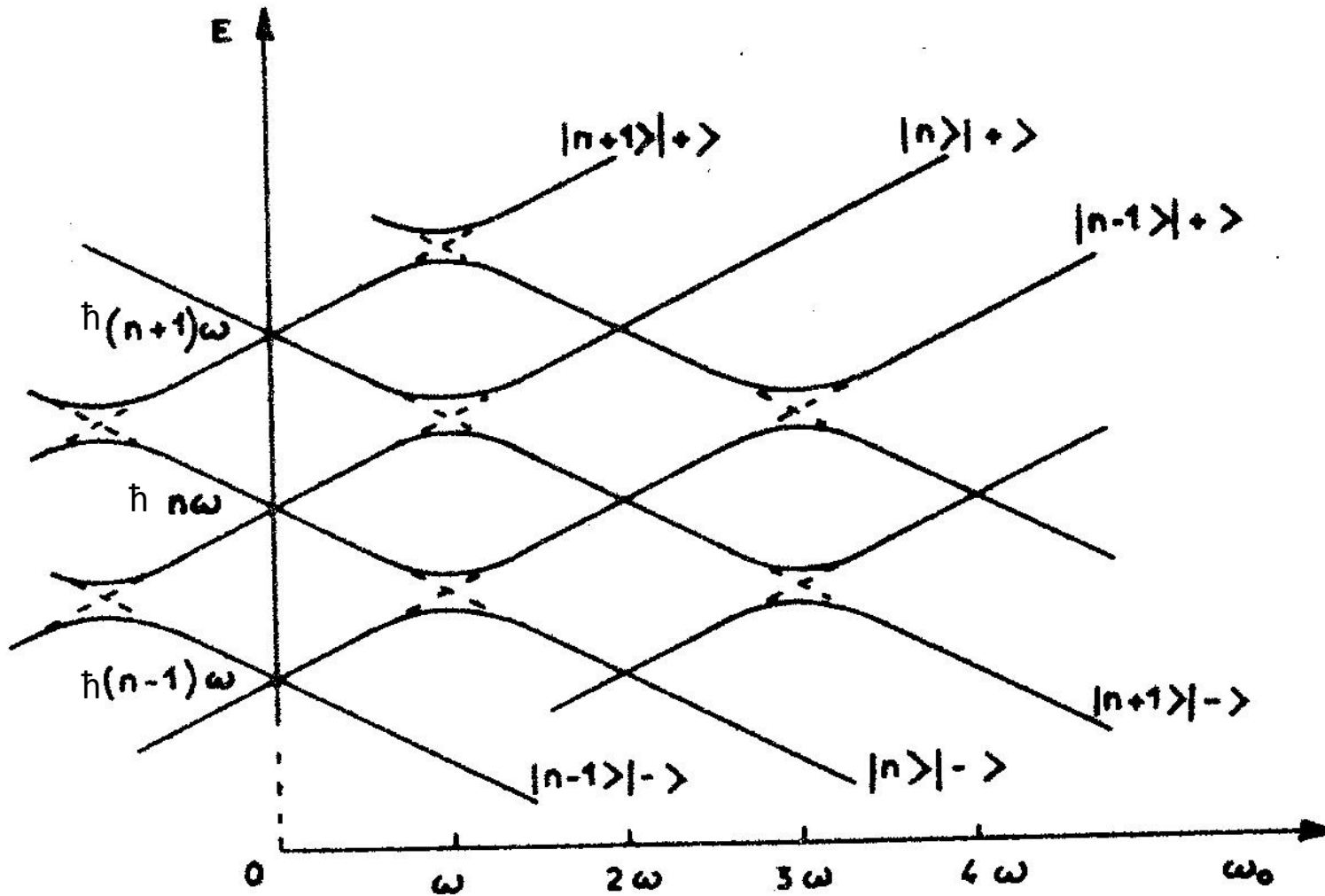
avec :  $\lambda = \omega_1 / \sqrt{N}$

$$\omega_1 = |\gamma| |\mathbf{B}_1|$$

et N nombre moyen de photons.

L'ensemble des spins soumis à  $B_0$  et aux photons conduit à la notion de photons habillés par le champ RF :

$$E_0 + E_R \approx \pm \hbar \omega_0 / 2 + n \hbar \omega$$

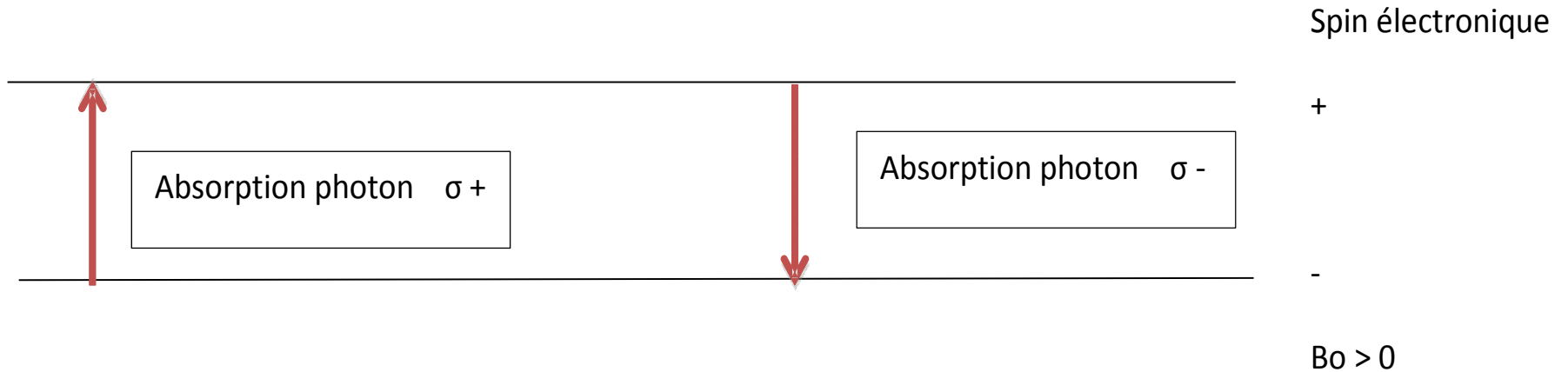


Il faut ajouter l'hamiltonien d'interaction entre spins et photons qui lève les dégénérescences aux points de croisement impair en l'absence de photons  $\pi$  :

$$H_1 = - \vec{\mu} \cdot \vec{B}_1$$

L'hamiltonien total s'écrit :

$$H \approx [a^+ a \omega + \omega_0 S_z + \lambda (a^+ + a) S_x] \hbar$$

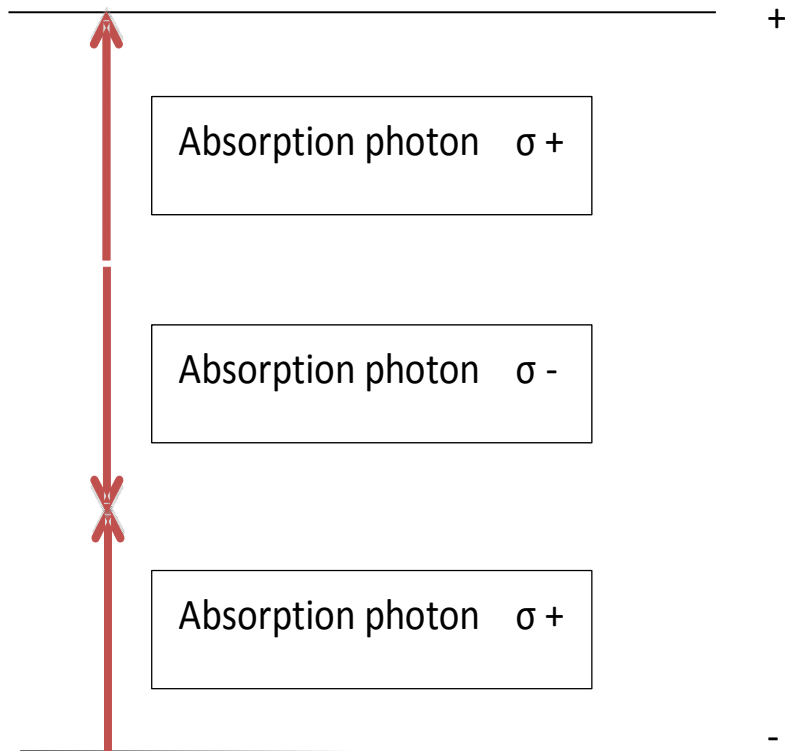


**Mesures** : cette absorption d'énergie peut être détectée sur la source RF qui voit une charge plus importante (méthode du Q-mètre, de l'oscillateur marginal) ou par double résonance optique (voir Cohen-Tannoudji, Haroche...) lorsque la condition de résonance est satisfaite :

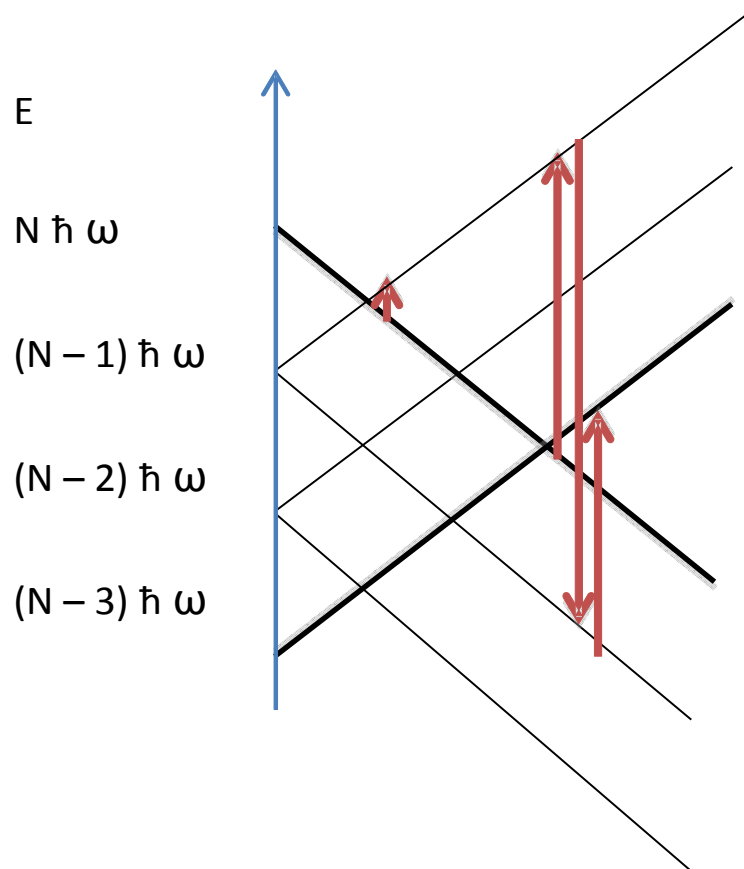
$$\omega_0 = | \gamma | | B_0 | = \pm \omega$$

Mais lorsque la source RF est puissante des transitions à plusieurs photons sont induites :

Spin électronique



Sur le diagramme énergétique global, ces « transitions » se traduisent par des couplages entre niveaux de la façon suivante :



En un point d'anticroisement, le couplage par  $H_1$  entraîne la levée de dégénérescence et conduit au premier ordre à deux niveaux d'énergie distincts :

$$E_{\pm} = (N - \frac{1}{2}) \hbar \omega \pm \frac{1}{2} \hbar \{ (\omega - \omega_0) + \sqrt{(\omega - \omega_0)^2 + \omega_1^2} \}$$

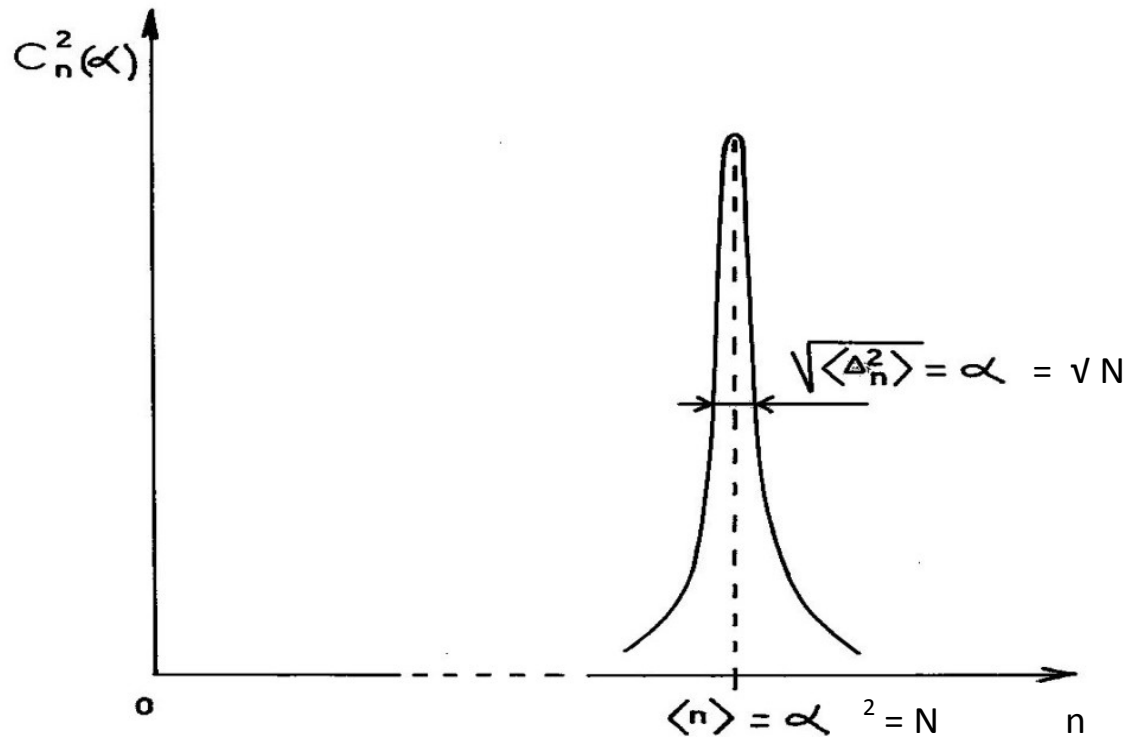
$$= (N - \frac{1}{2}) \hbar \omega \pm \frac{1}{2} \hbar \omega_1 \quad \text{si } \omega = \omega_0$$

Un champ RF sinusoïdal ne peut pas être décrit par un état propre  $|n\rangle$  de  $H_R$  car sa valeur moyenne serait nulle. Il est donc décrit par un état cohérent  $|\alpha(t)\rangle$ , état propre de l'opérateur d'annihilation  $a$ , de valeur propre  $\alpha = \sqrt{N}$ . Les états cohérents ou semi-classiques minimisent la relation « d'incertitude »  $\Delta n \cdot \Delta \Phi \geq 1$ .

$$|\alpha(0)\rangle = \sum_n C_n(\alpha) |n\rangle \quad C_n(\alpha) = e^{-|\alpha|^2/2} \frac{\alpha^n}{\sqrt{n!}}$$

$$|\alpha(t)\rangle = e^{-iH_R t} |\alpha(0)\rangle = \sum_n C_n(\alpha e^{i\omega t}) |n\rangle$$

Les opérateurs  $a$  et  $a^\dagger$  couplent des états  $|n\rangle$ ,  $|n-1\rangle$  et  $|n+1\rangle$  et font apparaître le terme  $\cos \omega t$  dans la valeur moyenne de l'opérateur champ  $B_1$





D) Le réseau atomique, l' «environnement » qui contribue à la décohérence par interaction avec les spins est simplement représenté par une **constante de temps  $\tau$**  appelée **temps de relaxation**.

## II) Le mouvement

### A) Evolution de $\langle \vec{M} \rangle$ et de ses composantes spectrales

L'opérateur densité total s'écrit :

$$\rho(t) = \rho_R(t) \rho_S(t)$$

et permet de calculer

$$\langle \vec{S} \rangle = \text{tr } \rho \vec{S} \quad \text{et} \quad \langle \vec{M} \rangle = \sum_{q \text{ spins}} \langle \vec{\mu} \rangle = \gamma \hbar \sum_{q \text{ spins}} \langle \vec{S} \rangle$$

avec  $\rho_R(t) = |\alpha(t)\rangle \langle \alpha(t)|$

et pour les spins :

$$d\rho_S/dt = -i [H, \rho_S] / \hbar - (\rho_S - \rho_{S0}) / \tau$$

$\tau$  décrit la relaxation vers  $\mathbf{B}_0$  et  $\mathbf{B}_1$  à l'équilibre thermique (Boltzmann) :

$$\rho_{S0} \approx \frac{1}{2} [1 - (H_1 + H_0)/kT]$$

Le terme  $H_1$  est souvent négligé en champ  $B_0$  fort. Si :

$$d\rho_S/dt = 0$$

$$\text{alors :} \quad i [H, \rho_S] / \hbar = -(\rho_S - \rho_{S0}) / \tau$$

**Mesures** : elles peuvent être réalisées par une « bobine » sensible à l'aimantation  $M_y$  ou à  $M_z$  mais rigoureusement perpendiculaire à  $B_1$ . **Cette bobine (quelques spires) est accordée et sert aussi à filtrer les pulsations  $p\omega$ .** Les composantes spectrales sont définies par :

$$\langle \vec{M} \rangle = \sum_{q \text{ spins}} \text{tr} \rho \vec{\mu} = \sum_p e^{ip\omega t} \langle \vec{M} \rangle_p$$

$$\langle \vec{S} \rangle = \sum_p e^{ip\omega t} \langle \vec{S} \rangle_p$$

Par exemple :

$$\langle S^+ \rangle = \text{tr} \rho S^+ = \sum_n \langle - | \langle n | \rho | n \rangle | + \rangle \langle + | S^+ | - \rangle = \sum_n \langle - | \langle n | \rho_R \rho_S | n \rangle | + \rangle$$

$$\langle S^+ \rangle = \sum_p e^{ip\omega t} \sum_n C_n(\alpha) C_{n+p}(\alpha) \langle - | \langle n+p | \rho_S | n \rangle | + \rangle$$

Pour  $p$  petit devant  $N$  :

$$C_{N+p}(\alpha) \approx C_N(\alpha) \quad \text{et} \quad \sum_n C_n^2(\alpha) f(n) \approx f(N)$$

$$\langle S^+ \rangle_p \approx \langle - | \langle N + p | \rho_S | N \rangle | + \rangle$$

**Cela permet de dire que l'existence de composantes spectrales à la fréquence  $p$  est associée au couplage des niveaux  $| N \rangle$  et  $| N + p \rangle$ .**

Finalemment :

$$\langle \vec{M} \rangle_p = \varepsilon \eta_p ( \langle \vec{M}_{p+1} \rangle + \langle \vec{M}_{p-1} \rangle ) + \delta_{p,0} \vec{C}_0 + \varepsilon \delta_{p,\pm 1} \vec{C}_{\pm 1}$$

avec :

$$\varepsilon = \omega_1 / \omega$$

$$\eta_p = \omega \tau \begin{vmatrix} 0 & 0 & -B_p \\ 0 & 0 & -A_p \\ 0 & N_p & 0 \end{vmatrix}$$

$$\mathbf{C}_0 = \begin{vmatrix} 0 \\ 0 \\ \chi_0 B_0 \end{vmatrix}$$

$$\mathbf{C}_{\pm 1} = \chi_0 \omega / |\gamma| \begin{vmatrix} A \pm 1 \\ -B \pm 1 \\ 0 \end{vmatrix}$$

$$A_p = \frac{1}{2} \{ [1 + i \tau (p \omega - \omega_0)]^{-1} + [1 + i \tau (p \omega + \omega_0)]^{-1} \}$$

raies de résonance en  $\omega_0 = \pm p \omega$

$$B_p = \frac{1}{2} i \{ [1 + i \tau (p \omega - \omega_0)]^{-1} - [1 + i \tau (p \omega + \omega_0)]^{-1} \}$$

$$N_p = [1 + i p \tau \omega]^{-1}$$

avec pour susceptibilité statique (loi de Curie) :

$$\chi_0 = q \gamma^2 \hbar^2 / 4 k T$$

Cela est équivalent à la formulation classique des équations de Bloch modifiées pour les champs  $B_1$  faibles:

$$\frac{d\vec{M}}{dt} = \gamma \frac{d(\text{mt cinétique})}{dt} = \gamma \underbrace{\vec{M} \wedge \vec{B}}_{\text{couple}} - \underbrace{[\vec{M} - \chi_0 (\vec{B}_0 + \vec{B}_1)]}_{\text{relaxation}} / \tau$$

( $\langle M \rangle \rightarrow M$ )

Cette expression peut être obtenue en calculant directement  $d\langle M \rangle / dt$ . D'ailleurs, lorsque le champ n'est pas quantifié, l'évolution du moment cinétique est donnée en représentation de Heisenberg par :

$$i \hbar \frac{d\vec{S}}{dt} = [\vec{S}, -i \hbar \gamma \vec{B} \cdot \vec{S}]$$

et selon l'axe Oz par :

$$dS_z / dt = \gamma [\vec{S} \wedge \vec{B}]_z$$

B) Lorsque le champ  $B_1$  est un champ tournant, une solution exacte en régime stationnaire est obtenue dans le référentiel tournant avec ce champ :

$$M_x' = \Delta\omega \gamma B_1 \tau^2 M_0 / (1 + \tau^2 \Delta\omega^2 + \gamma^2 B_1^2 \tau^2)$$

$$M_y' = \gamma B_1 \tau M_0 / (1 + \tau^2 \Delta\omega^2 + \gamma^2 B_1^2 \tau^2)$$

$$M_z' = (1 + \Delta\omega^2 \tau^2) M_0 / (1 + \tau^2 \Delta\omega^2 + \gamma^2 B_1^2 \tau^2)$$

avec  $\Delta\omega = \omega - \omega_0$   $M_0 = \chi_0 B_0$

Le terme  $\gamma^2 B_1^2 \tau^2$  non négligeable pour  $B_1$  élevé est appelé terme de saturation. Il élargi les raies de largeur naturelle  $\Delta\omega = 1/\tau$  et fait tendre  $M_y'$  vers 0.

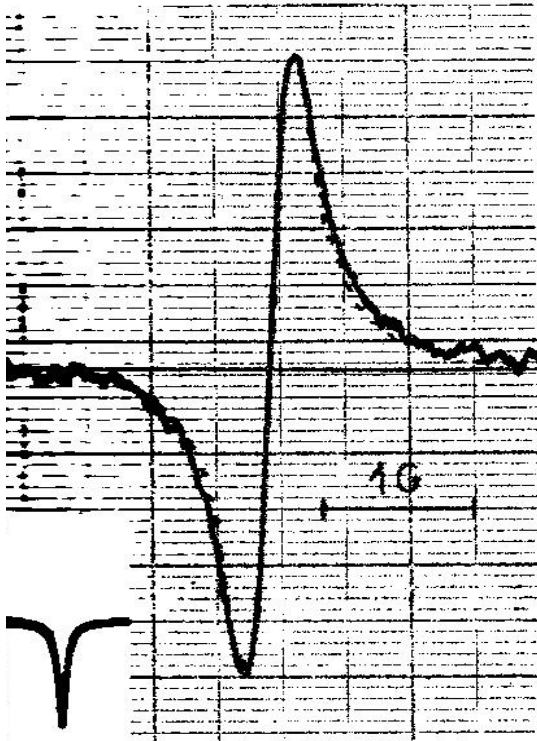
Dans le référentiel du laboratoire :

$$M_x = M_x' \cos \omega t - M_y' \sin \omega t$$

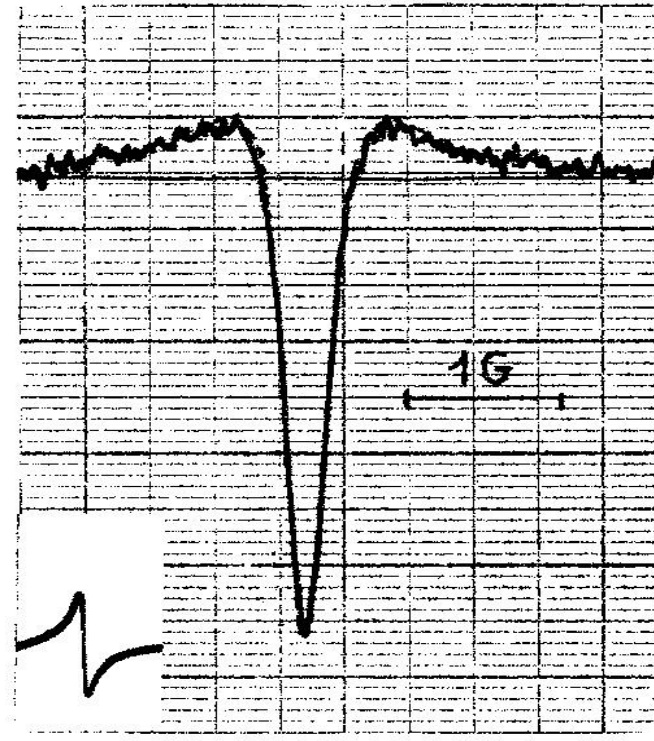
$$M_y = M_x' \sin \omega t + M_y' \cos \omega t$$

La composante de  $M_x$  en quadrature avec  $B_1$  correspond à l'absorption de puissance :  $M_y'$  est lorentzienne. C'est aussi la composante en phase de  $M_y$ . Elle tend à s'annuler pour  $B_1$  élevé : saturation.

L'autre composante  $M_x'$  est appelée dispersion. Elle s'annule à la résonance en  $\omega = \omega_0$  mais ses pics ne se saturent pas en champ  $B_1$  élevé et peuvent « transmettre de l'information » sans absorption d'énergie car loin de la résonance  $M_y'$  décrit en  $1/\Delta\omega^2$  et  $M_x'$  en  $1/\Delta\omega$ .

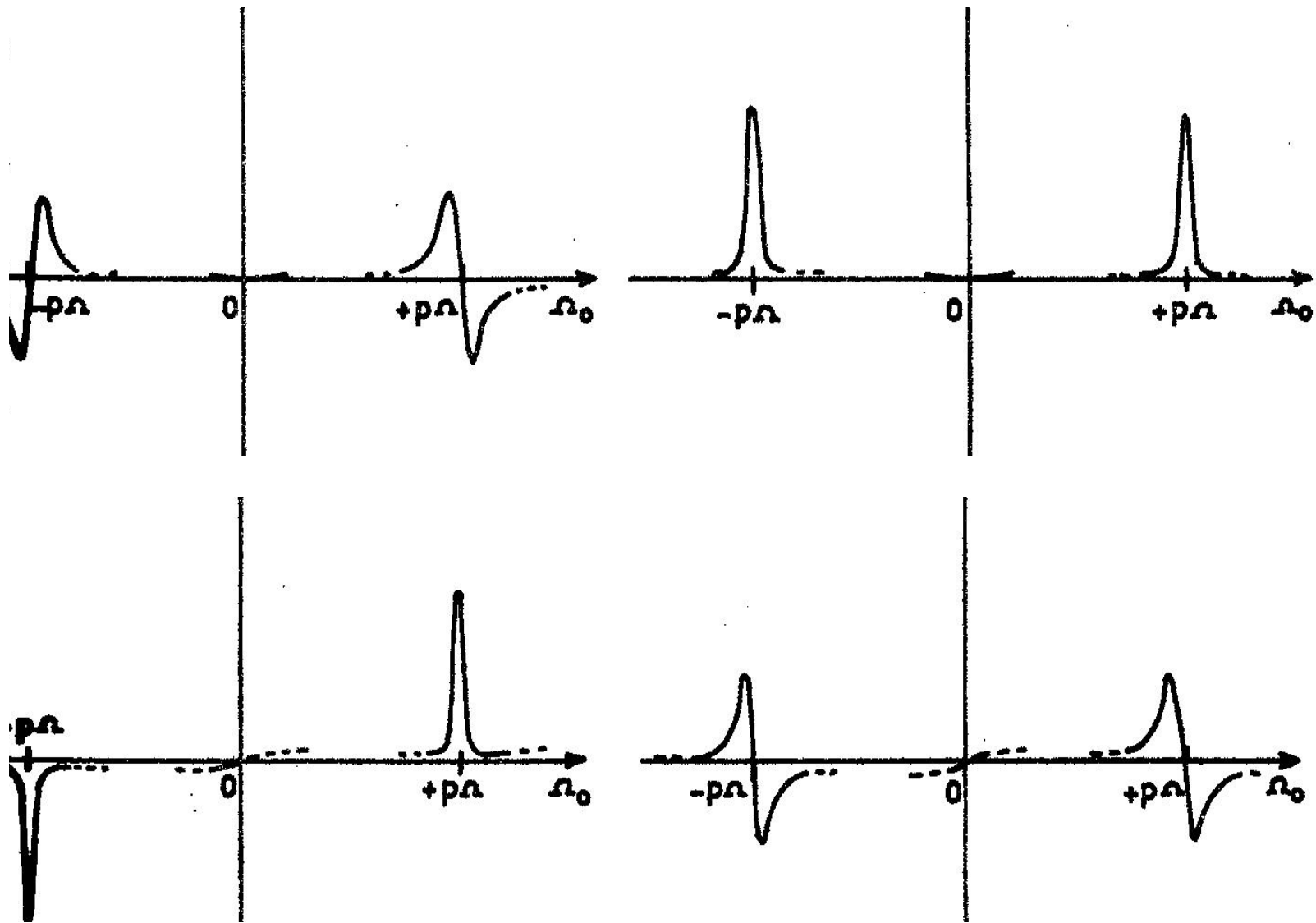


Absorption et sa dérivée



dispersion et sa dérivée

Lorsque le champ est sinusoïdal, la solution est la superposition des deux solutions liées à deux champs tournant si ces champs sont faibles. La largeur des raies est alors  $\Delta\omega = \tau^{-1} \approx 0.5 \cdot 10^7$  ou en champ  $(|\gamma|\tau)^{-1} \approx 0.3$  Gauss



Symétrie des raies d'absorption et de dispersion observables en  $p\omega\tau = p\Omega/\tau$  selon Ox et Oy.

Sinon la solution sera cherchée par perturbation pour  $B_1$  ou  $B_0$  petits.

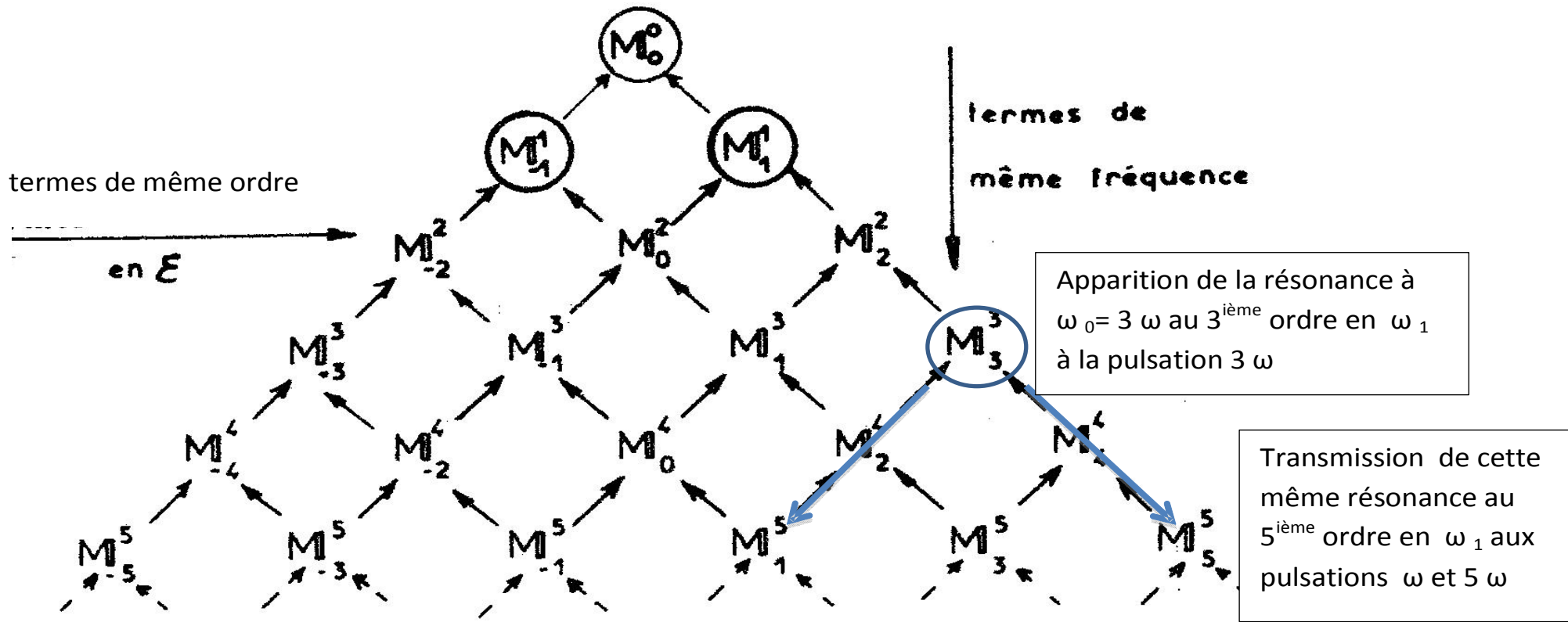


C) En développant les composantes spectrales selon les puissances de  $\varepsilon$  c'est-à-dire de  $\frac{\omega_1}{\omega}$  ou de  $B_1$  on met en évidence le couplage entre les différents termes composant le spectre :

$$M_p = \sum_q \varepsilon^q M_p^q$$

$$\langle M \rangle_p^k = \eta_p (\langle M_{p+1}^{k-1} \rangle + \langle M_{p-1}^{k-1} \rangle) + \delta_{p,0} \delta_{k,0} C_0 + \varepsilon \delta_{p,\pm 1} \delta_{k,0} C_{\pm 1}$$

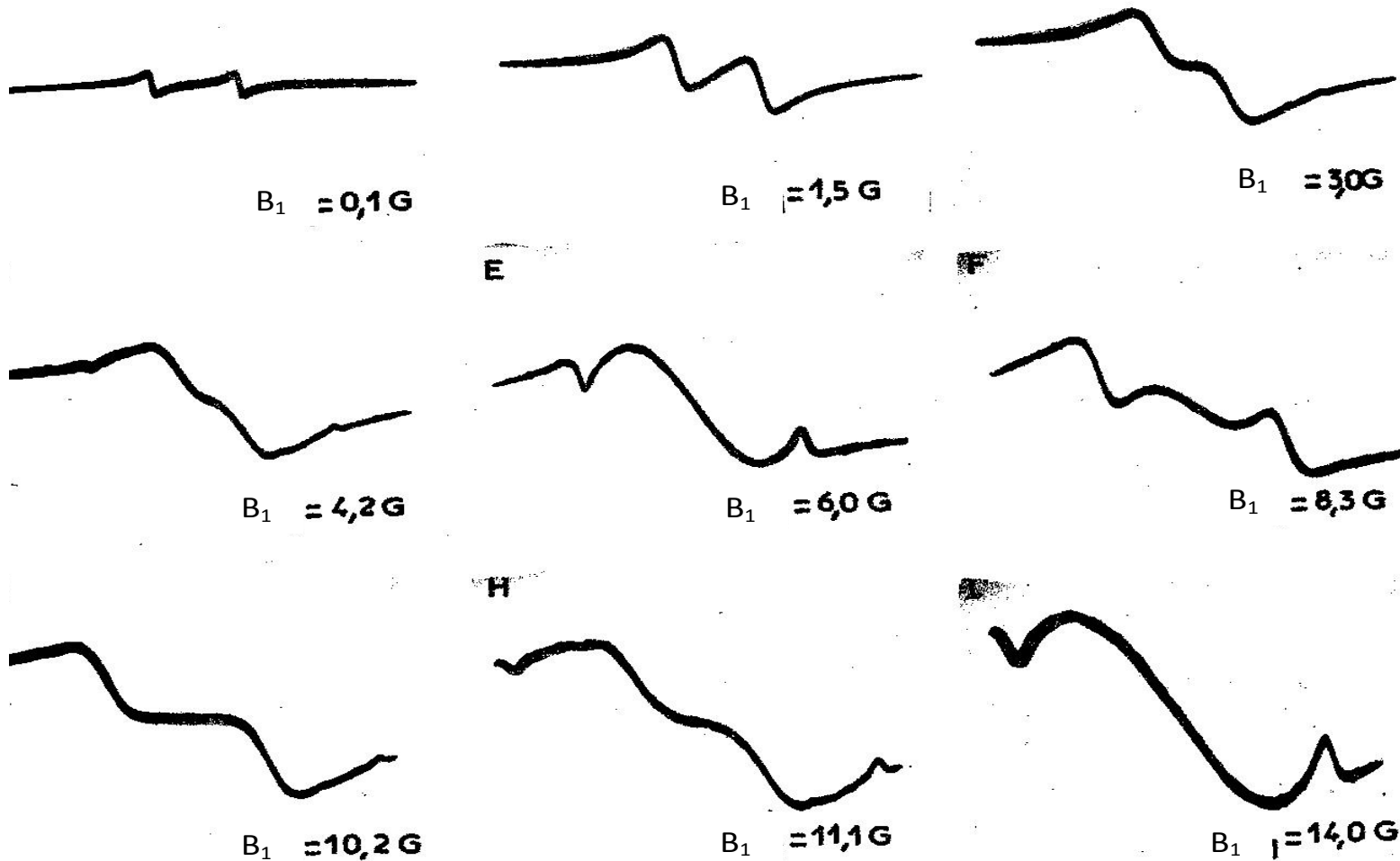
$$\langle M \rangle_p^k = 0 \text{ si } k < |p| \text{ ou si } k + p \text{ impair}$$

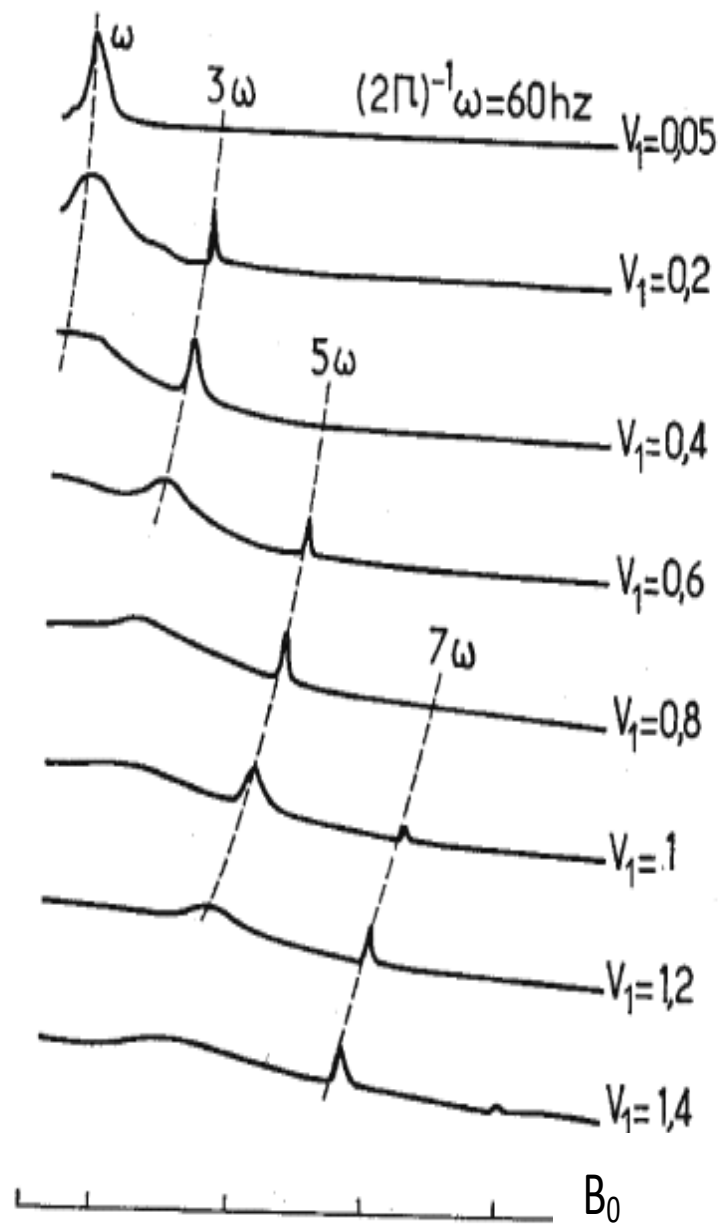


$k$  = nombre de photons émis + nombre de photons absorbés

$p$  = nombre de photons émis – nombre de photons absorbés

La re-sommation de termes à la même fréquence permet de retrouver le terme de saturation et de mettre en évidence un décalage des raies vers le champ  $B_0$  nul ( effet Bloch Siegert) où elles finissent par arriver comme le calcul suivant va le montrer. La figure suivante montre ce décalage des raies de dispersion et les variations de la pente en champ  $B_0$  nul.





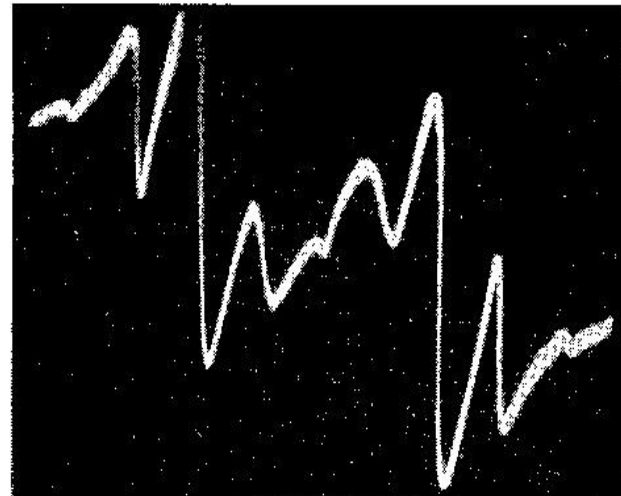
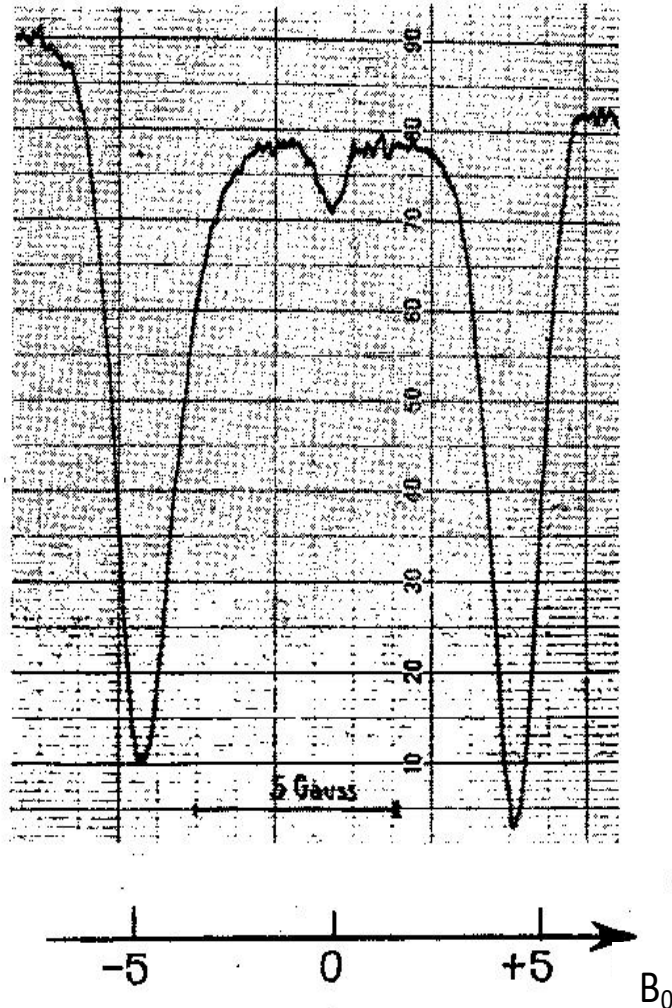
$^{199}\text{Hg}$  atoms

$$L=S=0$$

$$I=1/2$$

S. Haroche,  
 Thèse  
 de 3<sup>ème</sup> cycle,  
 Paris (1966)

Lorsque  $\mathbf{B}_0$  et  $\mathbf{B}_1$  ne sont pas orthogonaux, des photons  $\pi$  induisent des transitions supplémentaires et des harmoniques pairs en  $\omega_0 = 2p\omega$  même pour  $p$  nul.



Raie en champ nul et raies paires et impaires lorsque  $B_1$  et  $B_0$  ne sont pas orthogonaux.

D) Le comportement au voisinage de  $B_0 = 0$  est obtenu par un autre développement limité au premier ordre en  $\omega_0$  :

$$M_x = 2 B_1 \chi_0 (\cos \omega t + \omega \tau \sin \omega t) / (1 + \omega^2 \tau^2)$$

formule de Debye. Et si  $\omega \tau \gg 1$  :

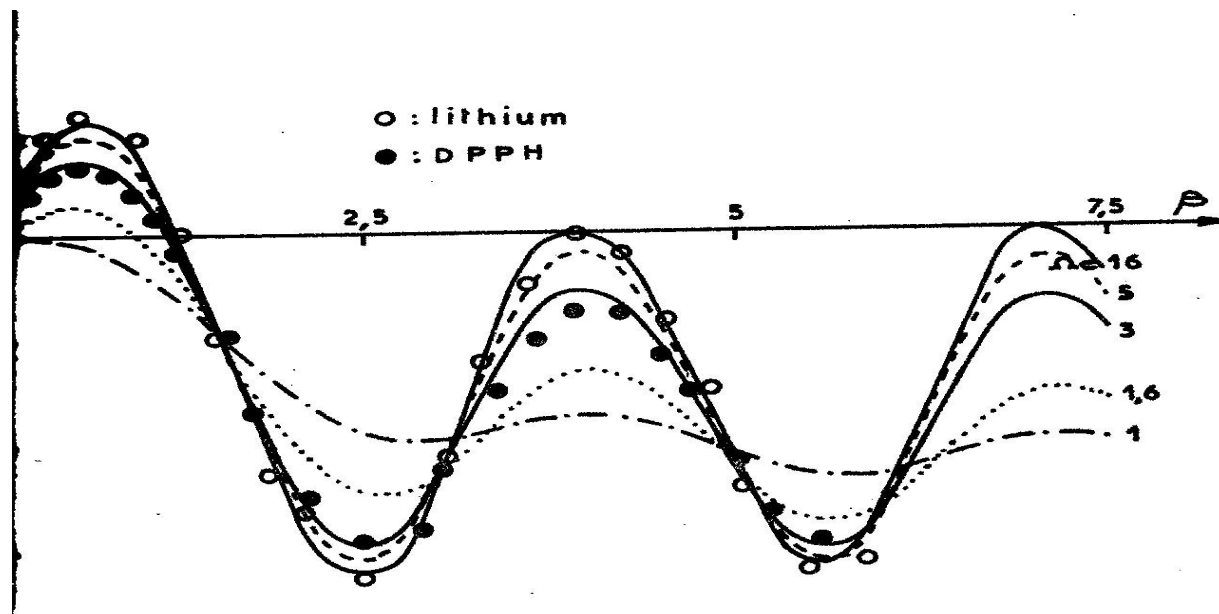
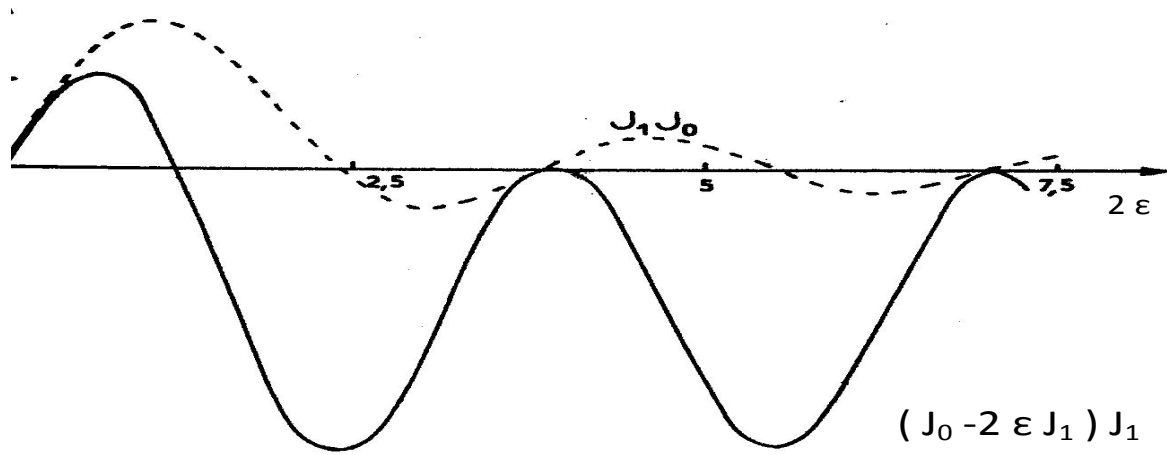
$$M_y \approx -2 \chi_0 B_0 (J_0 - 2 \varepsilon J_1) \sum_{p=0} J_{2p+1} \sin (2p + 1) \omega t$$

$$M_z \approx 2 \chi_0 B_0 (J_0 - 2 \varepsilon J_1) [J_0/2 + \sum_{p=0} J_{2p+1} \sin 2p \omega t]$$

$J_p (2 \varepsilon)$  étant la fonction de Bessel d'ordre  $p$  avec  $\varepsilon = \omega_1 / \omega$

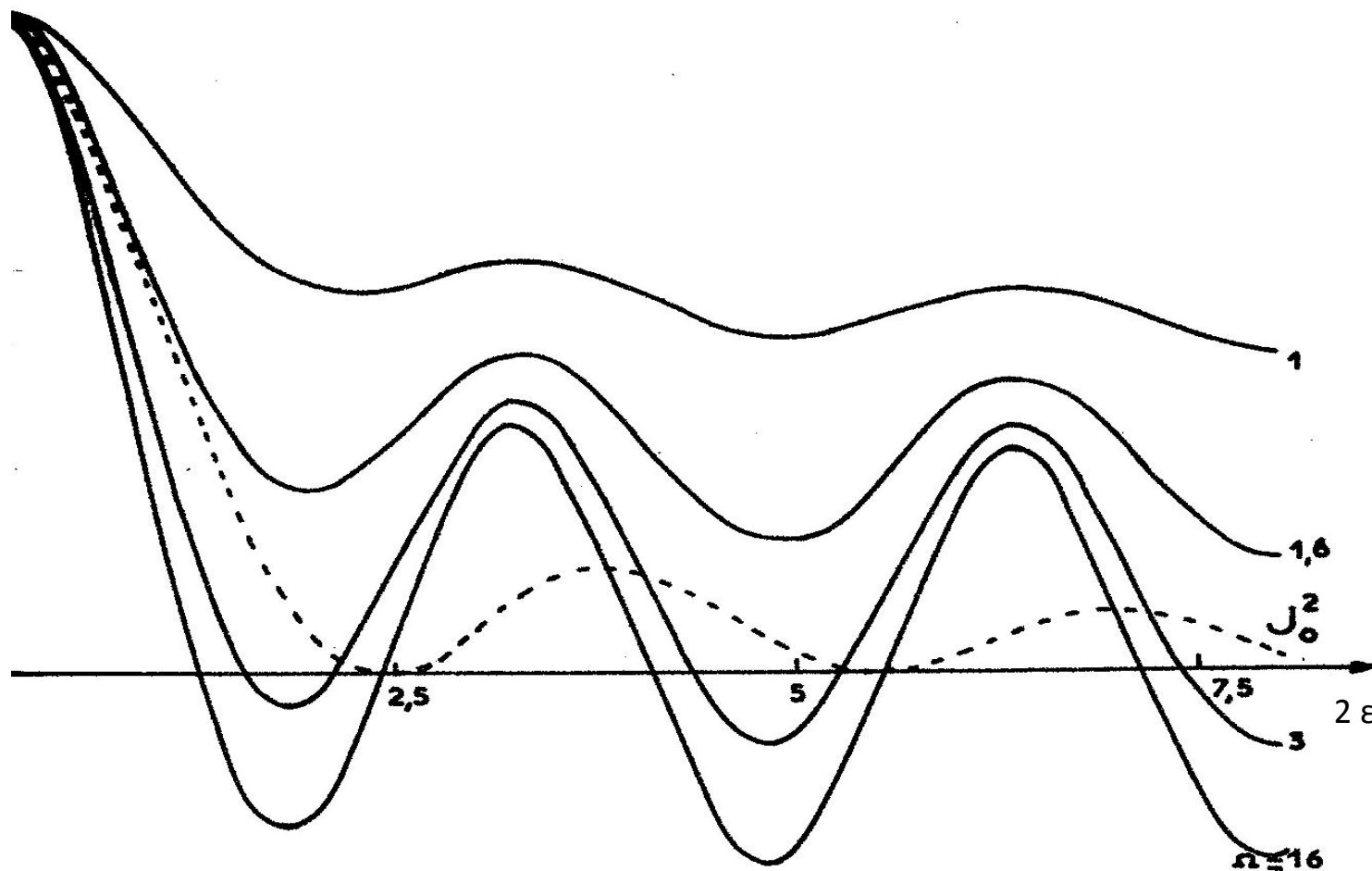
La pente du signal de dispersion à la pulsation  $\omega$  sera proportionnelle à  $(J_0 - 2 \varepsilon J_1) J_1$  et non pas à  $J_0 J_1$  sans relaxation le long de  $B_1$ .

Elle tend à devenir périodique pour de grandes valeurs de  $\varepsilon$  donc de  $B_1$  en  $\sin(4 \varepsilon) - 1$



De même l'aimantation statique le long de  $B_0$  à une pente qui varie comme :

$$(J_0 - 2 \varepsilon J_1) J_0$$



Au voisinage de  $B_0 = 0$ , l'hamiltonien :

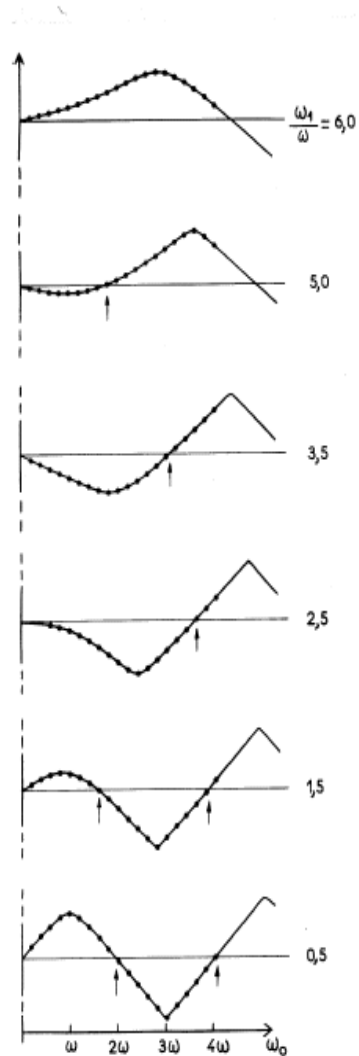
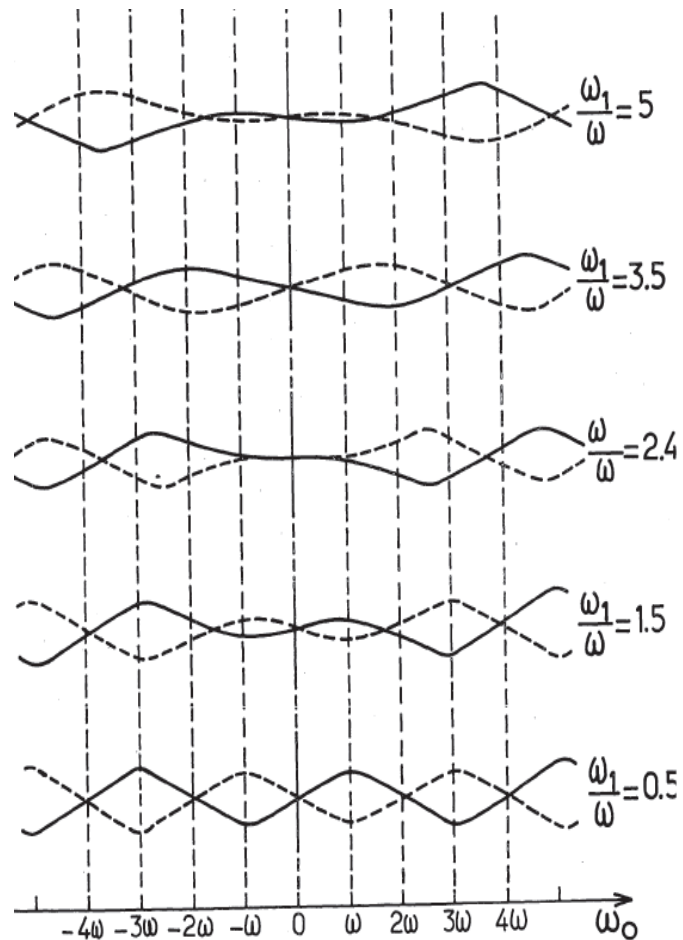
$$H' \approx [a^\dagger a \omega + \lambda (a^\dagger + a) S_x] \hbar$$

a pour états propres des états obtenus à partir des états  $|n\rangle|\pm\rangle$  par l'opérateur de déplacement

$$D(\lambda S_x/\omega) = e^{+\lambda S_x (a^\dagger - a)/\omega}$$

En prenant en compte la perturbation  $\hbar \omega_0 S_z$  la pente des niveaux d'énergie varie comme  $J_0(2\varepsilon)$  (Cohen-Tannoudji, Polonsky, Haroche, Landré-Lhuillier...). Il s'en déduit un facteur de Landé  $g = g_0 J_0(2\varepsilon)$  ayant les mêmes variations, qui s'annule et change signe lorsque  $B_1$  augmente.



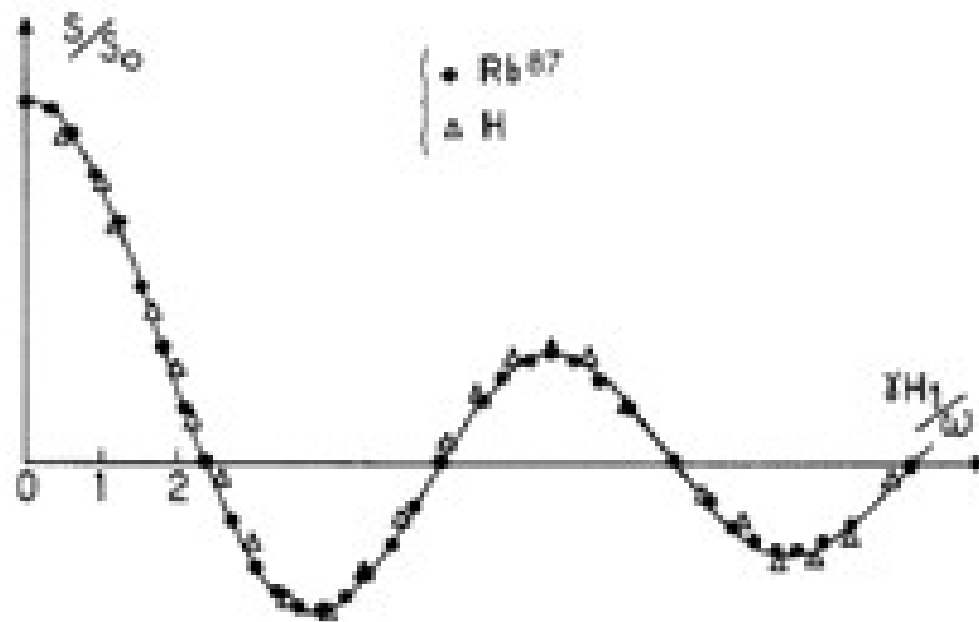


## Energy of a dressed state for increasing values of the amplitude of the RF field

- Theoretical curves calculated by numerical diagonalization of  $H$
- Experimental points obtained by measuring the Bohr frequencies of the dressed spin (modulated transverse optical pumping)

C. Landré-Lhuillier  
Thesis of 3rd cycle

It clearly appears that the the g-factor vanish when the shifted even crossings arrive in  $\omega_0=0$   
Qualitative understanding of non perturbative effects



S. Haroche, C. Cohen-Tannoudji,  
C. Audoin, J-P. Schermann;  
Phys. Rev. Lett. 24, 861 (1970)

