



HAL
open science

Diffusion d'ondes dans un milieu atomique : chaos quantique et diffusion multiple

Thibaut Jonckheere

► **To cite this version:**

Thibaut Jonckheere. Diffusion d'ondes dans un milieu atomique : chaos quantique et diffusion multiple. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2000. Français. NNT : . tel-00000410

HAL Id: tel-00000410

<https://theses.hal.science/tel-00000410>

Submitted on 24 Jul 2001

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

Thèse de doctorat de l'Université Paris 6

Spécialité :

Physique Quantique

présentée par

Thibaut Jonckheere

pour obtenir le grade de docteur de l'Université Paris 6

Sujet de la thèse :

**Diffusion d'ondes dans un milieu
atomique : chaos quantique et
diffusion multiple**

Effectuée au Laboratoire Kastler-Brossel
Sous la direction de Dominique Delande

Table des matières

I	Atome non-hydrogénoïde en champ extérieur	11
1	Théorie du diffuseur ponctuel	15
1.1	Introduction	15
1.2	Introduction à la fonction de Green	16
1.2.1	Divergence de $G(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; E)$ pour $\mathbf{r} \rightarrow \mathbf{r}'$	17
1.3	Résolution du problème avec diffuseur	18
1.3.1	Introduction	18
1.3.2	Le principe de la technique d'extension auto-adjointe	19
1.3.3	Définition d'un diffuseur ponctuel au moyen de l'extension auto-adjointe	21
1.3.4	Propriétés du diffuseur ainsi défini	22
1.3.5	Autres méthodes permettant de définir un diffuseur ponctuel	25
1.3.6	Fonction de Green du système avec diffuseur. Equation aux valeurs propres	28
1.3.7	Interprétation en termes de diffusion multiple	29
1.3.8	Lien avec la théorie des orbites diffractives	31
1.3.9	Calcul pratique des valeurs propres. Equation de Seba	32
1.4	Propriétés statistiques des solutions de l'équation de Seba	35
1.4.1	Introduction	35
1.4.2	Cas d'un système régulier en l'absence de diffuseur	35
1.4.3	Cas d'un système chaotique en l'absence de diffuseur	42
1.5	La distribution "demi-Poisson"	44
1.5.1	Définition	44
1.5.2	Loi d'espacement de la distribution demi-Poisson	44
1.5.3	Autres propriétés statistiques	45
1.6	Généralisation au cas de plusieurs diffuseurs ponctuels	48
2	L'atome non-hydrogénoïde en champ extérieur	51
2.1	Introduction	51
2.2	Remarque concernant les unités	52
2.3	Le système considéré	53
2.3.1	Description du système et des approximations faites	53
2.3.2	La théorie du défaut quantique	58

2.3.3	Point de vue adopté dans la suite	63
2.4	Résolution du problème en termes de diffuseur ponctuel	63
2.4.1	Introduction	63
2.4.2	Analogie entre le défaut quantique δ et un diffuseur ponctuel	63
2.4.3	Méthode de résolution	66
2.4.4	Calcul pratique des valeurs propres	68
2.4.5	Régularisation de l'équation : coupure des sommes	69
2.4.6	Précision des résultats obtenus	71
2.4.7	Calcul des états propres	74
2.5	Généralisation de la méthode au cas de plusieurs défauts quantiques non-nuls	75
2.5.1	Introduction	75
2.5.2	Obtention de l'équation	76
2.5.3	Calcul pratique des valeurs propres	78
2.6	Adaptation de la méthode au calcul des solutions à énergie réduite fixée	80
2.6.1	Introduction	80
2.6.2	Scaling du hamiltonien	80
2.6.3	Méthode de résolution pour le problème à énergie réduite fixée	83
2.6.4	Développement de la fonction de Green sur les solutions de l'équation à énergie réduite fixée	84
2.6.5	Calcul pratique des solutions	85
2.7	Propriétés statistiques des solutions	86
2.7.1	Introduction	86
2.7.2	Lien avec l'équation de Seba	87
2.7.3	Cas d'un défaut quantique $\delta = 0, 5$: résultats comparés au modèle demi-Poisson	88
2.7.4	Cas d'un défaut quantique $\delta \neq 0, 5$: modèle δ -Poisson	92
2.7.5	Cas d'un défaut quantique très faible	96
2.7.6	Cas de plusieurs défauts quantiques non-nuls	100
2.8	Lien avec d'autres méthodes	102
2.8.1	Introduction	102
2.8.2	La méthode de la matrice R	102
2.8.3	Méthodes semi-classiques	103

II Rétrodiffusion cohérente sur des atomes 109

3	La diffusion multiple dans un milieu désordonné	115
3.1	Introduction	115
3.2	Série de diffusion multiple - Ordres de diffusion	116
3.3	Libre parcours moyen	116
3.4	Longueurs caractéristiques du problème	117

3.5	Speckle - Intensité incohérente	119
3.6	Principe de l'augmentation cohérente de rétrodiffusion	120
3.7	Pourquoi utiliser des atomes comme diffuseurs?	121
3.7.1	Introduction	121
3.7.2	Avantages de l'utilisation d'atomes comme diffuseurs	122
3.7.3	Effets nouveaux dus à l'utilisation d'atomes	123
3.7.4	Rôle de l'effet Doppler	125
4	La rétrodiffusion cohérente	129
4.1	Introduction	129
4.2	Principe de l'augmentation cohérente de rétrodiffusion	130
4.3	Description des expériences - Géométrie	132
4.4	Cône de rétrodiffusion pour des diffuseurs scalaires	136
4.4.1	Introduction	136
4.4.2	Fonction de Green moyenne - Libre parcours moyen	136
4.4.3	Intensité diffusée	139
4.4.4	Facteur d'augmentation et réciprocité	142
4.4.5	Formules explicites : diffusion simple et diffusion double	143
4.5	Cône de rétrodiffusion pour les ondes vectorielles	147
4.5.1	Canaux de polarisation	147
4.5.2	Diffuseur ponctuel pour les ondes vectorielles	148
4.5.3	Réciprocité et facteur d'augmentation dans les différents ca- naux de polarisation	149
4.5.4	Formules explicites : diffusion simple et diffusion double	151
5	Calcul perturbatif de l'intensité diffusée par des atomes	155
5.1	Introduction	155
5.2	Diffusion simple sur un atome	156
5.2.1	Hamiltonien du système	157
5.2.2	Composantes sphériques et action du dipôle	157
5.2.3	Calcul perturbatif de la matrice S	159
5.2.4	Calcul de l'intensité diffusée	161
5.2.5	Section efficace	163
5.2.6	Comparaison avec un diffuseur ponctuel dipolaire	164
5.3	Diffusion double sur deux atomes	166
5.4	Calcul de l'intensité pour la diffusion double	168
5.4.1	Intensité incohérente	169
5.4.2	Intensité cohérente due a l'interférence	170
5.4.3	Comparaison avec des diffuseurs dipolaires ponctuels	171
5.4.4	Ordres de diffusion supérieurs	171

6	Rétrodiffusion cohérente sur des atomes	175
6.1	Introduction	175
6.2	Résultats expérimentaux	176
6.3	Principe du calcul	178
6.4	Amplitudes de diffusion pour les atomes	179
6.5	Réciprocité pour la diffusion sur les atomes	179
6.6	Un exemple simple montrant $\mathcal{T}_{\text{dir}} \neq \mathcal{T}_{\text{rev}}$	182
6.7	Calcul de l'intensité diffusée par des atomes dans un <i>slab</i>	182
6.7.1	Introduction	182
6.7.2	Hypothèse d'un milieu non-polarisé	183
6.7.3	Calcul de la diffusion simple	184
6.7.4	Calcul de la diffusion double	186
6.7.5	Facteurs d'augmentation incluant la diffusion simple	193
6.8	Interprétation en termes du tenseur de diffusion pour une transition atomique	196
6.8.1	Définition du tenseur de diffusion pour une transition atomique	196
6.8.2	Antisymétrie du tenseur de diffusion et diminution de l'augmentation de rétrodiffusion	197
6.8.3	Lien avec la réciprocité	198
6.8.4	Cas d'une transition $0 \rightarrow 1$	198
6.9	Contribution de la diffusion Raman	199
6.10	Au-delà de la diffusion double : ordres de diffusion supérieurs	201
6.10.1	Introduction	201
6.10.2	Calcul de la diffusion triple	202
6.10.3	Méthode de calcul utilisant les techniques des Opérateurs Tensoriels Irréductibles	203
6.10.4	Intégration numérique par méthode Monte-Carlo	205
A	Justification de la coupure des sommes de la section 2.4.5	209
A.1	Introduction	209
A.2	La fonction de Green $G_0(\mathbf{r}, 0; z)$ prise à l'énergie complexe z	209
A.3	Conséquence sur les états propres $\phi_n(0)$	212
A.4	Application pour la coupure des sommes	213

Remerciements

Avant de commencer une thèse, ou en la débutant, le regard posé sur la section “remerciements” des thèses que l’on est amené à consulter peut être assez critique : cette section est vue alors comme une longue litanie de noms, dont l’objet principal semble être de n’oublier personne. Et l’on se jure que, le moment venu, on fera autrement ! Le regard change lorsque, arrivé en fin de thèse, on réalise que ce travail, effectué sur plusieurs années, doit beaucoup à de nombreuses personnes. La présente section de remerciements a donc fait son deuil de l’originalité, mais pas de la sincérité.

Mes remerciements vont tout d’abord à Dominique Delande, qui a encadré cette thèse du début à la fin avec une disponibilité sans faille. Son intuition physique, sa patience et son énergie m’ont permis de faire ce travail de thèse dans les meilleures conditions qui soient. J’ai également largement bénéficié de l’interaction avec les autres membres de l’équipe : merci à Benoît Grémaud, pour ses coups de mains et ses conseils innombrables, ainsi qu’à Amaury Mouchet, Laurent Hilico et Nicolas Billy.

Ce travail ne sera complet qu’avec la soutenance. Un grand merci à Bart van Tiggelen et à M. Eugène Bogomolny d’avoir accepté, malgré un emploi du temps chargé et des délais plus courts que je ne l’aurais souhaité, d’être rapporteurs. Merci également à Patricio Lebœuf, à Jean-Marc Luck et à Claude Fabre d’avoir accepté de faire partie du jury.

La partie “diffusion multiple” de ce travail a été réalisée en étroite collaboration avec les membres du Laboratoire Ondes et Désordre de Nice, que je tiens à remercier. Merci en particulier à Cord Müller : les résultats de notre fructueuse collaboration théorique doivent beaucoup à son enthousiasme et à sa rigueur. Merci également à Christian Miniatura et à son sens critique, ainsi qu’à Guillaume Labeyrie et à Robin Kaiser. Plusieurs chercheurs nous ont également donné une aide précieuse à un moment ou à un autre du travail : merci à Serge Reynaud de nous avoir tiré d’un mauvais pas théorique, à Jean-Marc Luck, à Bart van Tiggelen, à Eric Akkermans et à Jakub Zakrzewski.

La partie “atome en champ extérieur” a également bénéficié de l’aide de plusieurs personnes. Merci à Kees Karremans pour m’avoir communiqué ses résultats expérimentaux. Merci également à Andreas Krugg, pour notre collaboration (à suivre) concernant la généralisation de la méthode au cas dépendant du temps.

Ce travail de recherche était accompagné d’une activité d’enseignement à Evry. Un grand merci à Nicolas Billy et Laurent Hilico, grâce à qui cet enseignement a eu lieu dans d’excellentes conditions.

La présence des autres thésards, post-docs et permanents a permis à ce travail de se dérouler dans un environnement chaleureux. Merci aux compagnons des délires cantiniens, des élucubrations five-o-clock-tea-iques, et autres : Gustavo Rodrigues, Matthias Vaupel, Laurent Vernac (et nos paris idiots), Jean-Philippe Karr (longue vie à JRL), Nicolas Treps, Jean-Pierre Hermier, Eric-Olivier le Bigot,

Bruno Manil, Pierre François Cohadon, Isabelle Maurin, Cyriaque Genêt, Gaëtan Hagel, Gaëtan Messin (et son aide logicielle), Alberto Bramati, Sara Ducci, Marcello Martinelli, Catherine Schwob, Thomas Coudreau, Philippe Pace, François Nez, Lucile Julien.

Merci à Karine Gauthier, Monique Bonnamy et Karima Nouira pour avoir géré avec efficacité et gentillesse tous les aspects administratifs.

Enfin, la fin de cette thèse aura été sérieusement bousculée par des problèmes de santé. Je tiens à remercier Dominique Delande pour sa compréhension, et pour la souplesse dont il a fait preuve. Merci également à Laurent Hilico et Nicolas Billy pour leur gestion souple elle aussi de mes absences, et à Benoît Grémaud et Michel Pinard pour leur aide. Un grand merci également à ma famille, et en particulier à mes parents, pour leur aide et leur soutien constant. Enfin, merci également à François Bonenfant, pour avoir dynamisé avec bonne humeur les moments difficiles de son colocataire.

Introduction

Ce travail de thèse comporte deux parties distinctes, concernant la diffusion d'ondes en milieu atomique. La première partie (chapitres 1 et 2) étudie le problème des niveaux excités d'un atome non-hydrogénoïde en champ extérieur. Ce système est très similaire au cas de l'hydrogène dans le même champ extérieur, mais est plus complexe à cause de la diffusion de l'onde électronique sur le cœur ionique non-hydrogénoïde. On montre dans cette première partie que la présence du cœur ionique est mathématiquement équivalente à celle d'un ou plusieurs diffuseurs ponctuels. Ceci permet d'obtenir une équation qui, d'une part, autorise un calcul efficace des niveaux d'énergie du système à partir de ceux pour l'atome d'hydrogène dans le même champ extérieur, et qui d'autre part mène à la prédiction des propriétés statistiques des niveaux d'énergie du système, en fonction de celles du système hydrogénoïde correspondant.

La deuxième partie (chapitres 3 à 6) est consacrée au problème de la diffusion multiple d'une onde lumineuse en milieu atomique, et en particulier à l'étude de l'augmentation cohérente de la rétrodiffusion par un gaz d'atomes. L'augmentation cohérente de la rétrodiffusion est un effet d'interférence entre des paires de chemins de diffusion multiple, et est un phénomène bien étudié pour des diffuseurs classiques. Dans cette deuxième partie, nous montrons que la prise en compte de la structure interne atomique est essentielle pour la compréhension de la rétrodiffusion cohérente par un milieu atomique, et mène à une diminution significative des facteurs d'augmentation observables. Un calcul explicite de la diffusion simple et de la diffusion double est donné, et ses résultats sont comparés à des données expérimentales récentes.

Première partie

Atome non-hydrogénoïde en
champ extérieur

Introduction

Le domaine du chaos quantique, c'est-à-dire l'étude du chaos dans les systèmes quantiques, a connu un large développement durant les vingt dernières années [1, 2]. Il a ainsi été montré que les propriétés statistiques des niveaux d'énergie d'un système quantique sont directement liées au caractère régulier ou chaotique du système classique correspondant [3]. A un système classique régulier correspond un système quantique dont les niveaux d'énergie sont statistiquement non-corrélés et obéissent à une statistique poissonnienne, et à un système classique chaotique correspond un système quantique dont les niveaux d'énergie obéissent à une statistique similaire à celle des valeurs propres d'un ensemble de matrices gaussiennes aléatoires. La distribution d'espacement $P(s)$, qui donne la probabilité de trouver un niveau d'énergie voisin d'un niveau donné à une distance s (en unité d'espacement moyen) reflète le comportement statistique des niveaux. Dans le cas d'un système régulier, elle est donnée par $P(s) = \exp(-s)$, alors que pour un système chaotique, invariant par renversement du temps, elle est en très bonne approximation donnée par la distribution de Wigner $P(s) = \pi s/2 \exp(-\pi s^2/4)$. Cette distribution montre que les niveaux d'énergie d'un système chaotique se repoussent : la probabilité de trouver deux niveaux voisins séparés d'une distance s est proportionnelle à s pour $s \rightarrow 0$.

Parmi les systèmes physiques permettant une étude expérimentale du chaos quantique, un atome en champ extérieur constitue un système aisément accessible. Suivant les caractéristiques de l'atome et du champ extérieur, il est possible d'observer un système quantique dont l'équivalent classique est régulier ou chaotique. L'atome d'hydrogène, en champ magnétique (indépendant du temps), fournit un système exemplaire [4, 5] : suivant la valeur de l'énergie réduite, $\epsilon = E \gamma^{-2/3}$ (où E est l'énergie, et γ la valeur du champ magnétique, en unités atomiques), ce système sera régulier ($\epsilon \leq 0,5$) ou chaotique ($\epsilon \geq -0,13$). La statistique de ses niveaux d'énergie sera poissonnienne dans le premier cas, et du type "matrice gaussienne aléatoire" dans le second.

Un atome alcalin avec un électron excité dans un champ extérieur constitue un système assez similaire à l'atome d'hydrogène en champ extérieur [6, 7]. L'électron de Rydberg est dans un état très excité, alors que tous les autres électrons sont dans un état peu excité. On peut considérer que le noyau atomique et les électrons peu excités forment un cœur ionique gelé de symétrie sphérique, d'une taille de quelques rayons de Bohr. Tant qu'il est à l'extérieur du cœur ionique, l'électron de Rydberg voit un potentiel coulombien équivalent à celui créé par une charge $Z = 1$ placée au centre du noyau. Ce n'est que lorsqu'il est à l'intérieur du cœur que l'électron de Rydberg voit un potentiel différent. Puisque l'électron de Rydberg est typiquement loin du cœur (distance caractéristique de quelques milliers de rayons de Bohr), le cœur ionique apparaît comme un très petit objet perturbant la dynamique hydrogénoïde de l'électron.

Il est dès lors intéressant de s'interroger sur les propriétés statistiques des ni-

veaux d'énergie d'un atome alcalin en champ extérieur, par rapport à celles du système hydrogénoïde correspondant ; c'est-à-dire de déterminer l'effet du cœur ionique sur les propriétés statistiques des niveaux d'énergie. Cette partie de la thèse présente d'une part une méthode permettant un calcul efficace des niveaux d'énergie excités d'un atome alcalin en champ extérieur, à partir des solutions pour l'hydrogène dans le même champ extérieur. Et l'équation obtenue permet d'autre part de déterminer les principales propriétés statistiques des niveaux d'énergie de l'atome non-hydrogénoïde à partir de celles du système hydrogénoïde. Nous nous intéresserons particulièrement au cas où le système hydrogénoïde est régulier (par exemple l'hydrogène en champ magnétique à faible énergie réduite, ou en champ électrique), et nous verrons que dans ce cas les propriétés statistiques des niveaux d'énergie du système non-hydrogénoïde ne sont ni celles d'un système régulier, ni celles d'un système chaotique, mais d'un type intermédiaire. Cette statistique intermédiaire a comme prototype la distribution dite "demi-Poisson", avec pour distribution d'espacement $P(s) = 4s \exp(-2s)$ [8].

La méthode que nous utiliserons pour traiter la présence du cœur ionique se base sur le fait que le cœur apparaît comme un objet très petit perturbant la dynamique de l'électron de Rydberg. Ceci permet d'identifier, de manière mathématiquement rigoureuse, le rôle du cœur ionique à celui d'un (ou plusieurs) diffuseur ponctuel. Un diffuseur ponctuel est un objet diffusant de dimension nulle [9]. Dans le cadre du chaos quantique, Seba a été le premier à envisager l'effet d'un diffuseur ponctuel, en étudiant les propriétés statistiques d'un billard rectangulaire dans lequel est placé un diffuseur ponctuel [10, 11]. Pour ce faire, il a obtenu une équation reliant les niveaux d'énergie du système avec diffuseur à ceux du système sans diffuseur. En identifiant diffuseur ponctuel et cœur ionique, cette équation peut être utilisée pour le calcul des niveaux d'énergie de l'atome non-hydrogénoïde en champ extérieur, et pour prévoir le comportement statistique de ces niveaux d'énergie.

Cette partie comporte deux chapitres. Le chapitre 1 expose la théorie du diffuseur ponctuel. On y montre comment traiter de manière rigoureuse l'introduction d'un diffuseur ponctuel dans un système donné. L'équation (dite de Seba) permettant de calculer les niveaux d'énergie du système avec diffuseur en fonction des solutions du système sans diffuseur est obtenue, et les propriétés statistiques de ses solutions sont discutées. Le chapitre 2 est consacré au problème de l'atome non-hydrogénoïde en champ extérieur. La méthode de résolution basée sur l'analogie entre le cœur ionique et un diffuseur ponctuel est présentée, et les propriétés statistiques des solutions sont discutées et comparées à des résultats numériques ou expérimentaux.

Chapitre 1

Théorie du diffuseur ponctuel

1.1 Introduction

Dans ce chapitre, nous nous intéressons à la manière de traiter d'un point de vue quantique l'ajout d'un diffuseur ponctuel dans un système caractérisé par un hamiltonien H_0 . L'utilisation d'un diffuseur ponctuel permet de modéliser simplement un diffuseur réel de taille petite par rapport aux dimensions caractéristiques du système ainsi qu'à longueur d'onde de de Broglie de la particule diffusée, et dont la structure interne peut être négligée. Le caractère ponctuel du diffuseur impose d'utiliser une technique de régularisation particulière pour éviter les divergences. Parmi les nombreuses techniques existantes, nous considérons ici la technique d'extension auto-adjointe. Celle-ci mène à une équation permettant de calculer simplement les valeurs propres du système avec diffuseur en fonction des propriétés du système sans diffuseur. Cette équation permet en outre de prédire certaines propriétés statistiques de ses solutions. Ceci nous mènera à considérer les distributions statistiques de niveaux dites intermédiaires.

Nous verrons dans le chapitre 2 que la méthode de résolution exposée ici peut se transposer au cas d'un atome non-hydrogénoïde en champ extérieur, et que les solutions des deux problèmes ont des propriétés similaires. Le but est donc d'introduire ici tous les concepts et les techniques nécessaires pour le chapitre 2.

Le plan de ce chapitre est le suivant. Dans la section 1.2, on rappelle la définition et quelques propriétés de la fonction de Green, qui sera largement utilisée dans toute la suite. La section 1.3 est consacrée à la résolution du problème pour le système avec diffuseur. La technique rigoureuse d'extension auto-adjointe y est présentée, qui permet d'obtenir les valeurs propres du système avec diffuseur en fonction de celles du système sans diffuseur. Ceci conduit à l'équation de Seba. Une interprétation de la méthode en termes de diffusion multiple est également présentée. La section 1.4 étudie les propriétés statistiques de l'équation de Seba, tout d'abord dans le cas d'un système régulier en l'absence de diffuseur, et ensuite pour un système chaotique en l'absence de diffuseur. La section 1.5 intro-

duit la distribution “demi-Poisson”, qui est un prototype simple de distribution intermédiaire, et donne ses propriétés. Enfin, la section 1.6 montre comment la méthode de résolution peut être généralisée pour traiter la présence de plusieurs diffuseurs ponctuels, à partir d’un raisonnement en termes de diffusion multiple.

Dans ce chapitre, nous posons $\hbar = 1$, et $m = 1$, où m est la masse de la particule apparaissant dans l’équation de Schrödinger.

1.2 Introduction à la fonction de Green

La fonction de Green est un outil largement utilisé dans la suite. Voici un rappel de sa définition et de ses principales propriétés [12].

Soit un système caractérisé par un hamiltonien H , décrivant une particule unique sans structure interne. Les valeurs propres E_i et vecteurs propres $|\psi_i\rangle$ de H sont définis par :

$$H |\psi_i\rangle = E_i |\psi_i\rangle \quad (1.1)$$

Les E_i forment un spectre discret et/ou continu. La résolvante $G(z)$ associée à H est définie pour $z \in \mathbb{C}$ par :

$$G(z) = \frac{1}{z - H} \quad (1.2)$$

C’est une fonction analytique de z , excepté sur l’axe réel où elle présente des pôles ($z = E_i$, pour la partie discrète du spectre) et/ou une coupure (pour la partie continue du spectre). En utilisant la relation de fermeture pour les vecteurs propres de H , on obtient le développement de la résolvante sur ces vecteurs propres :

$$\frac{1}{z - H} = \sum_i \frac{|\psi_i\rangle\langle\psi_i|}{z - E_i} \quad (1.3)$$

La fonction de Green $G(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; z)$ est la représentation de $G(z)$ sur la base $|\mathbf{r}\rangle$ des vecteurs propres de l’opérateur position :

$$G(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; z) = \langle\mathbf{r}|G(z)|\mathbf{r}'\rangle \quad (1.4)$$

A partir du développement (1.3), on obtient la représentation spectrale de la fonction de Green :

$$G(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; z) = \sum_i \frac{\psi_i(\mathbf{r})\psi_i^*(\mathbf{r}')}{z - E_i} \quad (1.5)$$

avec $\langle\mathbf{r}|\psi_i\rangle = \psi_i(\mathbf{r})$. Puisque $(H - z)G(z) = -1$, la fonction de Green satisfait l’équation :

$$(H(\mathbf{r}) - z)G(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; z) = -\delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}') \quad (1.6)$$

où $H(\mathbf{r})$ est la représentation en base $|\mathbf{r}\rangle$ de H .

Remarquons que la fonction de Green contient toute l’information sur le système caractérisé par le hamiltonien H , puisqu’elle contient toutes les valeurs propres et

fonctions propres de H . A un pôle correspond une valeur propre discrète, et le résidu pour ce pôle est proportionnel à la fonction propre associée. A une coupure correspond un spectre continu, et la fonction propre pour une énergie E s'obtient en calculant la valeur de la coupure à cette énergie. Notons enfin que la fonction de Green pour $z = E \in \mathbb{R}$ permet d'obtenir localement une fonction satisfaisant l'équation de Schrödinger. Si, dans l'équation (1.6), on considère $G(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; E)$ comme une fonction de \mathbf{r} (avec \mathbf{r}' fixé), et si l'on se limite à un domaine D pour \mathbf{r} tel que $\mathbf{r}' \notin D$, on a alors :

$$(H(\mathbf{r}) - E) G(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; E) = 0 \quad \mathbf{r} \in D \quad (1.7)$$

et $G(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; E)$ satisfait, dans le domaine D , l'équation de Schrödinger.

1.2.1 Divergence de $G(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; E)$ pour $\mathbf{r} \rightarrow \mathbf{r}'$

Nous allons considérer ici un hamiltonien de la forme $H(\mathbf{r}) = -\Delta/2 + V(\mathbf{r})$, et nous allons montrer qu'en général, la divergence de $G(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; E)$ pour $\mathbf{r} \rightarrow \mathbf{r}'$ est indépendante de l'énergie et du potentiel extérieur[12], à moins que celui-ci ne diverge trop fortement pour $\mathbf{r} \rightarrow \mathbf{r}'$. Par simplicité, on pose $\mathbf{r}' = 0$. L'équation donnant $G(\mathbf{r}, 0; E)$ est :

$$\left(\frac{-\Delta}{2} + V(\mathbf{r}) - E \right) G(\mathbf{r}, 0; E) = -\delta(\mathbf{r}) \quad (1.8)$$

On intègre cette équation dans la sphère de rayon infinitésimal ϵ autour de 0, que l'on note $V(\epsilon)$:

$$\int_{V(\epsilon)} d\mathbf{r} \frac{-\Delta}{2} G(\mathbf{r}, 0; E) + \int_{V(\epsilon)} d\mathbf{r} (V(\mathbf{r}) - E) G(\mathbf{r}, 0; E) = -1 \quad (1.9)$$

Dans la première intégrale, $\Delta = \nabla \cdot \nabla$, et on peut appliquer le théorème de la divergence pour obtenir :

$$- \int_{S(\epsilon)} d\mathbf{S} \cdot \frac{\nabla G(\mathbf{r}, 0; E)}{2} + \int_{V(\epsilon)} d\mathbf{r} (V(\mathbf{r}) - E) G(\mathbf{r}, 0; E) = -1 \quad (1.10)$$

où $S(\epsilon)$ désigne la surface de la sphère de rayon ϵ . Puisque $G(\mathbf{r}, 0; E)$ diverge pour $\mathbf{r} \rightarrow 0$, $\nabla G(\mathbf{r}, 0; E)$ est divergent à un ordre plus élevé. Si $V(\mathbf{r})$ ne diverge pas pour $\mathbf{r} \rightarrow 0$, on peut alors négliger la deuxième intégrale dans l'équation (1.10) devant la première. On pourra vérifier cette approximation *a posteriori*. Si l'on peut oublier le potentiel extérieur, $G(\mathbf{r}, 0; E)$ sera isotrope pour $\mathbf{r} \rightarrow 0$, et l'équation devient simplement :

$$-\frac{4\pi\epsilon^2}{2} \left[\frac{\partial G(\mathbf{r}, 0; E)}{\partial r} \right]_{r=\epsilon} = -1 \quad (1.11)$$

On peut intégrer cette équation, ce qui donne :

$$G(\mathbf{r}, 0; E) = -\frac{1}{2\pi r} + o\left(\frac{1}{r}\right) \quad r \rightarrow 0 \quad (1.12)$$

Comme annoncé, la divergence de la fonction de Green est indépendante de l'énergie et du potentiel extérieur. En utilisant l'expression obtenue pour $G(\mathbf{r}, 0; E)$, et en examinant les différents ordres en ϵ dans l'équation (1.10), il apparaît que le potentiel $V(\mathbf{r})$ peut être négligé à condition que $V(\mathbf{r}) = o(1/r^2)$ pour $\mathbf{r} \rightarrow 0$. De la même manière, on voit que ce n'est qu'à partir du terme $O(r^0)$ que $G(\mathbf{r}, 0; E)$ pour $\mathbf{r} \rightarrow 0$ dépend de l'énergie.

Nous avons raisonné ici en dimension 3. On peut évidemment faire le même raisonnement en dimension 2, qui s'applique entre autres aux systèmes de type "billard". Dans ce cas, on obtient :

$$G(\mathbf{r}, 0; E) = \frac{1}{\pi} \ln(r) \quad \mathbf{r} \rightarrow 0 \quad (1.13)$$

Le potentiel hydrogénoïde est un cas particulier que nous utiliserons dans la suite. Le cas intéressant est celui où le noyau (de charge Z) est placé à l'origine ($V(\mathbf{r})$ diverge donc comme Z/r pour $\mathbf{r} \rightarrow 0$). Dans ce cas, l'équation (1.12) est valable, mais peut être précisée. En gardant dans l'équation (1.10) le terme Z/r de $V(\mathbf{r})$, et en séparant les différents ordres en ϵ , on obtient pour $G(\mathbf{r}, 0; E)$:

$$G(\mathbf{r}, 0; E) = -\frac{1}{2\pi r} + 2Z \ln(r) + O(r^0) \quad \mathbf{r} \rightarrow 0 \quad (1.14)$$

Le potentiel hydrogénoïde en Z/r introduit donc une divergence logarithmique supplémentaire dans la fonction de Green, proportionnelle à la charge Z du noyau. Notons que le terme $O(r^0)$ (ainsi que tous les suivants) dépend de l'énergie E .

Une conséquence importante de ces résultats concerne la fonction de Green pour l'atome d'hydrogène en champ extérieur. Le terme supplémentaire dans le potentiel dû à un champ électrique ou magnétique extérieur n'est pas divergent pour $\mathbf{r} \rightarrow 0$, et donc ne change pas les résultats pour l'hydrogène seul (l'action du champ extérieur ne se voit qu'à partir des termes $O(r^0)$ dans $G(\mathbf{r}, 0; E)$). Cela signifie que la divergence de la fonction de Green $G(\mathbf{r}, 0; E)$ de l'hydrogène pour $\mathbf{r} \rightarrow 0$ (avec le noyau à l'origine) est indépendante du champ extérieur.

1.3 Résolution du problème avec diffuseur

1.3.1 Introduction

Cette section expose une méthode permettant de traiter la présence d'un diffuseur ponctuel dans un système donné. Un diffuseur ponctuel, qui est entièrement caractérisé par son intensité, permet de modéliser simplement un diffuseur réel de

taille petite par rapport aux dimensions caractéristiques du système et à la longueur d'onde de de Broglie de la particule diffusée, et dont la structure interne est sans importance.

L'ajout dans le hamiltonien d'un terme $g\delta(\mathbf{r}-\mathbf{r}_0)$ pour représenter un diffuseur d'intensité g en $\mathbf{r} = \mathbf{r}_0$ n'est pas possible, car cela donne des expressions divergentes (sauf en dimension $d = 1$, cas que nous ne considérons pas ici). En effet, considérons par exemple l'expression de la fonction de Green du système avec diffuseur, $G(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; E)$, en fonction de celle du système sans diffuseur, $G_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; E)$ [13] :

$$G(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; E) = G_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; E) + \int d\mathbf{r}'' G_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}''; E) T(\mathbf{r}''; E) G_0(\mathbf{r}'', \mathbf{r}'; E) \quad (1.15)$$

Cette expression fait intervenir la matrice T du diffuseur, qui admet le développement en série suivant (série de Born) :

$$\begin{aligned} T(\mathbf{r}; E) = & V(\mathbf{r}) + V(\mathbf{r}) \int d\mathbf{r}' G_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; E) V(\mathbf{r}') \\ & + V(\mathbf{r}) \int d\mathbf{r}' G_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; E) V(\mathbf{r}') \int d\mathbf{r}'' G_0(\mathbf{r}', \mathbf{r}''; E) V(\mathbf{r}'') + \dots \end{aligned} \quad (1.16)$$

On voit qu'en prenant $V(\mathbf{r}) = g\delta(\mathbf{r}-\mathbf{r}_0)$, la série ci-dessus devient :

$$T(\mathbf{r}; E) = g\delta(\mathbf{r}-\mathbf{r}_0) [1 + gG_0(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_0; E) + g^2(G_0(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_0; E))^2 + \dots] \quad (1.17)$$

Or, $G_0(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_0; E)$ est une quantité divergente, ce qui signifie que la série donnant la matrice T diverge dès le deuxième ordre. Ceci montre que l'ajout d'un diffuseur ponctuel nécessite une approche spécifique [14, 15]. Une technique totalement rigoureuse est l'utilisation de l'extension auto-adjointe, expliquée ci-dessous.

Notons que l'effet d'un diffuseur ponctuel dans le cadre du "chaos quantique" a été envisagé tout d'abord par Seba [10, 11, 16, 17]. Celui-ci a étudié la statistique des niveaux d'énergie d'un billard rectangulaire dans lequel on a placé un diffuseur ponctuel. Alors qu'un diffuseur ponctuel n'a pas d'effet sur le système classique, puisqu'il n'y a qu'un nombre négligeable de trajectoires, formant un ensemble de mesure nulle, qui passent par celui-ci, le système quantique est fortement influencé par le diffuseur, et la statistique des niveaux est modifiée. Nous verrons dans la suite que l'introduction d'un diffuseur ponctuel dans un système régulier mène à une statistique de niveaux bien particulière, intermédiaire entre celle d'un système régulier et celle d'un système chaotique.

1.3.2 Le principe de la technique d'extension auto-adjointe

Dans la section suivante, nous utiliserons la technique d'extension auto-adjointe pour définir rigoureusement un diffuseur ponctuel. Le propos de la section présente n'est pas de donner un exposé détaillé de cette méthode, mais d'en expliquer le principe à partir d'un exemple simple, sans prétendre à une parfaite rigueur

mathématique. Cette section est directement inspirée de la référence [18], qui présente de manière pédagogique la technique d'extension auto-adjointe.

Nous allons considérer l'opérateur impulsion à une dimension, défini sur le segment $[0, L]$. L'opérateur est :

$$p = -i \frac{d}{dx} \quad (1.18)$$

et nous imposons aux fonctions sur lesquelles il agit d'être nulles en $x = 0$ et $x = L$. Le domaine $D(p)$ de l'opérateur p est donc donné par :

$$D(p) = \left\{ \phi(x) \mid \phi(x), \frac{d\phi(x)}{dx} \in L^2([0, L]); \phi(0) = \phi(L) = 0 \right\} \quad (1.19)$$

On voit facilement que p est un opérateur symétrique. En effet, si (ψ, ϕ) dénote le produit scalaire entre les fonctions $\psi(x)$ et $\phi(x)$, on a :

$$\begin{aligned} \left(\psi, -i \frac{d\phi}{dx} \right) - \left(-i \frac{d\psi}{dx}, \phi \right) &= \int_0^L dx \left[\psi^*(x) \left(-i \frac{d\phi(x)}{dx} \right) - \left(i \frac{d\psi^*(x)}{dx} \right) \phi(x) \right] \\ &= -i [\psi^*(L)\phi(L) - \psi^*(0)\phi(0)] \end{aligned} \quad (1.20)$$

et comme $\phi(L) = \phi(0) = 0$, on a bien :

$$\left(\psi, -i \frac{d\phi}{dx} \right) = \left(-i \frac{d\psi}{dx}, \phi \right) \quad (1.21)$$

ce qui signifie que l'adjoint de p , p^+ , a la même expression que p :

$$p^+ = -i \frac{d}{dx} \quad (1.22)$$

Toutefois, ceci ne suffit pas à faire de p un opérateur auto-adjoint. En effet, le domaine de p^+ est donné par :

$$D(p^+) = \left\{ \psi(x) \mid \psi(x), \frac{d\psi(x)}{dx} \in L^2([0, L]) \right\} \quad (1.23)$$

sans aucune contrainte sur $\psi(x)$ en 0 ou en L . Cette absence de contrainte sur les fonctions du domaine de p^+ découle du fait que l'on a imposé des contraintes très fortes (trop fortes!) sur les fonctions du domaine de p (nulles en 0 et en L). Puisque $D(p^+) \neq D(p)$, p n'est pas un opérateur auto-adjoint.

On peut obtenir un opérateur auto-adjoint à partir de p en effectuant une extension de l'opérateur p (d'où le nom de la méthode). Le principe est d'augmenter le domaine de l'opérateur, afin qu'il coïncide avec le domaine de son adjoint. Dans le cas que l'on considère, on arrive à une famille d'opérateurs p_θ , caractérisée par le paramètre $\theta \in [0, 2\pi[$, p_θ étant défini par :

$$p_\theta = -i \frac{d}{dx} \quad (1.24)$$

$$D(p_\theta) = \left\{ \phi(x) \mid \phi(x), \frac{d\phi(x)}{dx} \in L^2([0, L]); \phi(0) = e^{i\theta} \phi(L) \right\} \quad (1.25)$$

Notons que $\theta = 0$ correspond simplement aux conditions périodiques $\phi(0) = \phi(L)$.

D'une manière générale, l'extension auto-adjointe d'un opérateur A s'obtient en considérant les dimensions n_+, n_- des sous-espaces propres $\mathcal{N}_+, \mathcal{N}_-$ de l'opérateur A^+ , définis par¹ :

$$\mathcal{N}_+ = \{ \psi \in D(A^+) , A^+ \psi = z_+ \psi , \text{Im} z_+ > 0 \} \quad (1.26)$$

$$\mathcal{N}_- = \{ \psi \in D(A^+) , A^+ \psi = z_- \psi , \text{Im} z_- < 0 \} \quad (1.27)$$

On montre que les dimensions n_+, n_- ne dépendent pas du choix de z_+ et z_- (le plus simple étant de choisir $z_+ = \lambda i$ et $z_- = -\lambda i$). Un théorème montre alors que l'opérateur A admet une famille d'extensions auto-adjointes si et seulement si on a :

$$n_+ = n_- = n \geq 1 \quad (1.28)$$

(si $n_+ = n_- = 0$, l'opérateur A est auto-adjoint). La famille est paramétrisée par une matrice unitaire $n \times n$. Dans le cas $n_+ = n_- = 1$, qui est celui d'un diffuseur ponctuel, le domaine de l'opérateur A_θ (extension auto-adjointe de A) est donné par :

$$D(A_\theta) = \{ \phi(x) + c \psi_+(x) - c e^{i\theta} \psi_-(x) \mid \phi(x) \in D(A) , c \in \mathbb{C} \} \quad (1.29)$$

$\psi_+(x)$ (respectivement $\psi_-(x)$) étant la fonction propre normée associée à la valeur propre z_+ (resp. z_-).

1.3.3 Définition d'un diffuseur ponctuel au moyen de l'extension auto-adjointe

Nous utilisons ici la méthode d'extension auto-adjointe afin de traiter la présence d'un diffuseur ponctuel dans un cadre mathématiquement rigoureux [9, 11].

Nous considérons tout d'abord le système sans diffuseur. Son hamiltonien est H_0 , avec $D(H_0) \subset L^2(\mathbb{R}^n)$ ($n = 2$ ou 3). H_0 est un opérateur auto-adjoint :

$$H_0^+ = H_0 \quad D(H_0^+) = D(H_0) \quad (1.30)$$

Nous noterons $G_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; E)$ la fonction de Green à énergie E du système sans diffuseur.

Nous plaçons maintenant un diffuseur ponctuel dans le système, en \mathbf{r}_0 . Pour ce faire, on impose aux fonctions du système de s'annuler en \mathbf{r}_0 . On définit ainsi un

¹On parle en Anglais des *deficiency subspaces* pour \mathcal{N}_+ et \mathcal{N}_- , et des *deficiency indices* pour n_+ et n_- .

opérateur \widetilde{H}_0 , qui a la même expression que H_0 , mais dont le domaine est restreint aux fonctions qui s'annulent en \mathbf{r}_0 :

$$D(\widetilde{H}_0) = \{\psi \in D(H_0) \mid \psi(\mathbf{r}_0) = 0\} \quad (1.31)$$

A cause de la contrainte en \mathbf{r}_0 , l'opérateur \widetilde{H}_0 , qui représente le système avec un diffuseur ponctuel en \mathbf{r}_0 , n'est pas auto-adjoint. On montre en effet [19] que son adjoint, \widetilde{H}_0^+ , admet des valeurs propres complexes : la valeur propre $\mathcal{E}_0 i$ (où \mathcal{E}_0 est une échelle d'énergie arbitraire) est non dégénérée, et a pour fonction propre $G_0(\mathbf{x}, \mathbf{r}_0; \mathcal{E}_0 i)$ (c'est-à-dire la fonction du Green du système sans diffuseur à l'énergie $\mathcal{E}_0 i$, vue comme fonction de \mathbf{x}) ; la valeur propre $-\mathcal{E}_0 i$ est également non dégénérée, et a pour fonction propre $G_0(\mathbf{x}, \mathbf{r}_0; -\mathcal{E}_0 i)$.

En utilisant le théorème évoqué dans la section précédente, on peut obtenir une famille d'extensions auto-adjointes de l'opérateur \widetilde{H}_0 . On aboutit ainsi à la famille d'opérateurs H_θ , caractérisée par le paramètre $\theta \in [0, 2\pi[$, avec

$$D(H_\theta) = \{\psi(\mathbf{x}) = \phi(\mathbf{x}) + c G_0(\mathbf{x}, \mathbf{r}_0; \mathcal{E}_0 i) - c e^{i\theta} G_0(\mathbf{x}, \mathbf{r}_0; -\mathcal{E}_0 i) \mid \phi(\mathbf{x}) \in D(\widetilde{H}_0), c \in \mathbb{C}\} \quad (1.32)$$

L'action de H_θ est donnée par :

$$H_\theta \Psi(\mathbf{x}) = H_0 \phi(\mathbf{x}) + \mathcal{E}_0 i c G_0(\mathbf{x}, \mathbf{r}_0; \mathcal{E}_0 i) + \mathcal{E}_0 i c e^{i\theta} G_0(\mathbf{x}, \mathbf{r}_0; -\mathcal{E}_0 i)$$

θ est un paramètre qui caractérise l'intensité du diffuseur, et \mathcal{E}_0 une échelle d'énergie arbitraire. Puisque H_θ est l'extension auto-adjointe de l'opérateur \widetilde{H}_0 du système avec un diffuseur ponctuel en \mathbf{r}_0 , les valeurs propres du hamiltonien H_θ fournissent les énergies du système avec un diffuseur ponctuel en \mathbf{r}_0 .

A partir de l'expression de $D(H_\theta)$, on voit que le rôle du diffuseur est d'imposer un comportement donné en \mathbf{r}_0 pour les fonctions d'onde du problème. Pour les H_0 de la forme $-\Delta/2 + V(\mathbf{r})$, $G_0(\mathbf{r}_0 + \epsilon, \mathbf{r}_0; E)$ contient, pour $\epsilon \rightarrow 0$, un terme divergent indépendant de l'énergie, et un terme constant qui en dépend (la forme précise de ces deux termes dépend de $V(\mathbf{r})$ et de la dimension de l'espace, voir section 1.2). Dans la somme $G_0(\mathbf{x}, \mathbf{r}_0; \mathcal{E}_0 i) + e^{i\theta} G_0(\mathbf{x}, \mathbf{r}_0; -\mathcal{E}_0 i)$, θ fixe donc le rapport entre le terme divergent et le terme constant pour $\mathbf{x} \rightarrow \mathbf{r}_0$. Ainsi, la valeur $\theta = 0$ correspond au cas où la divergence de $G_0(\mathbf{x}, \mathbf{r}_0; \mathcal{E}_0 i)$ en \mathbf{r}_0 est compensée par celle de $G_0(\mathbf{x}, \mathbf{r}_0; -\mathcal{E}_0 i)$, et correspond donc à un diffuseur d'intensité nulle.

1.3.4 Propriétés du diffuseur ainsi défini

Le traitement que nous avons utilisé pour obtenir un diffuseur ponctuel étant assez abstrait, il est utile de détailler quelques propriétés de ce diffuseur. Nous considérons ici un diffuseur dans l'espace libre à 3 dimensions. Une discussion complète de ce cas (ainsi que d'autres) peut être trouvée dans la référence [9].

Il est intéressant d'introduire le paramètre $\alpha \in [-\infty, \infty]$, qui paramétrise la force du diffuseur de manière équivalente à θ . Pour ce faire, on décompose l'équation de Schrödinger sur les harmoniques sphériques :

$$\phi(\mathbf{r}) = \sum_{lm} Y_l^m(\theta, \phi) \phi_l(r) = \sum_{lm} Y_l^m(\theta, \phi) \frac{f_l(r)}{r} \quad (1.33)$$

et les fonctions $f_l(r)$ satisfont l'équation radiale :

$$\left(\frac{-1}{2} \frac{d^2}{dr^2} + \frac{l(l+1)}{2r^2} \right) f_l(r) = E f_l(r) \quad l = 0, 1, 2, \dots \quad (1.34)$$

Lorsque l'on place un diffuseur ponctuel en 0, on montre [20] que parmi les opérateurs $h_l = (1/2)(-d^2/dr^2 + l(l+1)/r^2)$, seul l'opérateur h_0 n'est pas auto-adjoint, et son extension auto-adjointe s'obtient en considérant les fonctions $f_0(r)$ satisfaisant la condition :

$$\lim_{r \rightarrow 0} \left(-2\pi\alpha f_0(r) + \frac{df_0(r)}{dr} \right) = 0 \quad -\infty \leq \alpha \leq \infty \quad (1.35)$$

Avec ce point de vue, il apparaît clairement que l'extension auto-adjointe revient à imposer un comportement donné à $f_0(r)$ pour $r \rightarrow 0$, le coefficient de proportionnalité entre f_0 et sa dérivée étant donné par $(-2\pi\alpha)$. Le lien entre le paramètre α et le paramètre θ défini précédemment est donné par :

$$-2\pi\alpha = \frac{1}{\sqrt{2}} (\cotg(\theta/2) + 1) \quad (1.36)$$

$\alpha \rightarrow \pm\infty$ quand $\theta \rightarrow 0$, c'est-à-dire quand la force du diffuseur tend vers 0.

Le paramètre α permet d'exprimer simplement les diverses propriétés du diffuseur. Tout d'abord, la fonction de Green du système avec un diffuseur (placé en \mathbf{r}_0), que l'on note maintenant $G_\theta(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; E)$, s'exprime simplement en fonction de celle dans l'espace libre (qui est le système sans diffuseur), $G_{\text{libre}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; E)$:

$$G_\theta(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; E) = G_{\text{libre}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; E) + G_{\text{libre}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0; E) \frac{-1}{\alpha - ik/(2\pi)} G_{\text{libre}}(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}'; E) \quad (1.37)$$

avec $k^2 = 2E$. La fonction de Green libre $G_{\text{libre}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; E)$ étant donnée par :

$$G_{\text{libre}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; E) = \frac{-1}{2\pi} \frac{\exp(ik|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|)}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} \quad (1.38)$$

il s'ensuit que les états de diffusion (états propres d'énergie positive) ont pour expression :

$$\psi(\mathbf{r}) = e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} + e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}_0} \frac{\exp(ik|\mathbf{r} - \mathbf{r}_0|)}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}_0|} \frac{1}{2\pi\alpha - ik} \quad (1.39)$$

On en déduit l'amplitude de diffusion $d(E)$ du diffuseur :

$$d(E) = \frac{1}{2\pi\alpha - ik} \quad (1.40)$$

et la section efficace $\sigma(E)$:

$$\sigma(E) = 4\pi |d(E)|^2 = 4\pi \frac{1}{(2\pi\alpha)^2 + k^2} \quad (1.41)$$

Pour une énergie donnée, la valeur maximale de $\sigma(E)$ est obtenue pour $\alpha = 0$. On a alors $\sigma(E) = (4\pi)/k^2$.

Ensuite, le spectre de H_θ est constitué d'une part d'un continuum pour $E \in \mathbb{R}^+$, dont les fonctions propres associées sont les états de diffusion sur le diffuseur (éq. (1.39)). D'autre part, il contient également une valeur propre négative lorsque la condition $\alpha < 0$ est satisfaite. Cette valeur propre vaut alors $-(2\pi\alpha)^2$, et la fonction propre correspondante (l'état lié au diffuseur) s'écrit :

$$\psi(\mathbf{r}) = \frac{1}{\sqrt{-\alpha}} \frac{\exp(2\pi\alpha|\mathbf{r} - \mathbf{r}_0|)}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}_0|} \quad (1.42)$$

La diffusion sur le diffuseur ponctuel peut également être entièrement caractérisée en terme des déphasages. D'une manière générale, les déphasages $\phi_l(k)$ ($l = 0, 1, 2, \dots$) d'un potentiel à symétrie sphérique sont définis, pour chaque l , comme le déphasage pour $r \rightarrow \infty$ de la solution $f_l(r)$ en présence du potentiel par rapport à la solution $f_l(r)$ en l'absence de potentiel [12]. Nous avons vu que le diffuseur ponctuel est sans effet sur les fonctions $f_l(r)$ pour $l \geq 1$. Les déphasages pour $l \geq 1$ sont donc tous nuls :

$$\phi_l(k) = 0 \quad l = 1, 2, 3, \dots \quad (1.43)$$

Le déphasage pour $l = 0$ est en revanche non-nul. En plaçant l'origine des coordonnées en \mathbf{r}_0 , la composante $l = 0$ de l'état de diffusion (1.39) s'écrit :

$$\frac{\psi_0(r; E)}{r} = \frac{\sin kr}{kr} + \frac{1}{2\pi\alpha - ik} \frac{e^{ikr}}{r} \quad k^2 = 2E \quad (1.44)$$

(on vérifie aisément que $\psi_0(r; E)$ est solution des équations (1.34) et (1.35)). La fonction $\sin kr/k$ étant la fonction propre en l'absence de diffuseur, on peut écrire ψ_0 sous la forme donnant le déphasage :

$$\psi_0(r; E) = e^{i\phi_0(k)} \frac{\sin(kr + \phi_0(k))}{k} \quad (1.45)$$

avec pour $\phi_0(k)$:

$$\cos \phi_0(k) = \frac{2\pi\alpha}{\sqrt{(2\pi\alpha)^2 + k^2}} \quad \sin \phi_0(k) = \frac{k}{\sqrt{(2\pi\alpha)^2 + k^2}} \quad (1.46)$$

Le déphasage pour $l = 0$ est donc encore donné par

$$k \cotg\phi_0(k) = 2\pi\alpha \quad (1.47)$$

On vérifie à nouveau que $\alpha = \pm\infty$ correspond à l'absence de diffuseur, puisque cela donne $\phi_0(k) = 0$ (pas de déphasage). De l'expression du déphasage, on déduit enfin la longueur de diffusion dans l'onde S, a_0 , définie par :

$$-\frac{1}{a_0} = \lim_{k \rightarrow 0} (k \cotg\phi_0(k)) \quad (1.48)$$

On obtient donc :

$$a_0 = \frac{-1}{2\pi\alpha} \quad (1.49)$$

Le paramètre α introduit précédemment est donc simplement proportionnel à l'inverse de la longueur de diffusion du diffuseur. D'après l'expression (1.41), on vérifie que, à basse énergie (c'est-à-dire pour $k \rightarrow 0$), la section efficace se réduit à $4\pi a_0^2$

1.3.5 Autres méthodes permettant de définir un diffuseur ponctuel

La technique d'extension auto-adjointe n'est pas la seule permettant de définir le diffuseur ponctuel. J'en évoquerai ici deux autres. Tout d'abord l'utilisation du pseudo-potentiel $g\delta(\mathbf{r})((\partial/\partial r)r)_{r=0}$, et ensuite la renormalisation de la force g du diffuseur.

Utilisation d'un pseudo-potentiel

Cette première méthode s'applique au cas d'un diffuseur dans l'espace à 3 dimensions uniquement. Elle consiste à remplacer le potentiel $g\delta(\mathbf{r})$, représentant un diffuseur ponctuel en $\mathbf{r}_0 = 0$, qui mène à des divergences, par le pseudo-potentiel $V(\mathbf{r})$ dont l'action sur une fonction $f(\mathbf{r})$ quelconque est donnée par :

$$V(\mathbf{r}) f(\mathbf{r}) = g\delta(\mathbf{r}) \frac{\partial}{\partial r} (r f(\mathbf{r}))_{r=0} \quad (1.50)$$

Cette méthode a été introduite initialement par Fermi [21, 22]. L'idée est la suivante : si la fonction $f(\mathbf{r})$ se comporte comme $1/r$ pour $r \rightarrow 0$ (comme par exemple $G_{\text{libre}}(\mathbf{r}, 0; E)$), l'utilisation du pseudo-potentiel ne mène pas à des divergences, car

$$\frac{\partial}{\partial r} (r f(\mathbf{r}))_{r=0} \quad (1.51)$$

est régulier, alors que $f(0)$ est divergent.

Examinons le résultat fourni par cette méthode dans l'espace libre. La série donnant la matrice T (voir équation (1.16)) est :

$$T(\mathbf{r}; E) = V(\mathbf{r}) + V(\mathbf{r}) \int d\mathbf{r}' G_{\text{libre}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; E) V(\mathbf{r}') \\ + V(\mathbf{r}) \int d\mathbf{r}' G_{\text{libre}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; E) V(\mathbf{r}') \int d\mathbf{r}'' G_{\text{libre}}(\mathbf{r}', \mathbf{r}''; E) V(\mathbf{r}'') + \dots \quad (1.52)$$

En utilisant l'expression du pseudo-potentiel, cette équation devient :

$$T(\mathbf{r}; E) = g \delta(\mathbf{r}) + g \delta(\mathbf{r}) g \frac{\partial}{\partial r} (r G_{\text{libre}}(\mathbf{r}, 0; E))_{r=0} \\ + g \delta(\mathbf{r}) g \frac{\partial}{\partial r} \left[r G_{\text{libre}}(\mathbf{r}, 0; E) g \frac{\partial}{\partial r'} (r' G_{\text{libre}}(\mathbf{r}', 0; E))_{r'=0} \right]_{r=0} + \dots \quad (1.53)$$

Puisque $G_{\text{libre}}(\mathbf{r}, 0; E)$ est donné par $(-1/2\pi)\exp(ikr)/r$, on a :

$$\frac{\partial}{\partial r} (r G_{\text{libre}}(\mathbf{r}, 0; E))_{r=0} = -\frac{ik}{2\pi} \quad (1.54)$$

et la matrice T s'écrit :

$$T(\mathbf{r}; E) = g \delta(\mathbf{r}) \left[1 + g \left(-\frac{ik}{2\pi} \right) + g^2 \left(-\frac{ik}{2\pi} \right)^2 + \dots \right] = \delta(\mathbf{r}) \frac{g}{1 + g \frac{ik}{2\pi}} \quad (1.55)$$

En posant $g = 2\pi a_0$, où a_0 est la longueur de diffusion (dans l'onde S), et $a_0 = -(2\pi\alpha)^{-1}$ pour obtenir le même paramètre α que précédemment, on aboutit à la matrice T :

$$T(\mathbf{r}; E) = \delta(\mathbf{r}) \frac{2\pi a_0}{1 + ik a_0} = \delta(\mathbf{r}) \frac{(-1)}{\alpha - ik/(2\pi)} \quad (1.56)$$

On en déduit l'amplitude de diffusion :

$$d(E) = \frac{-a_0}{1 + ik a_0} = \frac{1}{2\pi\alpha - ik} \quad (1.57)$$

Cette expression est bien identique à celle obtenue par l'extension auto-adjointe (équation (1.40)). Les deux méthodes sont donc équivalentes pour la définition d'un diffuseur ponctuel dans l'espace à 3 dimensions.

Renormalisation de la force g du diffuseur

La seconde méthode consiste à renormaliser la force g du potentiel $g\delta(\mathbf{r})$ afin d'éliminer les divergences [14, 15, 9]. D'après l'équation (1.17), la matrice T pour un diffuseur en $\mathbf{r}_0 = 0$ a formellement pour expression :

$$T(\mathbf{r}; E) = \delta(\mathbf{r}) g \left[1 + g G_{\text{libre}}(0, 0; E) + g^2 (G_{\text{libre}}(0, 0; E))^2 + \dots \right] \\ = \delta(\mathbf{r}) \frac{1}{g^{-1} - G_{\text{libre}}(0, 0; E)} \quad (1.58)$$

L'idée est d'éliminer la divergence de $G_{\text{libre}}(0, 0; E)$ en l'incluant dans g^{-1} , qui est ainsi renormalisée. Pour ce faire, on utilise la transformée de Fourier de G_0 :

$$G_{\text{libre}}(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2; E) = G_{\text{libre}}(\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2; E) = \int \frac{d\mathbf{p}}{(2\pi)^3} \frac{1}{E - p^2/2 + i0} e^{i\mathbf{p}\cdot(\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2)} \quad (1.59)$$

et on limite l'intégrale aux \mathbf{p} tels que $p = |\mathbf{p}| \leq \Lambda$. Physiquement, Λ^{-1} représente la taille du diffuseur que l'on désire représenter par un diffuseur ponctuel, et Λ^{-1} est petit devant toutes les longueurs caractéristiques du problème². En posant alors :

$$g^{-1} = \alpha - \int_{p \leq \Lambda} \frac{d\mathbf{p}}{(2\pi)^3} \frac{1}{p^2/2} \quad (1.60)$$

où α est la force renormalisée du diffuseur, on voit que l'on a :

$$g^{-1} - G_{\text{libre}}(0, 0; E) = \alpha - \int_{p \leq \Lambda} \frac{d\mathbf{p}}{(2\pi)^3} \left(\frac{1}{E - p^2/2 + i0} + \frac{1}{p^2/2} \right) \quad (1.61)$$

L'intégrale se calcule aisément : avec $E = k^2/2$, elle s'écrit

$$-\frac{1}{\pi^2} \int_0^\Lambda dp \frac{-k^2}{(p - k + i0)(p + k - i0)} \quad (1.62)$$

qui, pour $\Lambda \rightarrow \infty$, fournit par la méthode des résidus :

$$\frac{ik}{2\pi} \quad (1.63)$$

En fonction de la force renormalisée, la matrice T a donc pour expression :

$$T(\mathbf{r}; E) = \delta(\mathbf{r}) \frac{-1}{\alpha - ik/(2\pi)} \quad (1.64)$$

qui mène à l'amplitude de diffusion :

$$d(E) = \frac{1}{2\pi\alpha - ik} \quad (1.65)$$

A nouveau, on retrouve l'expression obtenue par l'extension auto-adjointe (équation (1.40)), et la force renormalisée α correspond au paramètre α introduit alors. Remarquons que la renormalisation de la force g du diffuseur nécessite de faire tendre g vers 0 puisqu'on inclut une divergence dans g^{-1} .

²Il est possible d'utiliser un *cut-off* différent de l'intégrale, par exemple en introduisant la fonction $\Lambda^2/(\Lambda^2 + p^2)$ [15].

1.3.6 Fonction de Green du système avec diffuseur. Equation aux valeurs propres

Nous revenons maintenant au cas général d'un diffuseur ponctuel placé dans un système d'hamiltonien H_0 (fonction de Green $G_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; E)$). La technique d'extension auto-adjointe permet également d'exprimer (en utilisant la formule de Krein [9]) la fonction de Green du système avec diffuseur (notée $G_\theta(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; E)$) en fonction de celle pour le système sans diffuseur. On a [11] :

$$G_\theta(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; E) = G_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; E) + G_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0; E)\lambda(E, \theta)G_0(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}'; E) \quad (1.66)$$

où $\lambda(E, \theta)$ est donné par :

$$\lambda(E, \theta) = \frac{1 - e^{i\theta}}{\Lambda(E, \theta)} \quad (1.67)$$

avec

$$\begin{aligned} \Lambda(E, \theta) = (E - \mathcal{E}_0 i) \int d\mathbf{r} G_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0; E)G_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0; \mathcal{E}_0 i) \\ - e^{i\theta}(E + \mathcal{E}_0 i) \int d\mathbf{r} G_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0; E)G_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0; -\mathcal{E}_0 i) \end{aligned} \quad (1.68)$$

Les valeurs propres étant données par les pôles de la fonction de Green, il faut calculer les pôles de la fonction $\lambda(E, \theta)$ ³. Les valeurs propres du système avec diffuseur sont donc données par l'équation

$$\Lambda(E, \theta) = 0 \quad (1.69)$$

qui peut encore s'écrire formellement :

$$(G_0(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_0; E) - G_0(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_0; \mathcal{E}_0 i)) - e^{i\theta}(G_0(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_0; E) - G_0(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_0; -\mathcal{E}_0 i)) = 0 \quad (1.70)$$

L'expression de $G_\theta(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; E)$ nous permet aussi de calculer les fonctions propres du système avec diffuseur. Si E_n est une solution de l'équation (1.70), et donc un pôle de $G_\theta(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; E)$, le résidu associé à ce pôle est (voir équation (1.5)) :

$$\langle \mathbf{r} | \psi_n \rangle \langle \psi_n | \mathbf{r}' \rangle = \psi_n(\mathbf{r}) \psi_n^*(\mathbf{r}') \quad (1.71)$$

qui, pour \mathbf{r}' fixé, est simplement proportionnel à la fonction propre $\psi_n(\mathbf{r})$ associée à E_n . A partir de l'expression (1.66), on voit que l'on a :

$$\psi_n(\mathbf{r}) \sim G_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0; E_n) \quad (1.72)$$

La fonction propre associée à la valeur propre E_n est donc simplement donnée par la fonction de Green du système sans diffuseur à l'énergie E_n . Ce résultat

³on vérifie aisément que les pôles de G_0 ne sont pas des pôles pour G_θ , par compensation des deux termes de l'équation (1.66).

nous permet de donner une autre interprétation de l'équation (1.70). Puisque la divergence de $G_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0; z)$ pour $\mathbf{r} \rightarrow \mathbf{r}_0$ est indépendante de z ($z \in \mathbb{C}$), une manière de traiter les divergences apparaissant dans l'équation (1.70) est de remplacer $G_0(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_0; z)$ par $\lim_{\mathbf{r} \rightarrow \mathbf{r}_0} G_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0; z)$ pour toutes les fonctions de Green de l'équation. L'équation (1.70) peut alors s'écrire :

$$\lim_{\mathbf{r} \rightarrow \mathbf{r}_0} G_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0; E) = \frac{1}{1 - e^{i\theta}} \lim_{\mathbf{r} \rightarrow \mathbf{r}_0} (G_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0; \mathcal{E}_0 i) - e^{i\theta} G_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0; -\mathcal{E}_0 i)) \quad (1.73)$$

Cette équation peut maintenant s'interpréter de la manière suivante. Le membre de droite correspond au comportement imposé pour $\mathbf{r} \rightarrow \mathbf{r}_0$ par le diffuseur ponctuel. Le membre de gauche donne une fonction propre si E est solution du problème. L'équation (1.73) fournit donc les solutions E du problème qui sont telles que la fonction d'onde $G_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0; E)$ (qui satisfait l'équation de Schrödinger pour $\mathbf{r} \neq \mathbf{r}_0$) ait le comportement requis par le diffuseur pour $\mathbf{r} \rightarrow \mathbf{r}_0$.

1.3.7 Interprétation en termes de diffusion multiple

On peut également obtenir la fonction de Green du système avec diffuseur à partir d'un raisonnement de type propagation et diffusion multiple sur l'obstacle. Nous noterons ici encore $G_\theta(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; E)$ la fonction de Green du système avec diffuseur, bien que le paramètre θ ne soit plus utilisé. L'idée est de se baser sur le résultat dans l'espace libre, que nous avons obtenu dans la section 1.3.4. D'après l'équation (1.37), pour un diffuseur dans l'espace libre, on a :

$$G_\theta(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; E) = G_{\text{libre}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; E) + G_{\text{libre}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0; E) t(E) G_{\text{libre}}(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}'; E) \quad (1.74)$$

avec $t(E) = (-1)(\alpha - ik/(2\pi))^{-1}$ en dimension $d = 3$ (à un facteur -2π près, $t(E)$ n'est autre que l'amplitude de diffusion $d(E)$). En termes de propagation-diffusion, cette équation peut s'interpréter comme suit. $G_\theta(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; E)$ représente l'amplitude reçue en \mathbf{r} quand une source est placée en \mathbf{r}' , pour la propagation à énergie E . Cette amplitude peut s'écrire comme la somme de la propagation libre de \mathbf{r}' à \mathbf{r} (premier terme du membre de droite) et de la propagation libre jusqu'au diffuseur suivie de la diffusion par celui-ci et de la propagation libre jusqu'en \mathbf{r} (deuxième terme).

Si l'on considère maintenant un système sans diffuseur qui n'est pas l'espace libre, mais qui contient un potentiel $V(\mathbf{r})$, il y aura deux modifications différentes à l'équation. D'une part, la propagation (par exemple de \mathbf{r}' à \mathbf{r}) se fait maintenant avec la fonction de Green G_0 du système (par exemple $G_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; E)$). D'autre part, la présence du potentiel $V(\mathbf{r})$ permet à l'amplitude diffusée par le diffuseur de revenir sur celui-ci et d'être diffusée à nouveau. Ceci signifie que l'équation (1.74) devient pour un système d'hamiltonien $H_0 = p^2/2 + V(\mathbf{r})$:

$$G_\theta(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; E) = G_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; E) + G_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0; E) t(E) G_0(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}'; E) + G_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0; E) t(E) P(\mathbf{r}_0 \rightarrow \mathbf{r}_0; E) t(E) G_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; E) + \dots \quad (1.75)$$

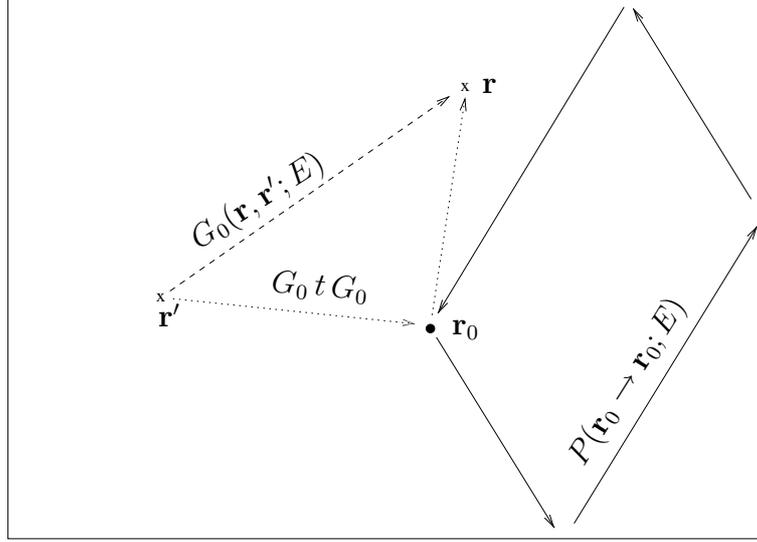


FIG. 1.1 – Représentation schématique des différents termes de l'équation (1.75). La ligne tiretée représente la propagation directe de \mathbf{r}' à \mathbf{r} (premier terme de (1.75)). Les lignes pointillées représentent la propagation jusqu'au diffuseur et la diffusion par celui-ci (deuxième terme de (1.75)). Les lignes pleines représentent $P(\mathbf{r}_0 \rightarrow \mathbf{r}_0; E)$, la propagation depuis le diffuseur jusqu'au diffuseur (présent à partir du troisième terme de (1.75)).

Les deux premiers termes de la série ont la même signification que dans l'équation (1.74). Dans le troisième terme l'onde diffusée se propage puis est à nouveau diffusée avant d'aller en \mathbf{r} . $P(\mathbf{r}_0 \rightarrow \mathbf{r}_0; E)$ rend compte de la propagation depuis le diffuseur jusqu'au diffuseur, et est donnée par :

$$P(\mathbf{r}_0 \rightarrow \mathbf{r}_0; E) = \lim_{\epsilon \rightarrow 0} (G_0(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_0 + \epsilon; E) - G_{\text{libre}}(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_0 + \epsilon; E - V(\mathbf{r}_0))) \quad (1.76)$$

Dans cette expression, la fonction de Green dans l'espace libre, $G_{\text{libre}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; E - V(\mathbf{r}_0))$ est soustraite, afin d'éliminer la propagation directe de \mathbf{r}_0 à $\mathbf{r}_0 + \epsilon$ ($\epsilon \rightarrow 0$). De cette manière, $P(\mathbf{r}_0 \rightarrow \mathbf{r}_0; E)$ n'est non-nul que si le système renvoie au diffuseur une amplitude qui initialement s'en éloigne. La figure 1.1 illustre schématiquement les différents termes de l'équation (1.75).

On peut formellement resommer la série donnant G_θ :

$$G_\theta(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; E) = G_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; E) + G_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0; E) t(E) [1 + P(\mathbf{r}_0 \rightarrow \mathbf{r}_0; E) t(E) + (P(\mathbf{r}_0 \rightarrow \mathbf{r}_0; E) t(E))^2 + \dots] G_0(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}'; E) \quad (1.77)$$

$$G_\theta(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; E) = G_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; E) + G_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0; E) \left[\frac{1}{t(E)^{-1} - P(\mathbf{r}_0 \rightarrow \mathbf{r}_0; E)} \right] G_0(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}'; E) \quad (1.78)$$

Cette équation est similaire à l'équation (1.66). Les valeurs propres sont obtenues avec :

$$\lim_{\epsilon \rightarrow 0} (G_0(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_0 + \epsilon; E) - G_{\text{libre}}(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_0 + \epsilon; E - V(\mathbf{r}_0))) = t(E)^{-1} \quad (1.79)$$

Cette équation est du même type que l'équation (1.70) : la fonction de Green $G_0(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_0; E)$, dont la divergence est régularisée, est égale à une quantité qui dépend des propriétés du diffuseur. Remarquons que l'équation (1.78) peut encore s'écrire sous la forme :

$$G_\theta(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; E) = G_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; E) + G_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0; E) \tilde{t}(E) G_0(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}'; E) \quad (1.80)$$

où $\tilde{t}(E)$ est la matrice $t(E)$ "habillée" par le système :

$$\tilde{t}(E) = \frac{t(E)}{1 - t(E) P(\mathbf{r}_0 \rightarrow \mathbf{r}_0; E)} \quad (1.81)$$

Dans l'espace libre, on a simplement $\tilde{t}(E) = t(E)$.

1.3.8 Lien avec la théorie des orbites diffractives

Le point de vue présenté dans la section précédente est à rapprocher des méthodes semi-classiques tenant compte de la diffraction sur des singularités (théorie des orbites diffractives). D'une manière générale, les méthodes semi-classiques cherchent à exprimer les propriétés d'un système quantique en fonction de propriétés du système classique correspondant, dans le régime où l'action caractéristique du système est grande devant \hbar . La fonction de Green d'un système quantique, $G(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; E)$, peut ainsi s'exprimer comme une somme sur les trajectoires classiques [23] :

$$G(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; E) = \sum_p A_p(\mathbf{r}, \mathbf{r}') \exp\left(\frac{i}{\hbar} S_p(\mathbf{r}, \mathbf{r}')\right) \quad (1.82)$$

où la somme sur p porte sur les trajectoires du système classique reliant \mathbf{r}' à \mathbf{r} , S_p est l'action de la trajectoire p et le facteur A_p se calcule à partir des propriétés de cette trajectoire.

Toutefois, cette expression n'est plus valable lorsque le système classique contient des singularités, pour lesquelles l'approximation semi-classique n'est pas possible. Un diffuseur ponctuel est un exemple de singularité; un autre exemple est obtenu en considérant un billard à deux dimensions de forme triangulaire : chaque sommet du triangle est une singularité, à moins que l'angle associé ne soit de la forme π/n ($n \in \mathbb{N}$) [24]. La formule (1.82) doit alors être modifiée afin de tenir compte de la diffraction sur la (ou les) singularité. Ceci s'obtient en ajoutant les contributions des *orbites diffractives*, du type [25, 26] :

$$A_p(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0) \exp\left(\frac{i}{\hbar} S_p(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0)\right) D(\mathbf{n}, \mathbf{n}') A_{p'}(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}') \exp\left(\frac{i}{\hbar} S_{p'}(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}')\right) \quad (1.83)$$

où $A_{p'}$ et $S_{p'}$ concernent la trajectoire classique p' reliant \mathbf{r} à \mathbf{r}_0 (\mathbf{r}_0 étant la position d'une singularité), A_p et S_p concernent la trajectoire classique p reliant \mathbf{r}_0 à \mathbf{r} , et $D(\mathbf{n}, \mathbf{n}')$ est un coefficient de diffraction, qui dépend en général de la direction incidente \mathbf{n}' et de la direction sortante \mathbf{n} sur la singularité située en \mathbf{r}_0 . Ce coefficient s'obtient à partir de la solution exacte pour la singularité dans l'espace libre. On voit donc que le principe est similaire à celui exposé dans la section précédente : la diffraction sur la singularité est "habillée" par les trajectoires classiques du système considéré. Le traitement diffractif d'un diffuseur ponctuel est présenté dans la référence [27]. A partir de l'amplitude de diffraction obtenue en considérant un diffuseur circulaire de rayon R petit devant la longueur d'onde [28], les auteurs ont calculé les niveaux d'énergie d'un billard rectangulaire contenant ce petit diffuseur, au moyen des formules semi-classiques incluant les orbites diffractives. La quantité essentielle pour obtenir les niveaux d'énergie est, avec leur notation, pour un disque en \mathbf{r}_0 :

$$\tilde{G}_G(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_0; E) \quad (1.84)$$

qui est la fonction de Green obtenue à partir des trajectoires classiques allant de \mathbf{r}_0 à \mathbf{r}_0 , en excluant les trajectoires de longueur nulle. Cette quantité est donc l'équivalent semi-classique (c'est-à-dire obtenu à partir de trajectoires classiques) de la quantité

$$P(\mathbf{r}_0 \rightarrow \mathbf{r}_0; E) \quad (1.85)$$

introduite dans la section précédente (équation (1.76)).

1.3.9 Calcul pratique des valeurs propres. Equation de Seba

A partir de l'équation (1.70), on peut obtenir une équation permettant le calcul pratique des valeurs propres. Pour ce faire, on utilise le développement de la fonction de Green sur les valeurs propres E_n et les fonctions propres $\phi_n(\mathbf{r})$ du hamiltonien :

$$G_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; E) = \sum_n \frac{\phi_n(\mathbf{r}) \phi_n^*(\mathbf{r}')}{E - E_n} \quad (1.86)$$

Substituant ceci dans l'équation (1.70), on obtient [11] :

$$\sum_n |\phi_n(\mathbf{r}_0)|^2 \left(\frac{1}{E - E_n} + \frac{E_n}{E_n^2 + \mathcal{E}_0^2} \right) = \frac{\sin \theta}{1 - \cos \theta} \sum_n \frac{|\phi_n(\mathbf{r}_0)|^2}{E_n^2 + \mathcal{E}_0^2} \quad (1.87)$$

Le membre de gauche est une fonction de l'énergie E strictement décroissante, qui a un pôle pour chaque valeur propre E_n du système sans diffuseur. L'allure de cette fonction est donnée par la figure 1.2. Le membre de droite est une constante, qui dépend des caractéristiques du système, et de l'intensité du diffuseur via le paramètre θ . Graphiquement (voir figure 1.2), il apparaît qu'entre deux valeurs propres successives du système sans diffuseur, E_n et E_{n+1} , il y a nécessairement

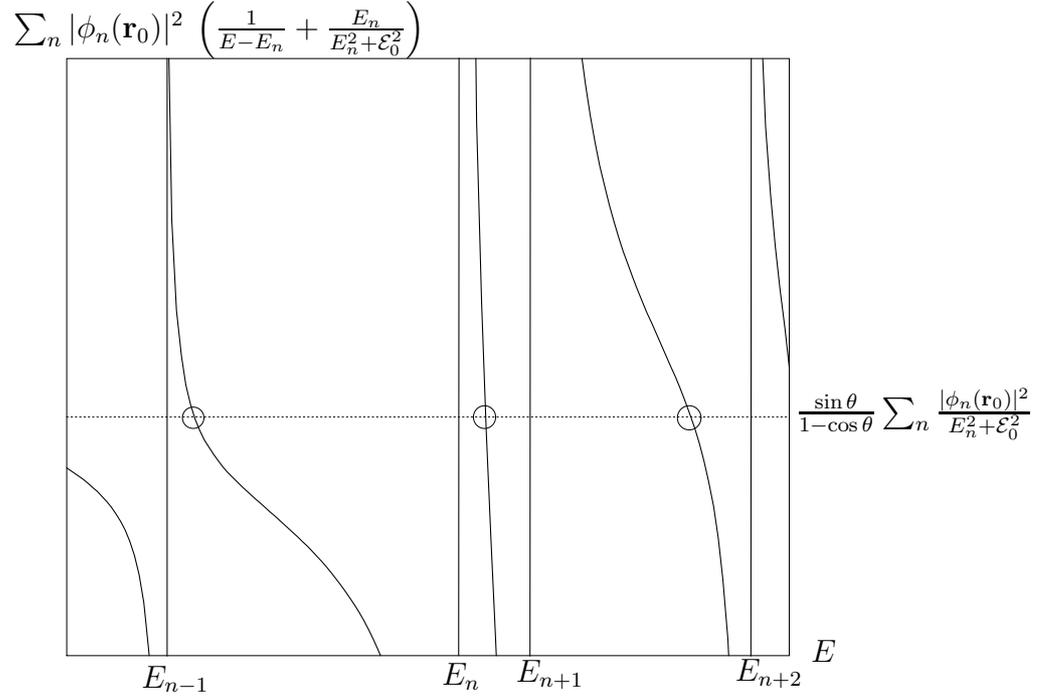


FIG. 1.2 – Représentation graphique de l'équation (1.87) : $\sum_n |\phi_n(\mathbf{r}_0)|^2 \left(\frac{1}{E-E_n} + \frac{E_n}{E_n^2 + \mathcal{E}_0^2} \right) = \frac{\sin \theta}{1 - \cos \theta} \sum_n \frac{|\phi_n(\mathbf{r}_0)|^2}{E_n^2 + \mathcal{E}_0^2}$, en fonction de l'énergie E . Cette équation fournit les valeurs propres du système avec diffuseur en fonction des valeurs propres E_n et fonctions propres ϕ_n du système sans diffuseur. Le membre de gauche est la fonction en trait plein, et présente un pôle en chaque valeur propre E_n du système sans diffuseur. Le membre de droite (constant) est en pointillé. Les intersections de ces deux fonctions donnent les solutions de l'équation (représentées par les cercles). Il apparaît que les solutions alternent avec les valeurs propres E_n du système sans diffuseur.

une solution E et une seule. Les solutions alternent donc avec les valeurs propres du hamiltonien sans diffuseur.

Le terme $E_n/(E_n^2 + \mathcal{E}_0)$ permet de régulariser la divergence de la somme sur n . En effet, le terme

$$\sum_{n \leq n_{\max}} \frac{|\phi_n(\mathbf{r}_0)|^2}{E - E_n} \quad (1.88)$$

diverge pour $n_{\max} \rightarrow \infty$, et cette divergence est reliée à celle de la fonction de Green $G_0(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_0 + \boldsymbol{\epsilon}; E)$ pour $\boldsymbol{\epsilon} \rightarrow 0$. On a :

$$G_0(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_0 + \boldsymbol{\epsilon}; E) = \sum_n \frac{\phi_n(\mathbf{r}_0) \phi_n^*(\mathbf{r}_0 + \boldsymbol{\epsilon})}{E - E_n} \quad (1.89)$$

La longueur de variation typique de la fonction $\phi_n(\mathbf{r})$, associée à la valeur propre E_n , est $\sim (E_n)^{-1/2}$ (avec ici $\hbar = 1$). Tant que $|\boldsymbol{\epsilon}| \ll (E_n)^{-1/2}$, on a $\phi_n(\mathbf{r}_0 + \boldsymbol{\epsilon}) \simeq \phi_n(\mathbf{r}_0)$. Par contre, pour $|\boldsymbol{\epsilon}| \geq (E_n)^{-1/2}$, les valeurs de $\phi_n(\mathbf{r}_0)$ et de $\phi_n^*(\mathbf{r}_0 + \boldsymbol{\epsilon})$ sont en général non corrélées, et la somme de ces termes tend à s'annuler en moyenne. Ceci signifie que l'on a :

$$G_0(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_0 + \boldsymbol{\epsilon}; E) \sim \sum_{n < n_+(\boldsymbol{\epsilon})} \frac{|\phi_n(\mathbf{r}_0)|^2}{E - E_n} \quad (1.90)$$

où n_+ est tel que :

$$E_{n_+} \simeq \frac{1}{|\boldsymbol{\epsilon}|^2} \quad (1.91)$$

et donc la divergence de la fonction de Green pour $\boldsymbol{\epsilon} \rightarrow 0$ et celle de (1.88) pour $n_{\max} \rightarrow \infty$ sont liées. Nous avons vu dans la section 1.2.1 que la divergence de la fonction de Green est indépendante du potentiel $V(\mathbf{r})$ du système⁴, et dépend uniquement de la dimension de l'espace. C'est donc aussi le cas de la divergence de (1.88). La forme précise de la divergence à deux et à trois dimensions se détermine facilement à partir d'un cas simple, par exemple un billard. Pour un billard, $\phi_n(\mathbf{r}_0)$ est une constante indépendante de l'énergie. A deux dimensions, la densité d'états du billard est constante, et on a donc :

$$\sum_n \frac{|\phi_n(\mathbf{r}_0)|^2}{E - E_n} \sim \int^{u_{\max}} du \frac{1}{E - u} \sim \log(u_{\max}) \quad (d = 2) \quad (1.92)$$

A deux dimensions, on a donc une divergence logarithmique pour $n_{\max} \rightarrow \infty$. A trois dimensions, la densité d'états du billard à l'énergie z varie comme \sqrt{z} , on a donc :

$$\sum_n \frac{|\phi_n(\mathbf{r}_0)|^2}{E - E_n} \sim \int^{u_{\max}} du \frac{\sqrt{u}}{E - u} \sim \sqrt{u_{\max}} \quad (d = 3) \quad (1.93)$$

⁴A moins que $V(\mathbf{r})$ ne soit trop singulier.

A trois dimensions, on a donc une divergence en \sqrt{x} quand $n_{\max} \rightarrow \infty$.

Revenons à l'équation (1.87). On sait que la valeur $\theta = 0$ correspond à un diffuseur d'intensité nulle (c'est-à-dire pas de diffuseur). Dans ce cas, le membre de droite de l'équation est infini, et les solutions sont données par les valeurs de l'énergie E telles que le membre de gauche diverge : $E = E_n$. On retrouve donc bien les valeurs propres du système sans diffuseur pour $\theta = 0$. A l'opposé, la valeur $\theta = \pi$ correspond à un diffuseur ponctuel d'intensité importante. Dans ce cas, le membre de droite est nul.

Dans la suite, nous appellerons "équation de Seba" toute équation du type :

$$\sum_n \frac{c_n^2}{E - E_n} = \text{constante} \quad (1.94)$$

qui possède les propriétés marquantes de l'équation (1.87). La somme sous-entend une régularisation de la divergence. Ainsi, le raisonnement en termes de diffusion multiple permet également d'obtenir (via l'équation (1.79)) une équation de Seba.

1.4 Propriétés statistiques des solutions de l'équation de Seba

1.4.1 Introduction

L'équation de Seba (1.94) a une structure bien particulière. Ses solutions sont les zéros d'une fonction partout décroissante, qui présente des pôles en des valeurs connues E_n de l'énergie (voir figure 1.2). Ceci entraîne que les solutions ont des propriétés statistiques particulières, qui dépendent des propriétés statistiques des niveaux E_n du système sans diffuseur [29]. Dans un premier temps, nous examinons le cas où les E_n ont une distribution poissonnienne (système régulier sans diffuseur). On montre que, dans ce cas, la distribution d'espacement $P(s)$ des solutions présente à la fois des caractéristiques de celle d'un système chaotique (répulsion de niveaux) et de celle d'un système régulier (décroissance exponentielle à grand s) [3]. Un calcul exact de la pente à l'origine de $P(s)$ est ensuite donné. Enfin, le cas d'un système qui est chaotique en l'absence de diffuseur est examiné : on montre que, dans ce cas, la présence du diffuseur ne modifie pas la statistique des niveaux d'énergie.

1.4.2 Cas d'un système régulier en l'absence de diffuseur

Propriétés générales de la loi d'espacement $P(s)$

Puisque l'on s'intéresse ici à la distribution d'espacement $P(s)$ des solutions de l'équation de Seba, rappelons l'expression de $P(s)$ pour les deux catégories de système les plus importantes. D'une part, les systèmes classiquement réguliers,

dans lesquels les niveaux d'énergie sont non corrélés, et obéissent à une statistique poissonnienne, avec la loi d'espacement $P(s)$:

$$P(s) = e^{-s} \quad (1.95)$$

(on a choisi l'espacement moyen égal à 1). D'autre part, les systèmes classiquement chaotiques, dans lesquels tous les niveaux d'énergie sont corrélés. La loi d'espacement pour ces systèmes est donnée en très bonne approximation par la distribution de Wigner⁵ [30] :

$$P(s) = \frac{\pi}{2} s \exp\left(\frac{-\pi s^2}{4}\right) \quad (1.96)$$

(à nouveau, on a choisi l'espacement moyen égal à 1).

On s'intéresse dans cette section au cas où le système sans diffuseur est classiquement régulier, avec des niveaux d'énergie non corrélés et la loi d'espacement donnée par l'équation (1.95). Soient z_i les solutions de l'équation de Seba :

$$\sum_n \frac{c_n^2}{z - E_n} = \text{constante} \quad (1.97)$$

La structure de l'équation, qui entraîne que les z_i alternent nécessairement avec les E_i , impose des contraintes fortes sur la loi d'espacement $P(s)$ des z_i [11].

Examinons tout d'abord la probabilité d'obtenir un espacement $s \ll 1$ entre deux solutions z_i et z_{i+1} . z_i est dans l'intervalle $[E_{i-1}, E_i]$, et z_{i+1} dans l'intervalle $[E_i, E_{i+1}]$ (voir figure 1.3). D'une manière générale, la solution z_i ne sera pas infiniment proche des deux pôles E_{i-1} et E_i qui l'entourent, mais quelque part dans l'intervalle entre ceux-ci. Ceci peut être faux pour deux raisons. D'une part, si le diffuseur a une intensité très faible, alors le membre de droite de l'équation de Seba est très grand, et les solutions sont nécessairement proches des pôles. Comme on s'intéresse ici au cas d'un diffuseur qui n'a pas une intensité très faible, on peut oublier cette possibilité. D'autre part, si le numérateur c_i^2 est accidentellement très petit comparé à c_{i-1}^2 , la solution z_i aura tendance à être très proche de E_i . Cette possibilité est statistiquement rare (sauf dans le cas d'une distribution des c_j^2 pathologique), et on l'oubliera également. Dans ce cas, s'il y a un intervalle s entre z_i et z_{i+1} , il y aura un intervalle αs entre E_{i-1} et E_{i+1} , où $\alpha > 1$ et $\alpha \sim 1$ (voir figure 1.3). Comme les niveaux E_j sont poissonniens, la probabilité d'avoir un espacement αs entre E_{i+1} et E_{i-1} est donnée par :

$$\int_0^{\alpha s} du e^{-u} e^{-(\alpha s - u)} = e^{-\alpha s} \alpha s \simeq \alpha s \quad (\alpha s \rightarrow 0) \quad (1.98)$$

On s'attend donc dans le cas général, pour la loi d'espacement $P(s)$ des solutions z_i , à un comportement linéaire en s à petit s .

⁵On considère ici la distribution d'espacement associée à l'ensemble gaussien orthogonal (GOE) de matrices aléatoires. Suivant les symétries du système, on peut être amené également à considérer les ensembles unitaire (GUE) ou symplectique (GSE).

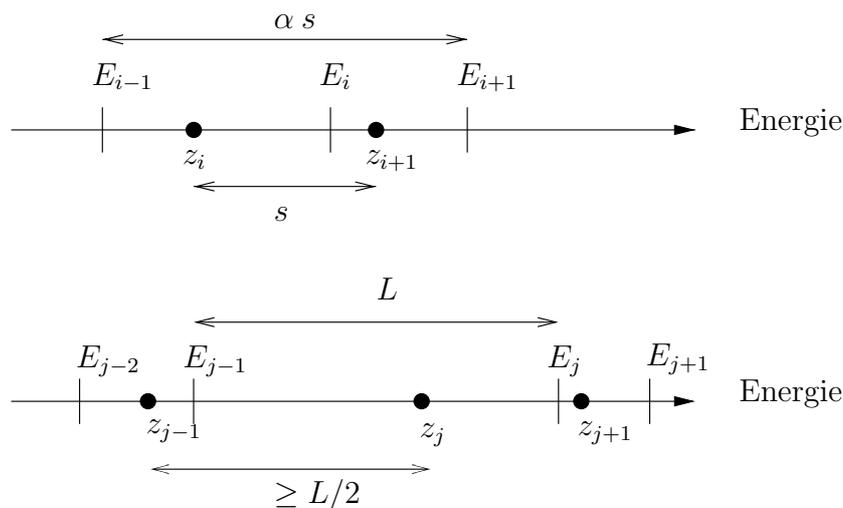


FIG. 1.3 – Calcul de la loi d’espacement des solutions à petit s et grand s de l’équation de Seba. En haut : pour avoir un espacement $s \ll 1$ entre deux solutions voisines, il faut en général un espacement αs , avec $\alpha \sim 1$, entre deux pôles seconds voisins. En bas, cas d’un grand espacement s entre deux solutions : quand deux pôles voisins sont espacés d’une distance L , il y a nécessairement deux solutions voisines espacées d’au moins $L/2$.

Examinons maintenant la probabilité d’obtenir un espacement $s \gg 1$ entre deux solutions z_i et z_{i+1} . Sur la figure, on voit que s’il y a un espacement L entre deux niveaux E_{j-1} et E_j , alors il y a un espacement d’au moins $L/2$ entre deux solutions (soit entre z_{j-1} et z_j , soit entre z_j et z_{j+1} , voir figure 1.3). Pour avoir un espacement s entre deux solutions, il est donc suffisant d’avoir un espacement $2s$ entre deux niveaux E_i (probabilité e^{-2s}), et il est nécessaire d’avoir au moins un espacement s entre deux niveaux E_i (probabilité e^{-s})⁶. Donc, le comportement à grand s de $P(s)$ est exponentiel : $P(s) \sim e^{-us}$ avec u typiquement entre 2 et 1.

Il apparaît ainsi que les solutions de l’équation de Seba, pour des niveaux d’énergie E_i obéissant à une statistique poissonnienne, ont une loi d’espacement $P(s)$ qui est intermédiaire entre deux lois habituellement rencontrées. D’une part, $P(s)$ a un comportement linéaire à petit s , ce qui est similaire à la loi d’espacement des niveaux d’énergie d’un système classiquement chaotique (statistique GOE). D’autre part, $P(s)$ a un comportement exponentiel, de type $\sim e^{-us}$, avec u entre 1 et 2, à grand s , ce qui est similaire à la loi d’espacement des niveaux d’énergie d’un système classiquement régulier (statistique poissonnienne).

⁶On peut également obtenir un espacement $s \gg 1$ entre deux solutions voisines en ayant successivement deux espacements $\sim s/2$ entre deux pôles, et les deux solutions près des pôles extrêmes. La probabilité d’avoir deux espacements successifs de l’ordre de $s/2$ vaut également $\exp(-s)$.

Calcul de la pente à l'origine de la distribution $P(s)$ des solutions de l'équation de Seba

Méthode du calcul de la pente Les arguments précédents ont montré que, lorsque les énergies du système sans diffuseur ont une statistique poissonnienne, alors les solutions de l'équation de Seba ont des corrélations répulsives à courte distance : la loi d'espacement $P(s)$ est nulle en $s = 0$, et a un comportement linéaire pour $s \rightarrow 0$. Il est possible de déterminer précisément la pente de $P(s)$ pour $s \rightarrow 0$ à partir de l'équation de Seba.

Les hypothèses que nous faisons pour ce calcul sont les suivantes. Nous nous plaçons dans le cas d'un système régulier en l'absence de diffuseur, ce qui signifie que l'on suppose que les niveaux E_n du système sans diffuseur ne sont pas corrélés. Mais nous supposons en plus que les numérateurs apparaissant dans l'équation de Seba ne sont pas corrélés, et également qu'il n'y a pas de corrélation entre les niveaux d'énergie et les numérateurs.

Puisqu'on s'intéresse au cas de deux solutions très proches (espacement $s \rightarrow 0$), il faut qu'au moins trois pôles de l'équation soient très proches (on suppose à nouveau que le diffuseur n'a pas une intensité très faible, et donc que la solution z_i est *entre* E_{i-1} et E_i). A l'ordre le plus bas en s , on peut se limiter à l'événement le plus probable, c'est-à-dire trois pôles à une distance de l'ordre de s .

Dans l'équation de Seba, on peut séparer les trois termes $c_i/(z - E_i)$ qui correspondent aux trois pôles en question, et tous les autres termes (les autres $c_i/(z - E_i)$, les termes qui régularisent la somme, et la constante venant de l'intensité du diffuseur). Tous ces autres termes varient mollement avec z , et donc ne varient pas sur l'intervalle de largeur $\sim s$ qui nous intéresse (ceci est vrai à la limite $s \rightarrow 0$). Dans la suite, on choisit de prendre cette constante égale à zéro. Le fait que ceci ne change pas les résultats obtenus, à condition que le diffuseur n'ait pas une intensité très faible, sera justifié plus loin.

Les deux solutions recherchées sont donc les solutions de l'équation :

$$\frac{A}{z + s_1} + \frac{B}{z} + \frac{C}{z - s_2} = 0 \quad (1.99)$$

où l'on a placé le premier pôle en $-s_1$, le deuxième en 0 et le troisième en s_2 (avec s_1 et s_2 positifs). Rappelons que les numérateurs (A, B, \dots) sont nécessairement positifs. L'équation s'écrit encore :

$$(A + B + C)z^2 + ((B + C)s_1 - (A + B)s_2)z - Bs_1s_2 = 0 \quad (1.100)$$

C'est une équation du second degré dont le déterminant vaut :

$$\Delta = (B + C)^2s_1^2 + (A + B)^2s_2^2 + 2(AB + BC - AC + B^2)s_1s_2 \quad (1.101)$$

et la distance $d(s_1, s_2)$ entre les deux solutions est :

$$d(s_1, s_2) = \frac{\sqrt{\Delta}}{(A + B + C)} \quad (1.102)$$

Pour obtenir $P(s)$, on somme toutes les configurations (s_1, s_2) qui fournissent un espacement s entre les solutions, avec leur probabilité. Les pôles ayant une statistique poissonnienne, on a $P(s_1) = e^{-s_1}$ et $P(s_2) = e^{-s_2}$. $P(s)$ pour $s \rightarrow 0$ est donc donné par

$$P(s) = \int_0^\infty \int_0^\infty ds_1 ds_2 \delta(s - d(s_1, s_2)) e^{-s_1} e^{-s_2} \quad (1.103)$$

Comme on s'intéresse à $s \rightarrow 0$, seules les valeurs de s_1 et s_2 qui sont de l'ordre de s (et donc $\ll 1$) contribuent de manière importante à l'intégrale. On peut donc remplacer e^{-s_1} et e^{-s_2} par 1. Par commodité, on passe à la distribution d'espacement cumulative $N(s)$, donnée par :

$$N(s) = \int_0^s ds' P(s') \quad (1.104)$$

On a alors

$$N(s) = \int_0^\infty \int_0^\infty ds_1 ds_2 \theta(s - d(s_1, s_2)) \quad (1.105)$$

où $\theta(x)$ est la fonction de Heavyside.

Graphiquement, $N(s)$ est donné par l'aire comprise sous la courbe $d(s_1, s_2) = s$ dans le premier quadrant du plan (s_1, s_2) . L'équation de la courbe s'écrit :

$$(B+C)^2 s_1^2 + (A+B)^2 s_2^2 + 2(AB+BC-AC+B^2) s_1 s_2 = (A+B+C)^2 s^2 \quad (1.106)$$

C'est un ellipse centrée en 0. $N(s)$ est donc donné par la surface de l'ellipse comprise dans le premier quadrant (voir figure 1.4).

Nous pouvons maintenant revenir à la question de la constante provenant des différents termes de l'équation de Seba, que l'on avait prise nulle dans l'équation (1.99). En la conservant explicitement, on a maintenant :

$$\frac{A}{z+s_1} + \frac{B}{z} + \frac{C}{z-s_2} = X \quad (1.107)$$

Les deux solutions de cette équation sont données par les points z où la fonction $f(z)$ définie par le membre de gauche vaut X . La dérivée de la fonction $f(z)$ est :

$$f'(z) = (-1) \left(\frac{A}{(z+s_1)^2} + \frac{B}{z^2} + \frac{C}{(z-s_2)^2} \right) \quad (1.108)$$

Comme s_1 et s_2 sont $\sim s$ ($\ll 1$), et que $-s_1 < z < s_2$, on a $|f'(z)| \sim s^{-2}$. Cela signifie que les solutions de l'équation (1.107) sont décalées des solutions pour $X = 0$ d'une quantité de l'ordre de $s^2 X$. Comme X est de l'ordre de s^0 , on voit que les solutions sont décalées d'une quantité de l'ordre de s^2 dans un intervalle de l'ordre de s (et pour un espacement entre les deux solutions également de l'ordre de s). On voit donc que les solutions bougent infiniment peu (à la limite $s \rightarrow 0$) dans l'intervalle où elles se trouvent. Le fait de garder explicitement la constante $X \neq 0$ ne change donc pas les résultats obtenus plus haut. Remarquons que ce raisonnement ne s'applique plus quand l'intensité du diffuseur tend vers 0, car alors la constante X croît et peut devenir de l'ordre de s^{-1} ou plus.

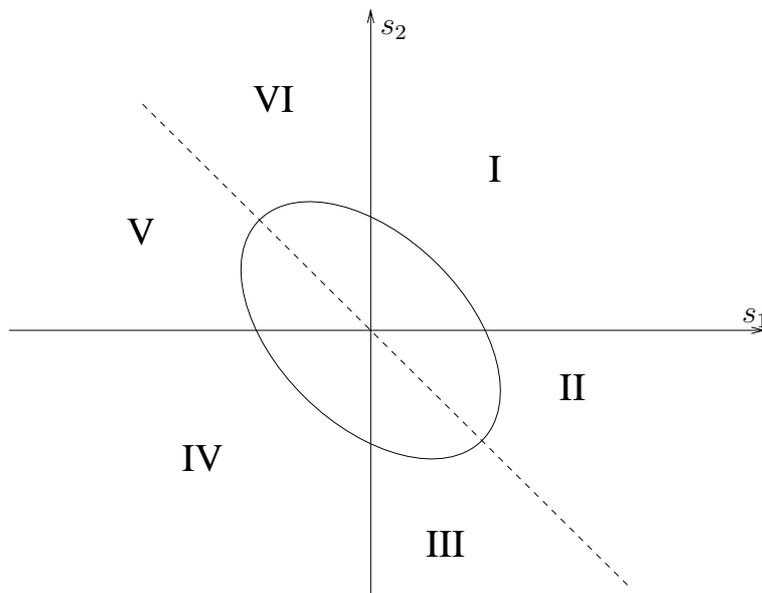


FIG. 1.4 – L'ellipse dans le plan (s_1, s_2) donnée par l'équation (1.106). Son aire donne le comportement à petit s de la distribution d'espacement cumulative $N(s)$ des solutions de l'équation de Seba, dans le cas d'un système régulier en l'absence de diffuseur. Les six zones (I à VI) représentent les six possibilités pour l'ordre des trois pôles apparaissant dans l'équation (1.99) (voir section 6).

Cas où les numérateurs sont égaux Un cas simple et physiquement intéressant est celui où tous les numérateurs sont égaux. On choisit $A = B = C = 1$. Le fait que les numérateurs sont égaux facilite le calcul pour la raison suivante. Le plan (s_1, s_2) est divisé en six zones par les axes s_1 et s_2 et par la deuxième bissectrice (voir figure 1.4). Ces six zones correspondent aux six possibilités pour l'ordre des trois pôles considérés, que l'on avait fixé implicitement en prenant s_1 et $s_2 > 0$ (plaçant ainsi le pôle avec le numérateur A en premier, puis celui avec le numérateur B en second, etc.). L'aire de l'ellipse comprise dans une zone donnée fournit $N(s)$ pour l'ordre des trois pôles associé à cette zone. Dans le cas où les trois numérateurs sont égaux, l'ordre des pôles n'a pas d'importance, et l'ellipse est divisée en six parties d'aires égales. Dans ce cas, l'aire comprise dans le premier quadrant vaut simplement $1/6$ de la surface totale de l'ellipse. L'équation de l'ellipse pouvant s'écrire ici :

$$s_1^2 + s_2^2 + s_1 s_2 = \left(\frac{3}{2}s\right)^2 \equiv \frac{1}{2} \left(\frac{s_1 - s_2}{\sqrt{2}}\right)^2 + \frac{3}{2} \left(\frac{s_1 + s_2}{\sqrt{2}}\right)^2 = \left(\frac{3}{2}s^2\right)^2 \quad (1.109)$$

on a donc :

$$N(s) = \frac{1}{6} \pi \frac{3\sqrt{3}}{2} s^2 = \pi \frac{\sqrt{3}}{4} s^2 \quad (s \rightarrow 0) \quad (1.110)$$

et :

$$P(s) = \frac{dN(s)}{ds} = \pi \frac{\sqrt{3}}{2} s \quad (s \rightarrow 0) \quad (1.111)$$

Cas d'une distribution statistique des numérateurs Un cas plus général est celui où les numérateurs ont une distribution statistique $D(x)$ donnée. Dans ce cas, les trois pôles seront équivalents en moyenne, et on peut à nouveau obtenir $N(s)$ en calculant $1/6$ fois la surface de l'ellipse. Si A , B et C sont les numérateurs des trois pôles, la surface S est donnée par :

$$S = \pi \frac{s^2}{2} \frac{(A + B + C)^{\frac{3}{2}}}{\sqrt{ABC}} \quad (1.112)$$

$N(s)$ s'obtient à partir de S en moyennant sur les numérateurs :

$$\begin{aligned} N(s) &= \langle S/6 \rangle \\ &= \frac{\pi s^2}{12} \int_0^\infty \int_0^\infty \int_0^\infty dA dB dC D(A) D(B) D(C) \frac{(A + B + C)^{\frac{3}{2}}}{\sqrt{ABC}} \end{aligned} \quad (1.113)$$

Un cas facilement calculable est celui d'une distribution exponentielle pour les numérateurs : $D(x) = \alpha e^{-\alpha x}$. On obtient alors :

$$N(s) = \frac{\pi^2}{3} s^2 \quad (1.114)$$

La pente à l'origine de $P(s)$ vaut $2\pi^2/3 \simeq 6,58$, ce qui est sensiblement supérieur à la valeur $\pi\sqrt{3}/2 \simeq 2,72$ obtenue dans le cas où tous les dénominateurs sont égaux. Ceci est une conséquence de l'expression (1.112) de la surface de l'ellipse en fonction des numérateurs A, B, C . On peut voir en effet que celle-ci est minimale pour $A = B = C$, ce qui signifie que la pente la plus faible est obtenue pour des numérateurs égaux. Quelle que soit la distribution des numérateurs, la pente à l'origine de $P(s)$ pour les solutions de l'équation de Seba est donc toujours supérieure à $\pi\sqrt{3}/2$. Numériquement, on observe que plus la dispersion des numérateurs est grande, plus la pente de $P(s)$ à l'origine est élevée.

Remarquons que certaines distributions $D(x)$ peuvent mener à des divergences dans l'équation (1.113), ce qui signifie que la méthode employée ici n'est pas valable dans ce cas. C'est le cas par exemple de la distribution de Porter-Thomas, $D(x) = \exp(-x)/(\pi x)^{1/2}$.

1.4.3 Cas d'un système chaotique en l'absence de diffuseur

Nous nous intéressons dans cette section au cas d'un système qui, en l'absence de diffuseur, est chaotique. On sait que, dans ce cas, les propriétés statistiques de ses valeurs propres correspondent à celles de matrices aléatoires. Nous supposons ici que les valeurs propres $\{E_i\}$ du système sont décrites par les matrices de l'ensemble gaussien orthogonal (matrices GOE [30])⁷. Nous allons voir que l'ajout d'un diffuseur ponctuel à ce système ne modifie pas les propriétés statistiques de ses valeurs propres, contrairement au cas examiné précédemment d'un système régulier en l'absence de diffuseur.

Une démonstration rigoureuse de cette affirmation peut être trouvée dans la littérature [31, 32, 33]. J'exposerai ici un argument simple allant dans cette direction. Considérons l'équation de Seba, qui fournit les niveaux d'énergie z_i du système avec un diffuseur en \mathbf{x}_0 :

$$\sum_{n=1}^N \frac{c_n^2}{z - E_n} = \alpha \quad (1.115)$$

avec $c_n = \phi_n(\mathbf{x}_0)$. Notons que, puisqu'on suppose que le système est décrit par les matrices de l'ensemble GOE, les c_n sont réels. Les E_n et $\phi_n(\mathbf{r})$ sont les valeurs propres et fonctions propres du système sans diffuseur. On a limité explicitement la somme infinie à $n = N$, pour rendre compte simplement de la régularisation de la somme. Ceci est une approximation qui modifie très peu les solutions, sauf pour celles proches de E_N (et de E_1 si on tronque également la somme en dessous d'une certaine énergie). La constante α dépend de l'intensité du diffuseur : $\alpha = 0$ correspond à un diffuseur d'intensité importante, et $|\alpha| \rightarrow \infty$ à un diffuseur

⁷L'argument donné ici s'étend sans difficulté au cas des systèmes décrits par les matrices de l'ensemble GUE.

d'intensité nulle. On peut relier les solutions de cette équation aux valeurs propres de la matrice M de taille $(N + 1) \times (N + 1)$:

$$M = \begin{pmatrix} -\beta^2 \alpha & \beta c_1 & \dots & \beta c_N \\ \beta c_1 & E_1 & & 0 \\ \vdots & & \ddots & \\ \beta c_N & 0 & & E_N \end{pmatrix} \quad (1.116)$$

où β est un paramètre réel qui sera déterminé dans la suite. Un vecteur propre $(x_0 \dots x_n)$ de M , de valeur propre z , satisfait les $(N + 1)$ équations :

$$-\beta^2 \alpha x_0 + \beta \sum_{i=1}^N c_i x_i = z x_0 \quad (1.117)$$

$$\beta c_i x_0 + E_i x_i = z x_i \quad i = 1 \dots N \quad (1.118)$$

En substituant les solutions de (1.118) dans (1.117), on obtient :

$$-\beta^2 \alpha + \beta^2 \sum_{i=1}^N \frac{c_i^2}{z - E_i} = z \quad (1.119)$$

c'est-à-dire :

$$\sum_{i=1}^N \frac{c_i^2}{z - E_i} = \alpha + \frac{z}{\beta^2} \quad (1.120)$$

Par rapport à l'équation (1.115), cette équation comporte le terme supplémentaire z/β^2 . Pour $|z| \ll \beta^2$, ce terme sera négligeable, et les solutions de (1.120) satisfaisant cette condition seront identiques à celles de (1.115).

Par hypothèse, les valeurs propres $E_1 \dots E_N$ correspondent à celles de l'ensemble de matrices GOE. Nous supposons par simplicité que l'espacement moyen entre les E_i est de 1. Dans ce cas, la sous-matrice $N \times N$ de M formée par $E_1 \dots E_N$ est équivalente (à un changement de base orthogonal près) à la matrice H de taille $N \times N$, où H_{ij} est une variable aléatoire gaussienne d'écart type $\sigma \sim \sqrt{N}$:

$$\langle H_{ij} \rangle = 0 \quad \text{et} \quad \langle H_{ij}^2 \rangle = (1 + \delta_{ij}) \sigma^2 \quad (1.121)$$

Comme les c_i sont les valeurs en \mathbf{x}_0 des vecteurs propres de H , c_i a également une distribution gaussienne d'écart type 1. On voit alors qu'en prenant $\beta \sim \sqrt{N}$, les éléments M_{0i} et M_{i0} de M ($i \neq 0$) sont des variables aléatoires gaussiennes d'écart type $\sim \sqrt{N}$. A l'exception de l'élément M_{00} ($M_{00} = -\beta^2 \alpha \sim N \alpha$), M est donc équivalente à une matrice GOE de taille $(N + 1) \times (N + 1)$. Il est raisonnable de penser que la perturbation d'un élément dans une matrice GOE ne modifie pas sensiblement les valeurs propres, au moins pour celles qui ne sont pas au bord du spectre. D'autre part, comme on a choisi $\beta \sim \sqrt{N}$, la condition $|z| \ll \beta^2$

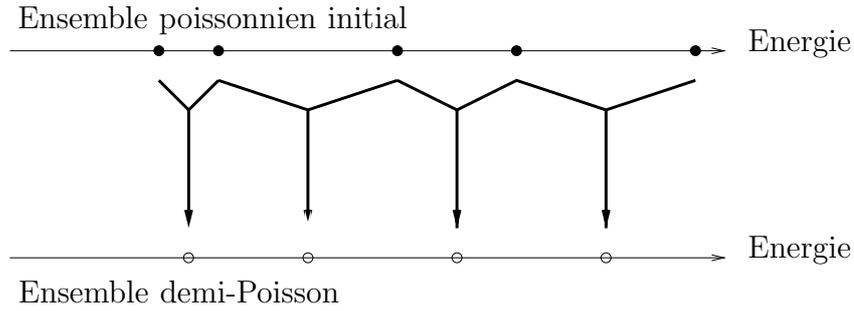


FIG. 1.5 – Méthode de construction de l’ensemble demi-Poisson : partant des niveaux poissonniens (cercles pleins), on place un niveau du nouvel ensemble au milieu de chaque intervalle de l’ensemble poissonnien.

est équivalente à $|z| \ll N$, et signifie que les valeurs propres de M (solutions de (1.120)) seront les solutions de l’équation de Seba (1.115) sauf près du bord du spectre ($|z| \sim N$). Puisque M est équivalente à une matrice GOE, les solutions de l’équation (1.115) sont donc équivalentes aux valeurs propres d’une matrice GOE (sauf en bord de spectre, où de toute façon l’équation (1.115) n’est pas valable). On voit donc que la présence du diffuseur ne modifie pas la statistique des valeurs propres pour un système chaotique, puisque les valeurs propres du système avec diffuseur sont celles d’une matrice GOE.

1.5 La distribution “demi-Poisson”

1.5.1 Définition

Nous avons vu plus haut que, partant d’un ensemble de niveaux ayant une statistique poissonnienne, l’équation de Seba fournit un ensemble de niveaux qui alternent avec les niveaux poissonniens initiaux. La position exacte de chaque solution entre les deux pôles qui l’entourent dépend des détails de l’équation (distribution des numérateurs, etc.). Les propriétés statistiques précises de l’ensemble des solutions ne peuvent être connues qu’en résolvant l’équation. Toutefois, il est possible de définir un ensemble statistique simple réunissant les principales propriétés des solutions de l’équation de Seba. Partant des niveaux poissonniens, on définit un nouvel ensemble de niveaux ainsi : on place un niveau du nouvel ensemble au milieu de chaque intervalle formé par deux niveaux poissonniens voisins (voir figure 1.5). La construction conduit au nom “demi-Poisson” [8, 34].

1.5.2 Loi d’espacement de la distribution demi-Poisson

La loi d’espacement de la distribution demi-Poisson se calcule simplement. Soient $\{E_i\}$ les niveaux poissonniens : $P(E_{i+1} - E_i = s) = P_p(s) = e^{-s}$. On pose

$F_i = (E_i + E_{i+1})/2$. On a :

$$\begin{aligned} P(F_i - F_{i-1} = s) &= P\left(\frac{E_{i+1} + E_i}{2} - \frac{E_i + E_{i-1}}{2} = s\right) \\ &= P\left(\frac{E_{i+1} - E_i}{2} + \frac{E_i - E_{i-1}}{2} = s\right) \end{aligned} \quad (1.122)$$

Les intervalles successifs entre les E_i n'étant pas corrélés, ceci vaut :

$$\begin{aligned} \int_0^s du P\left(\frac{E_{i+1} - E_i}{2} = s - u\right) P\left(\frac{E_i - E_{i-1}}{2} = u\right) \\ = \int_0^s du 2e^{-2(s-u)} 2e^{-2u} = 4e^{-2s}s \end{aligned} \quad (1.123)$$

La loi d'espace pour la distribution demi-Poisson, notée $P_{\frac{1}{2}}(s)$, vaut donc :

$$\boxed{P_{\frac{1}{2}}(s) = 4 s e^{-2s}} \quad (1.124)$$

On voit que cette loi d'espace a bien un comportement similaire à celle des solutions de l'équation de Seba pour un système sans diffuseur régulier (section 1.4.2). En effet, elle est proportionnelle à s à petit s (avec une pente de 4, nettement supérieure à $\pi\sqrt{3}/2 \simeq 2,72$ qui est la valeur minimale pour les solutions de l'équation de Seba), et un comportement en $\exp(-2s)$ à grand s . La figure 1.6 montre la loi d'espace $P_{\frac{1}{2}}(s)$, ainsi que les lois équivalentes pour un ensemble de niveaux poissonniens et un ensemble de niveaux de statistique GOE. La figure montre clairement le comportement similaire à celui de GOE à petit s , et le comportement similaire au comportement poissonnien à grand s .

1.5.3 Autres propriétés statistiques

On peut calculer de la même manière d'autres propriétés statistiques de la distribution demi-Poisson. Ainsi, la fonction de corrélation à deux corps, $R_2(x_1, x_2)$ qui donne la probabilité d'avoir un niveau en x_1 et un autre en x_2 , ne dépend que de $u = |x_2 - x_1|$ et a pour expression :

$$R_2(u) = (1 - e^{-2u}) + 2u e^{-2u} \quad (1.125)$$

On voit sur cette expression que $R_2(u)$ tend exponentiellement vers 1, ce qui traduit l'absence de corrélation à longue distance pour la distribution demi-Poisson. Ce comportement est différent de celui des solutions de l'équation de Seba (1.94) pour un système régulier en l'absence de diffuseur. En effet, il est possible de calculer théoriquement la fonction de corrélation à deux corps pour les solutions

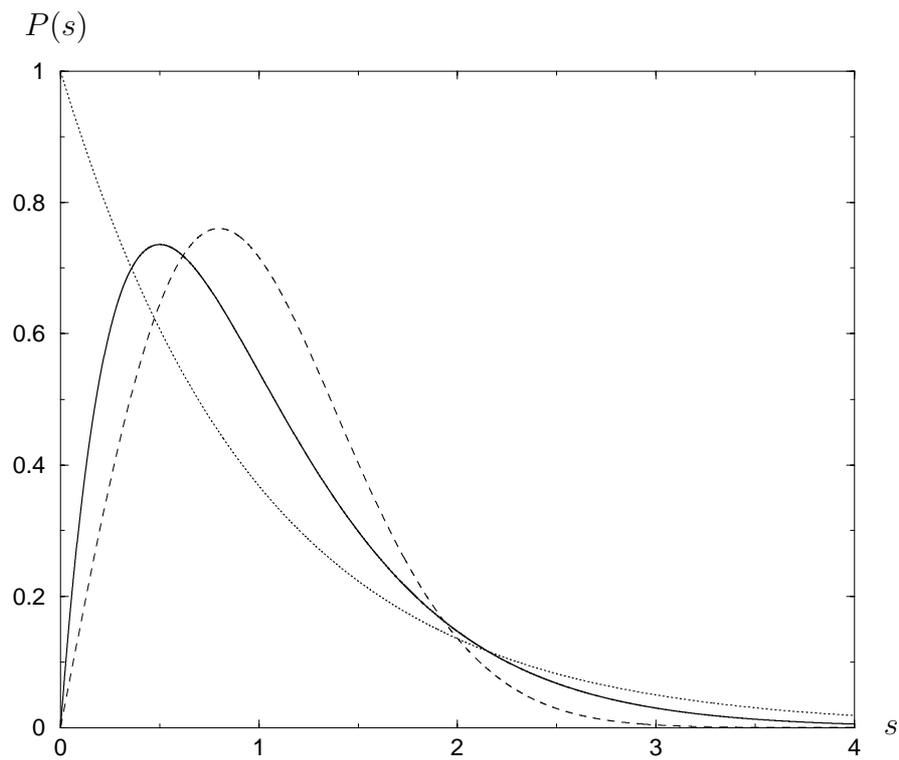


FIG. 1.6 – La loi d'espacement $P(s)$ pour la distribution demi-Poisson (en trait plein), ainsi que celles pour un ensemble de niveaux poissonniens (en pointillé) et pour un ensemble de niveaux de statistique GOE (en tireté).

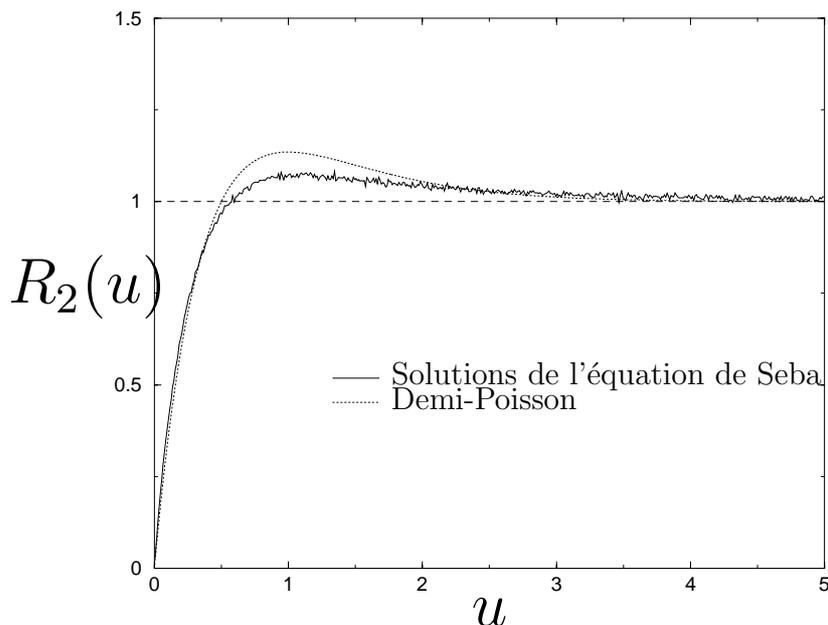


FIG. 1.7 – Fonction de corrélation à deux corps, $R_2(u)$, en fonction de la distance u , pour la distribution demi-Poisson (courbe pointillée donnée par l'équation (1.125)), comparée à la distribution obtenue numériquement en résolvant l'équation de Seba (1.94) pour des numérateurs égaux, un membre de droite nul, et un système régulier en l'absence de diffuseur (courbe en trait plein). On voit que, dans le cas de la distribution demi-Poisson, $R_2(u)$ tend exponentiellement vers 1, alors que pour les solutions de l'équation de Seba, $R_2(u)$ tend algébriquement vers 1.

de cette équation [35]. Le résultat prévoit que $R_2(u)$ tend algébriquement vers 1 pour $u \rightarrow \infty$. Dans le cas où les numérateurs de (1.94) sont égaux, et le membre de droite nul, le comportement prévu est précisément :

$$R_2(u) = 1 + \frac{2}{\pi^2 u^2} \quad u \rightarrow \infty \quad (1.126)$$

Ceci est confirmé par un calcul numérique des solutions de l'équation de Seba dans ce cas. La figure 1.7 illustre cette différence en montrant les courbes $R_2(s)$ pour la distribution demi-Poisson et pour les solutions numériques de l'équation de Seba.

La variance $\Sigma^2(L)$ est donnée par :

$$\Sigma^2(L) = (1 + e^{-2L})L - \frac{1}{2}(1 - e^{-2L}) \quad (1.127)$$

La distribution d'espacement du second voisin $P_2(s)$ (*next-nearest neighbour spacing distribution*) est également une quantité intéressante, permettant de comparer des résultats à ceux de la distribution demi-Poisson au-delà de la distribution d'espacement. La distribution d'espacement pour le second voisin, $P_2(s)$ est donnée

par :

$$P_2(s) = 4e^{-s} - 4(1+s)e^{-2s} \quad (1.128)$$

1.6 Généralisation au cas de plusieurs diffuseurs ponctuels

Les techniques présentées plus haut peuvent se généraliser pour traiter la présence de plusieurs diffuseurs ponctuels [9, 36]. Je me limiterai à exposer ici le raisonnement en termes de diffusion multiple ⁸. Considérons un système dans lequel on a placé deux diffuseurs ponctuels, le diffuseur 1 en \mathbf{r}_1 avec une matrice t notée $t_1(E)$, et le diffuseur 2 en \mathbf{r}_2 avec une matrice t notée $t_2(E)$ (voir section 1.3.7). Nous noterons $G_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; E)$ la fonction de Green du système sans diffuseur, $G_1(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; E)$ celle pour le système contenant uniquement le diffuseur 1 en \mathbf{r}_1 , et $G_{12}(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; E)$ celle pour le système contenant les deux diffuseurs.

En utilisant le raisonnement exposé précédemment pour le traitement d'un diffuseur (section 1.3.7), on obtient l'expression de $G_1(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; E)$:

$$G_1(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; E) = G_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; E) + G_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}_1; E) \tilde{t}_1(E) G_0(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}'; E) \quad (1.129)$$

où $\tilde{t}_1(E)$ est la matrice t "habillée" pour le diffuseur 1 :

$$\tilde{t}_1(E) = \frac{t_1(E)}{1 - t_1(E)P_0(\mathbf{r}_1 \rightarrow \mathbf{r}_1; E)} \quad (1.130)$$

avec

$$P_0(\mathbf{r}_1 \rightarrow \mathbf{r}_1; E) = \lim_{\epsilon \rightarrow 0} (G_0(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_1 + \epsilon; E) - G_{\text{libre}}(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_1 + \epsilon; E - V(\mathbf{r}_1))) \quad (1.131)$$

P_0 représente la propagation de \mathbf{r}_1 à \mathbf{r}_1 sans les trajectoires directes (de longueur $\epsilon \rightarrow 0$). $V(\mathbf{r})$ est le potentiel du système sans diffuseur.

Si l'on ajoute maintenant un diffuseur supplémentaire en \mathbf{r}_2 , le raisonnement est le même que pour l'ajout du premier diffuseur, mais avec $G_1(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; E)$ comme fonction de Green du système. On a donc :

$$\begin{aligned} G_{12}(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; E) &= G_1(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; E) + G_1(\mathbf{r}, \mathbf{r}_2; E) t_2(E) G_1(\mathbf{r}_2, \mathbf{r}'; E) \\ &+ G_1(\mathbf{r}, \mathbf{r}_2; E) t_2(E) P_1(\mathbf{r}_2 \rightarrow \mathbf{r}_2; E) t_2(E) G_1(\mathbf{r}_2, \mathbf{r}'; E) + \dots \end{aligned} \quad (1.132)$$

où, comme dans l'équation (1.75), le premier terme représente la propagation directe de \mathbf{r}' à \mathbf{r} (mais ici pour le système avec le diffuseur 1 en \mathbf{r}_1), le deuxième la propagation jusque \mathbf{r}_2 , la diffusion par le diffuseur 2 et la propagation jusqu'en

⁸La méthode plus rigoureuse d'extension auto-adjointe donne des résultats similaires.

\mathbf{r} , et dans le troisième terme l'onde diffusée par le diffuseur 2 se propage et est à nouveau diffusée avant d'aboutir en \mathbf{r} . $P_1(\mathbf{r}_2 \rightarrow \mathbf{r}_2; E)$ est donné par :

$$P_1(\mathbf{r}_2 \rightarrow \mathbf{r}_2; E) = \lim_{\epsilon \rightarrow 0} (G_1(\mathbf{r}_2, \mathbf{r}_2 + \epsilon; E) - G_{\text{libre}}(\mathbf{r}_2, \mathbf{r}_2 + \epsilon; E - V(\mathbf{r}_2))) \quad (1.133)$$

En sommant la série, on obtient :

$$G_{12}(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; E) = G_1(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; E) + G_1(\mathbf{r}, \mathbf{r}_2; E) \frac{t_2(E)}{1 - t_2(E)P_1(\mathbf{r}_2 \rightarrow \mathbf{r}_2; E)} G_1(\mathbf{r}_2, \mathbf{r}'; E) \quad (1.134)$$

Les valeurs propres du système sont données par les pôles de $G_{12}(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; E)$, qui sont d'après l'expression ci-dessus :

$$\frac{1}{t_2(E)} = \lim_{\epsilon \rightarrow 0} (G_1(\mathbf{r}_2, \mathbf{r}_2 + \epsilon; E) - G_{\text{libre}}(\mathbf{r}_2, \mathbf{r}_2 + \epsilon; E - V(\mathbf{r}_2))) \quad (1.135)$$

En substituant dans cette expression G_1 en fonction de G_0 et $t_1(E)$ (équation (1.129)), on obtient simplement :

$$\frac{1}{\tilde{t}_2(E)} \frac{1}{\tilde{t}_1(E)} = G_0(\mathbf{r}_2, \mathbf{r}_1; E) G_0(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2; E) \quad (1.136)$$

(où $\tilde{t}_2(E)$ est l'expression équivalente à $\tilde{t}_1(E)$ pour le diffuseur 2). Cette expression est totalement symétrique en (1,2), comme il se doit (on aurait pu, dans le raisonnement ci-dessus, placer d'abord le diffuseur 2 puis ajouter le diffuseur 1 et obtenir le même résultat). Cette équation peut encore s'écrire sous la forme :

$$\det \begin{pmatrix} [t_1(E)]^{-1} - P_0(\mathbf{r}_1 \rightarrow \mathbf{r}_1; E) & G_0(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2; E) \\ G_0(\mathbf{r}_2, \mathbf{r}_1; E) & [t_2(E)]^{-1} - P_0(\mathbf{r}_2 \rightarrow \mathbf{r}_2; E) \end{pmatrix} = 0 \quad (1.137)$$

Cette expression se généralise aisément au cas de N diffuseurs placés dans un système caractérisé par la fonction de Green $G_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; E)$. Les valeurs propres avec les N diffuseurs sont données par les zéros du déterminant $N \times N$:

$$\det \Gamma_{ij} = 0 \quad (1.138)$$

avec :

$$\begin{cases} \Gamma_{ii} = [t_i(E)]^{-1} - \lim_{\epsilon \rightarrow 0} (G_0(\mathbf{r}_i, \mathbf{r}_i + \epsilon; E) - G_{\text{libre}}(\mathbf{r}_i, \mathbf{r}_i + \epsilon; E - V(\mathbf{r}_i))) \\ \Gamma_{ij} = G_0(\mathbf{r}_i, \mathbf{r}_j; E) \quad (i \neq j) \end{cases} \quad (1.139)$$

où \mathbf{r}_i et $t_i(E)$ sont la position et la matrice t pour le diffuseur "i". Remarquons que pour N diffuseurs dans l'espace libre, les éléments diagonaux sont simplement $\Gamma_{ii} = [t_i(E)]^{-1}$.

En comparant le résultat obtenu, pour un diffuseur, par le raisonnement de type “diffusion multiple” (équation (1.79)) avec celui obtenu par la technique d’extension auto-adjointe (éq. (1.87)), on en déduit la généralisation de l’équation de Seba pour N diffuseurs (placés en \mathbf{r}_i , et de paramètre θ_i , $i = 1 \dots N$) :

$$\det \Gamma_{ij} = 0 \quad (1.140)$$

avec

$$\begin{cases} \Gamma_{ii} &= \frac{\sin \theta_i}{1 - \cos \theta_i} \sum_n \frac{|\phi_n(\mathbf{r}_i)|^2}{E_n^2 + \mathcal{E}_0^2} - \sum_n |\phi_n(\mathbf{r}_i)|^2 \left(\frac{1}{E - E_n} + \frac{E_n}{E_n^2 + \mathcal{E}_0^2} \right) \\ \Gamma_{ij} &= G_0(\mathbf{r}_i, \mathbf{r}_j; E) \quad (i \neq j) \end{cases} \quad (1.141)$$

Chapitre 2

L'atome non-hydrogénoïde en champ extérieur

2.1 Introduction

Ce chapitre traite le problème des états excités d'un atome non-hydrogénoïde en champ extérieur. Le premier résultat exposé est l'obtention d'une équation permettant de calculer simplement les niveaux d'énergie (et les états propres) du problème. Cette équation, du type équation de Seba, est obtenue en utilisant les techniques exposées dans le chapitre 1, en réduisant le caractère non-hydrogénoïde du système à l'ajout d'un ou plusieurs diffuseurs ponctuels au système hydrogénoïde correspondant. L'équation est également obtenue pour le problème à énergie réduite fixée, pour lequel la dynamique classique correspondante est fixée.

Le deuxième résultat exposé concerne les propriétés statistiques des niveaux d'énergie du problème. L'équation évoquée ci-dessus permet de montrer, dans le cas d'un système hydrogénoïde régulier, que les propriétés statistiques de ces niveaux sont nécessairement intermédiaires entre celles rencontrées d'une part pour les systèmes réguliers et d'autre part pour les systèmes chaotiques. De l'équation découlent des modèles simples pour la distribution d'espacement, qui permettent de reproduire les résultats obtenus.

Le plan de ce chapitre est le suivant. Dans la section 2.3, on détaille tout d'abord les caractéristiques du système considéré et les approximations faites. Ensuite la théorie du défaut quantique est expliquée. La section 2.4 explique la méthode de résolution du problème utilisant la théorie du diffuseur ponctuel, dans le cas où l'atome possède un seul défaut quantique non-nul. L'analogie avec le problème du diffuseur ponctuel est exposée, et une équation utilisable en pratique pour le calcul des valeurs propres est obtenue. La technique de régularisation des divergences ainsi que les résultats obtenus sont discutés. La section 2.5 généralise la méthode au cas de plusieurs défauts quantiques. La méthode d'obtention de l'équation dans ce cas est détaillée, et une version régularisée et utilisable en pratique est obtenue.

nue. La section 2.6 montre comment l'équation peut être adaptée au cas à énergie réduite fixée. La propriété de *scaling* du hamiltonien, menant au problème à énergie réduite fixée, est expliquée. Puis, la méthode de résolution utilisée dans ce cas est expliquée. Enfin, une version régularisée de l'équation, utilisable en pratique, est donnée. La section 2.7 s'intéresse aux propriétés statistiques des solutions. Après avoir fait le lien avec l'équation de Seba (chapitre 1), les résultats pour la distribution d'espacement sont comparés aux modèles demi-Poisson et δ -Poisson (pour un défaut quantique $\delta \neq 0, 5$). Le cas d'un défaut quantique très faible est ensuite traité spécifiquement. Enfin, le cas de plusieurs défauts quantiques est envisagé. Pour terminer, la section 2.8 s'intéresse aux autres méthodes utilisées pour traiter le même problème. La méthode de la matrice R est tout d'abord expliquée, et comparée à la nôtre. Ensuite, les méthodes semi-classiques sont envisagées. On montre que celles-ci permettent de mieux comprendre le rôle joué par le cœur atomique, et un argument semi-classique simple montre que le système ne peut être chaotique au sens usuel du terme.

2.2 Remarque concernant les unités

Pour l'étude des états excités d'atomes en champ extérieur, deux systèmes d'unité sont couramment employés.

Il y a tout d'abord les unités atomiques (u.a.), pour lesquelles on a

$$\hbar = 4\pi \epsilon_0 = |q| = m = 1 \quad (2.1)$$

où q est la charge de l'électron, et m sa masse. Dans ces unités, l'unité d'énergie est le Hartree, et l'unité de longueur est le rayon de Bohr. L'équation de Schrödinger pour l'atome d'hydrogène s'écrit (pour un noyau de masse infinie) :

$$\left(\frac{-\Delta}{2} - \frac{1}{r} \right) \psi(\mathbf{r}) = E \psi(\mathbf{r}) \quad (2.2)$$

Ensuite, on utilise également des unités similaires dans lesquelles les énergies sont multipliées par 2 : l'unité d'énergie devient le Rydberg (1 Rydberg = 1/2 Hartree) (mais l'unité de longueur reste le rayon de Bohr). Ceci permet, en multipliant l'équation (2.2) par 2, de se débarrasser du facteur 1/2 accompagnant l'opérateur $-\Delta$. Dans ces unités, l'équation de Schrödinger pour l'atome d'hydrogène s'écrit :

$$\left(-\Delta - \frac{2}{r} \right) \psi(\mathbf{r}) = E \psi(\mathbf{r}) \quad (2.3)$$

Les niveaux d'énergie de l'atome d'hydrogène s'expriment ainsi dans les deux systèmes :

$$E_n = -\frac{1}{2n^2} \text{ (u.a.)} \quad \text{et} \quad E_n = -\frac{1}{n^2} \quad (2.4)$$

Les unités du second type sont notamment utilisées par Seaton dans son article de revue concernant la théorie du défaut quantique [37]. Dans ce chapitre, la théorie du défaut quantique est un élément important. Nous avons donc choisi, par simplicité, et pour nous conformer au choix de Seaton, d'utiliser les unités du second type. Toutefois, dans la section 2.6, concernant la résolution du problème à énergie réduite fixée, nous utilisons les unités atomiques.

2.3 Le système considéré

2.3.1 Description du système et des approximations faites

Le système physique auquel nous nous intéressons dans toute cette partie est constitué d'un atome non-hydrogénéoïde, dont un électron périphérique est suffisamment excité, placé dans un champ extérieur faible. Nous allons faire un certain nombre d'approximations, dans le but d'obtenir un système suffisamment simple tout en conservant les propriétés physiques essentielles.

Une première simplification découle du fait que l'on s'intéresse aux états où un électron périphérique est très excité (états de Rydberg), avec une énergie proche de la limite de première ionisation de l'atome. Cet électron est alors fortement différencié des autres électrons non-excités, qui sont proches du noyau (voir figure 2.1). Nous appellerons *cœur ionique* l'ensemble formé par le noyau et les électrons non-excités. Il est alors légitime d'utiliser une approximation de hamiltonien à un corps pour cet électron excité, dans lequel le potentiel prend en compte l'interaction moyenne avec le noyau et les électrons internes. Notons que cette approximation ne permet pas de rendre compte complètement des effets d'échange et de corrélation entre les électrons.

Dans la suite, nous nous limiterons essentiellement aux atomes alcalins. Dans ce cas, le cœur ionique a la structure électronique d'un gaz rare. Cela signifie d'une part que le potentiel dû au cœur est à symétrie sphérique, ce qui simplifie considérablement le problème. Et d'autre part que les énergies d'excitation du cœur (qui sont approximativement celles d'un gaz rare) sont très importantes. A titre d'exemple, le premier niveau excité pour le cœur ionique associé au sodium (excitation d'un électron de la couche $2p$ vers la couche $3s$) est à environ 17 eV de l'état fondamental du cœur, alors que l'énergie nécessaire pour amener l'électron périphérique du sodium (l'électron de la couche $3s$) vers un état de Rydberg est d'environ 5 eV [38]. Dans le cas du césium, l'énergie d'excitation du cœur est d'environ 8.5 eV, alors que l'énergie d'excitation de l'électron périphérique vers un niveau de Rydberg est d'environ 3.8 eV. On voit donc que l'énergie d'excitation de l'électron périphérique est toujours nettement inférieure à l'énergie d'excitation du cœur. Cela signifie que l'on peut en très bonne approximation considérer que le cœur ionique est dans son état fondamental (hypothèse du *cœur gelé*), et traiter les effets du cœur sur l'électron périphérique en termes de polarisation, d'effet de

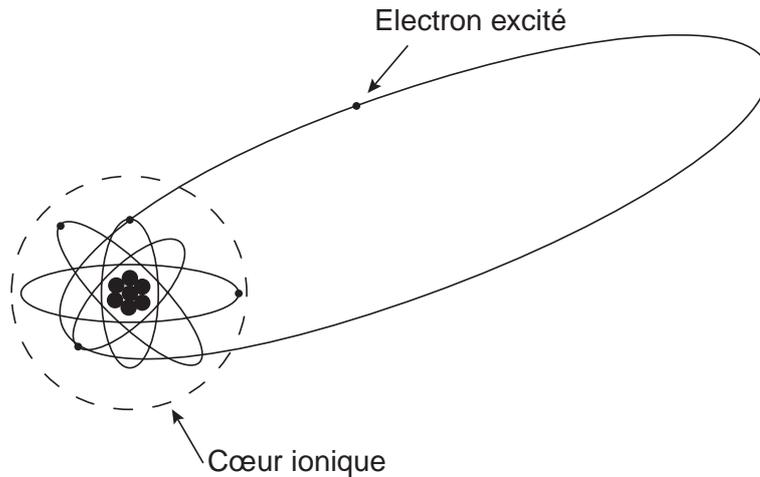


FIG. 2.1 – Représentation schématique du système considéré. L'atome possède un électron très excité, nettement différencié des autres électrons, qui forment avec le noyau le cœur ionique.

contact, etc.

Sans connaître précisément le potentiel $V(r)$ pour l'électron excité, on peut en donner les caractéristiques essentielles, communes à tous les atomes étudiés (voir figure 2.2). Tout d'abord, les comportements à la limite des r grands et petits sont connus : pour r très grand, l'électron excité voit un noyau atomique dont la charge est écrantée par les électrons périphériques, le tout produisant un potentiel $-1/r$, identique à celui d'un atome hydrogénoïde. Pour r très petit, l'électron voit essentiellement le noyau de charge Z (les autres électrons sont "plus loin"), et $V(r)$ doit donc se comporter comme $-Z/r$ pour $r \rightarrow 0$. Entre ces deux comportements limites, on peut distinguer deux zones aux propriétés distinctes. Pour r inférieur à quelques unités atomiques (correspondant à la taille du cœur, que nous noterons r_c , et qui est d'autant plus importante que l'atome considéré est lourd), l'électron voit un potentiel très complexe dû au noyau et aux électrons du cœur, et il n'est d'autre part plus légitime de distinguer l'électron excité des électrons du cœur. Par contre, pour $r > r_c$, l'électron voit un potentiel proche du potentiel $-1/r$, à cause de l'écrantage dû aux électrons du cœur. Les corrections à ce potentiel sont principalement dues aux effets de polarisation du cœur. Le cœur étant à symétrie sphérique, il ne possède pas de moments multipolaires permanents. Mais la présence de l'électron excité polarise le cœur, et les moments induits modifient le potentiel vu par l'électron. Le terme le plus important est dû au dipôle induit, qui produit une correction en $-1/r^4$ [39]. Nous allons voir dans la section suivante que l'utilisation des défauts quantiques permet de prendre en compte simplement le caractère non-hydrogénoïde du potentiel vu par l'électron de Rydberg à courte distance.

La deuxième hypothèse importante concerne le champ extérieur. Nous nous

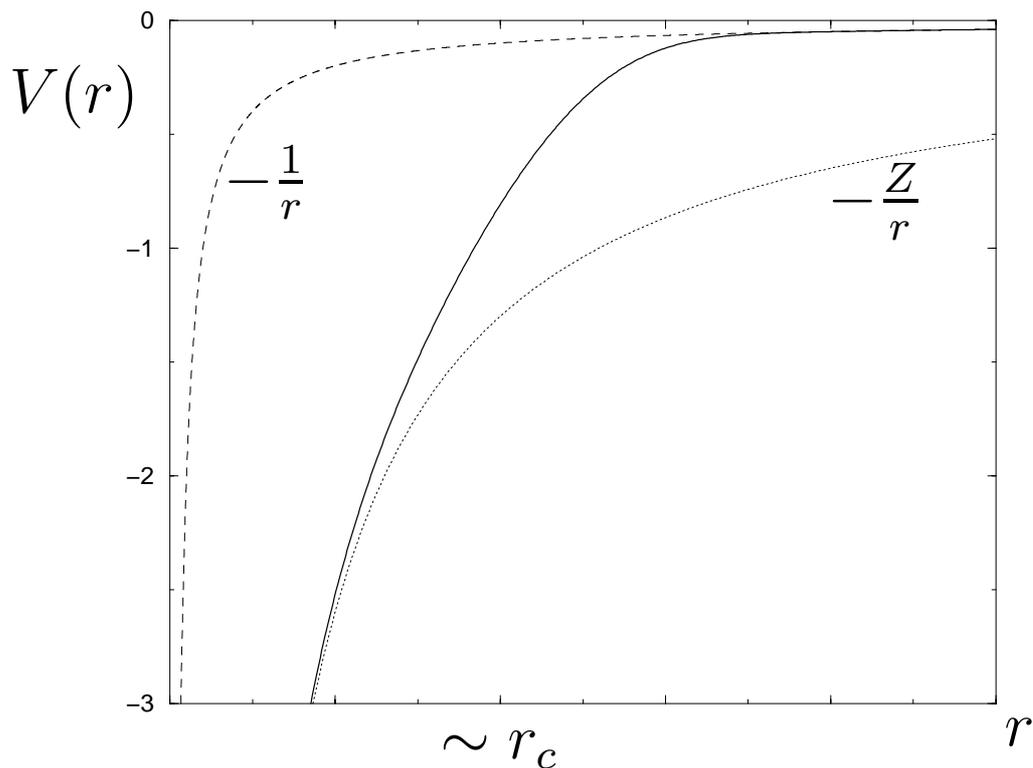


FIG. 2.2 – Allure typique du potentiel $V(r)$ vu par l'électron périphérique (en trait plein), en fonction de la distance r entre l'électron et le noyau. Pour r grand, le potentiel est proche de $-1/r$ (ligne tiretée). Pour r petit, le potentiel tend vers $-Z/r$ (ligne pointillée), où Z est la charge du noyau. r_c est le rayon du cœur ionique.

placerons uniquement en régime de champ faible, dans lequel le champ extérieur près du cœur ionique est petit devant le champ dû au cœur. Cette hypothèse est peu restrictive ; ainsi, par exemple, le champ électrique d'un proton à un rayon de Bohr de distance (qui donne l'unité de champ électrique en unités atomiques) est de $5,14 \cdot 10^{11} \text{V/m}$, ce qui est bien supérieur aux champs habituellement utilisés. Se placer en régime de champ faible nous permet de faire deux hypothèses simplificatrices.

Tout d'abord, on supposera que le cœur ionique n'est pas modifié par la présence du champ extérieur. Ceci est faux en toute rigueur, car la présence d'un champ électrique par exemple polarise le cœur ionique, ce qui modifie le potentiel vu par l'électron excité et donc ses niveaux d'énergie. Mais comme le cœur est équivalent à un gaz rare, sa polarisabilité est très faible, et la variation des niveaux d'énergie de l'électron excité sera très petite. En prenant pour la polarisabilité du cœur d'un alcalin celle du gaz rare associé, les polarisabilités électriques des cœurs atomiques varient de $\alpha = 1,385$ (ua) pour le lithium à $\alpha = 27,317$ (ua) pour le césium [40]. Puisqu'on applique un champ $E \ll 1$ (ua), le dipôle induit $d = \alpha E$ sera aussi très petit devant 1. Il crée un potentiel $\sim d/r^2$, dont l'effet sera très faible (et ce d'autant plus que l'on s'intéresse à des niveaux plus excités, qui sont plus loin du cœur). Si une grande précision est requise pour les résultats, il sera toujours possible de traiter cet effet perturbativement à partir des résultats obtenus en le négligeant [41, 42].

Ensuite, le régime de champ faible nous permet tout simplement de négliger, près du cœur, le champ extérieur devant le champ dû au cœur. Ainsi, par exemple, un champ extérieur de 10^4V/m vaut moins d'un millième du champ dû au cœur jusqu'à une distance $r_0 \sim 200$ (ua) du cœur. Cette hypothèse est très importante car elle permet de séparer l'espace en deux régions aux propriétés distinctes. D'une part, une région proche du cœur (typiquement, une sphère d'un rayon de quelques dizaines d'unités atomiques) où l'on peut négliger le champ extérieur, et où le problème est simplement celui d'un électron dans le champ du cœur sans champ extérieur, beaucoup plus simple à traiter. Et d'autre part, une région loin du cœur où le champ extérieur est important, mais où l'on peut négliger tous les effets dus à la non-ponctualité du cœur, et où le système est équivalent à un atome d'hydrogène en champ extérieur. C'est la possibilité de séparer ainsi l'espace en deux régions où le problème se simplifie qui nous fournira, dans la suite, la méthode de résolution. La séparation de l'espace en ces deux régions est illustrée sur la figure 2.3.

Notons enfin que, dans la suite, nous considérerons également le cas de l'atome d'hélium. Pour cet atome, le cœur ionique (un seul électron dans la couche $1s$, et le noyau) est également à symétrie sphérique, et la petite taille du cœur entraîne que sa polarisabilité est faible. De plus, puisque tous les états où les deux électrons sont excités sont au-delà de la limite de première ionisation, il est raisonnable de faire l'hypothèse du cœur gelé. Toutes ces propriétés font donc de l'hélium un bon candidat pour l'application de notre méthode.

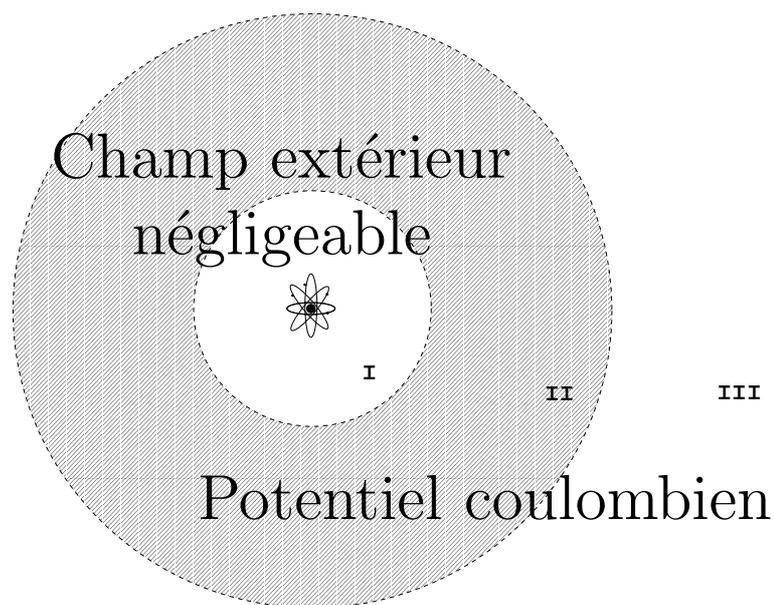


FIG. 2.3 – Représentation schématique de la séparation de l'espace autour du cœur ionique en plusieurs régions distinctes. D'une part, une zone près du cœur ionique (notée I) dans laquelle le champ extérieur est négligeable, et où l'on peut considérer que l'on a un électron dans le champ du cœur ionique. D'autre part, une zone éloignée du cœur (notée III), dans laquelle on peut oublier la présence du cœur ionique et considérer que l'on a un électron hydrogénoïde dans un champ extérieur. Enfin, la zone intermédiaire (zone hachurée, notée II), où l'on peut concilier les deux images pour obtenir la solution du problème.

2.3.2 La théorie du défaut quantique

La théorie du défaut quantique permet de décrire simplement la fonction d'onde et les niveaux d'énergie d'un électron excité dans le champ d'un cœur ionique. Le principe en est le suivant [37].

Au-delà d'une sphère de rayon r_0 , on peut considérer que le potentiel dû au cœur est simplement $-1/r$ (écranage complet par les électrons du cœur). Dans ce cas, la fonction d'onde de l'électron excité pour $r > r_0$ est solution de l'équation de Schrödinger pour l'hydrogène (potentiel $-1/r$), limitée au domaine $r > r_0$. En décomposant la fonction d'onde $\psi(\mathbf{r})$ sur les harmoniques sphériques :

$$\psi(\mathbf{r}) = \sum_{l,m} Y_l^m(\theta, \phi) \psi_l(r) \quad (2.5)$$

et en posant $f_l(r) = r \psi_l(r)$, la fonction $f_l(r)$ obéit à l'équation (rappelons que l'on se place dans les unités telles que le Rydberg est l'unité d'énergie, voir section 2.2) :

$$\left(\frac{d^2}{dr^2} - \frac{l(l+1)}{r^2} + \frac{2}{r} + E \right) f_l(r; E) = 0 \quad r > r_0 \quad (2.6)$$

Par commodité, on introduit le paramètre $\nu = 1/\sqrt{-E}$, qui généralise le nombre quantique principal de l'hydrogène (dont les valeurs propres correspondent à $\nu = n$, n entier). On a ici $\nu \gg 1$, car on s'intéresse aux niveaux d'un électron très excité pour lequel $|E| \ll 1$. La fonction $f_l(r; E)$ est une combinaison linéaire des deux solutions indépendantes de l'équation (2.6). On utilisera ici les solutions $s_l(r; E)$ et $c_l(r; E)$. Ce sont des fonctions lentement variables de l'énergie E et qui, considérées sur le domaine $[0, \infty[$, ont les comportements suivants (voir figure 2.4) :

- pour $r \rightarrow 0$, $s_l(r; E) \sim r^{l+1}$ et $c_l(r; E) \sim r^{-l}$, indépendamment de l'énergie
- pour $E < 0$, entre $r_{min} \simeq l(l+1)/2$ et $r_{max} \simeq 2/|E|$ (expressions valables pour $|E| \ll 1$), $s_l(r; E)$ et $c_l(r; E)$ sont des fonctions oscillantes, déphasées approximativement de $\pi/2$; alors que pour $E > 0$, $s_l(r; E)$ et $c_l(r; E)$ sont des fonctions oscillantes jusqu'à l'infini
- pour $E < 0$, $s_l(r; E)$ et $c_l(r; E)$ divergent exponentiellement pour $r \rightarrow \infty$, sauf aux valeurs entières de ν (pour s_l) et demi-entières de ν (pour c_l)

Remarquons que le fait que $c_l(r; E)$ diverge pour $r \rightarrow 0$ est sans importance, car la fonction $f_l(r; E)$ obtenue ici n'est valable que pour $r > r_0$. Pour $r < r_0$, l'équation (2.6) n'est pas applicable, et la fonction d'onde véritable est non-divergente pour $r \rightarrow 0$. Pour obtenir une fonction qui tend vers 0 pour $r \rightarrow \infty$, il faut prendre la combinaison linéaire suivante :

$$-\cos(\pi\nu) s_l(r; E) + \sin(\pi\nu) c_l(r; E) \quad (2.7)$$

Remarquons que cette fonction reste la même lorsque l'on modifie l'énergie E de manière à passer de ν à $\nu + 1$. Les valeurs propres E_i du problème sont obtenues en imposant l'égalité, en $r = r_0$, de la dérivée logarithmique de cette fonction

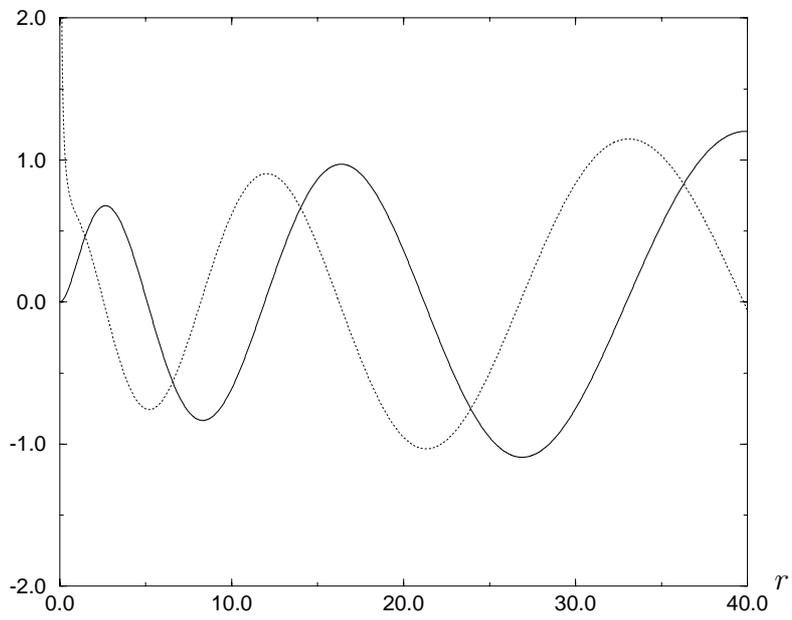


FIG. 2.4 – Les fonctions $s_2(r)$ (en trait plein) et $c_2(r)$ (en pointillé) prises à l'énergie $E = -1/(40,25)^2$.

	δ_0	δ_1	δ_2	δ_3
Lithium	0,40	0,05	0,00	0,00
Sodium	1,35	0,86	0,01	0,00
Rubidium	3,13	2,65	1,34	0,02
Césium	4,05	3,57	2,47	0,03

TAB. 2.1 – Valeurs des défauts quantiques δ_l pour quelques atomes alcalins.

et de celle de la solution pour $r \leq r_0$. Cette solution n'est pas connue, mais on sait qu'elle varie très lentement avec l'énergie E , car dans l'équation dont elle est solution, l'énergie E est en valeur absolue très petite devant le potentiel (qui en valeur absolue est $\geq 1/r$). Ceci signifie que, si l'on a une valeur propre E_i avec la fonction propre $-\cos(\pi\nu_i) s_l(r; E_i) + \sin(\pi\nu_i) c_l(r; E_i)$, on a alors également la valeur propre E_{i+1} telle que

$$\nu_{i+1} \simeq \nu_i + 1 \quad (2.8)$$

puisque la dérivée logarithmique que l'on impose en r_0 ne varie quasiment pas entre $E = E_i$ et $E = E_{i+1}$. On peut donc repérer les niveaux d'énergie par $\nu_{nl} = n - \delta_{nl}$, où n est un entier, et δ_{nl} est le **défaut quantique** pour la composante l du moment angulaire, et est d'après l'argument ci-dessus une fonction variant lentement avec l'énergie (et donc avec n). La fonction propre associée s'écrit alors :

$$f_l(r; E_{nl}) = \cos(\pi\delta_{nl}) s_l(r; E_{nl}) + \sin(\pi\delta_{nl}) c_l(r; E_{nl}) \quad (2.9)$$

et les niveaux d'énergie sont :

$$E_{nl} = \frac{-1}{\nu_{nl}^2} = \frac{-1}{(n - \delta_{nl})^2} \quad (2.10)$$

Dans la suite, on utilisera simplement δ_l , en prenant $\delta_l = \lim_{n \rightarrow \infty} \delta_{nl}$, et en oubliant la dépendance en énergie. Ceci est une bonne approximation quand on s'intéresse aux niveaux excités, mais prendre en compte explicitement la dépendance en énergie de δ_l ne poserait pas de problème dans toute la suite. A titre d'exemple, le défaut quantique δ_0 du sodium ne varie que de 0,005% entre $n = 30$ ($E = -1,11 \cdot 10^{-3}$) et $n \rightarrow \infty$ ($E \rightarrow 0$) [39].

A partir de l'équation (2.10), il apparaît que les défauts quantiques δ_{nl} pour un atome donné peuvent être obtenus expérimentalement à partir du spectre pour cet atome en l'absence de champ extérieur. Historiquement, c'est pour reproduire les spectres expérimentaux qu'ont été introduits les paramètres δ_{nl} . Le tableau 2.1 donne la valeur des défauts quantiques pour plusieurs atomes alcalins. Ce tableau montre que le défaut quantique δ_l est une fonction rapidement décroissante de l , et que les défauts quantiques sont d'autant plus importants que l'atome est lourd. On peut comprendre ceci à partir d'arguments classiques. D'un point de vue classique, la présence du cœur ionique de rayon r_c (région où le potentiel

est très différent du potentiel hydrogénoïde $-1/r$) entraîne que la trajectoire de l'électron excité n'est plus une ellipse fermée, mais une ellipse qui précède autour du cœur. On peut montrer, à partir d'arguments semi-classiques, que l'angle de précession pour un passage près du cœur est proportionnel à la dérivée du défaut quantique par rapport à l . Ceci explique que le défaut quantique est une fonction décroissante de l . De plus, l'angle de précession pour un passage près du cœur sera d'autant plus important que la trajectoire de l'électron pénètre de manière importante dans le cœur. Ceci est fonction du moment angulaire : une trajectoire de moment angulaire \mathbf{L} et d'énergie $E \simeq 0$ a une distance d'approche minimum de l'origine r_{min} qui vaut :

$$r_{min} = \frac{\mathbf{L}^2}{2} \quad (2.11)$$

Ceci explique pourquoi δ_l chute rapidement vers 0 à partir d'une valeur donnée de l ($l = 3$ pour Rb et Cs, $l = 2$ pour Na et K, $l = 1$ pour Li) : puisque le cœur a une extension finie r_c , les trajectoires de moment angulaire \mathbf{L} tel que $r_{min} > r_c$ ne pénètrent pas dans le cœur, et donc ne sont que peu perturbées. Quantiquement, à \mathbf{L}^2 correspond $l(l+1)$, et la condition $r_{min} > r_c$ s'écrit :

$$\frac{l(l+1)}{2} > r_c \quad (2.12)$$

Ceci nous fournit une estimation de r_c pour les différents atomes.

Les effets dus à la structure fine¹ peuvent être pris en compte au moyen des défauts quantiques. La structure fine dépend essentiellement de la fonction d'onde près de l'origine, car la partie radiale du hamiltonien de structure fine varie en $1/r^3$. A cause de la présence du cœur ionique, la structure fine peut donc être fortement modifiée. La correction de structure fine varie en $1/n^3$, comme la variation des niveaux d'énergie due à un défaut quantique, ce qui implique qu'on ne peut pas la négliger à la limite $n \rightarrow \infty$ si l'on désire obtenir une bonne précision. Il est possible d'inclure la correction de structure fine dans les défauts quantiques en utilisant, pour chaque l , deux défauts quantiques différents pour les deux valeurs de j associées ($j = l + 1/2$ et $j = l - 1/2$). Dans le cas du sodium par exemple, on introduit pour $l = 1$ les défauts quantiques $\delta_{1,1/2}$ et $\delta_{1,3/2}$, avec les valeurs suivantes (pour $n \rightarrow \infty$) :

$$\delta_{1,1/2} = 0,85542 \quad \delta_{1,3/2} = 0,85461 \quad (2.13)$$

Dans la suite, nous ne tiendrons pas compte de la structure fine, mais la méthode exposée pourrait être adaptée pour en tenir compte.

Enfin, nous avons raisonné jusqu'ici dans le cas $E < 0$, c'est-à-dire pour un électron lié dans le champ du cœur ionique. Le cas $E > 0$, où l'électron n'est pas lié, correspond à la diffusion de cet électron par le potentiel dû au cœur ionique. Puisque ce potentiel est à symétrie sphérique, on peut caractériser la diffusion par un ensemble de déphasages (ou "phase shift") ϕ_l ($l = 0, 1, 2, \dots$), qui rendent

¹tout ce qui suit est également valable pour la structure hyperfine.

compte du déphasage entre l'onde incidente et l'onde réfléchie pour les différentes composantes l du moment angulaire. Le lien entre le défaut quantique (qui est défini pour les énergies négatives) et le déphasage (qui est défini pour les énergies positives) s'obtient à partir de la forme asymptotique des fonctions $s_l(r; E)$ et $c_l(r; E)$ pour $r \rightarrow \infty$. Pour $E > 0$, la fonction d'onde radiale est de la forme (cf. équation (2.9)) :

$$f_l(r; E) = \cos(\pi\delta_l) s_l(r; E) + \sin(\pi\delta_l) c_l(r; E) \quad (2.14)$$

Pour $r \rightarrow \infty$, la forme asymptotique de s_l et c_l est [37] :

$$s_l(r; E) = C \frac{1}{\sqrt{\pi k}} \sin \zeta \quad r \rightarrow \infty \quad (2.15)$$

$$c_l(r; E) = C \frac{1}{\sqrt{\pi k}} \cos \zeta \quad r \rightarrow \infty \quad (2.16)$$

où C est une constante, $k^2 = E$ ($k > 0$), et ζ est donné par :

$$\zeta = kr - \frac{1}{2} l\pi + \frac{1}{k} \ln(2kr) + \arg \Gamma(l + 1 - \frac{i}{k}) \quad (2.17)$$

La fonction d'onde pour $r \rightarrow \infty$ peut donc s'écrire comme :

$$f_l(r; E) = \frac{C}{\sqrt{\pi k}} (\cos(\pi\delta_l) \sin \zeta + \sin(\pi\delta_l) \cos \zeta) = \frac{C}{\sqrt{\pi k}} \sin(\zeta + \pi\delta_l) \quad (2.18)$$

Puisque $s_l(r; E) \sim \sin \zeta$ est la fonction propre en l'absence de déphasage, le déphasage s'obtient en écrivant $f_l(r; E)$ sous la forme :

$$f_l(r; E) \sim \sin(\zeta + \phi_l) \quad (2.19)$$

On en déduit que le déphasage ϕ_l est simplement donné par :

$$\phi_l = \pi\delta_l \quad (2.20)$$

Il n'y a donc pas de différence entre la caractérisation du cœur ionique en termes de défauts quantiques et celle en termes de déphasages. Ceci entraîne que la valeur $E = 0$ de l'énergie n'a rien de particulier, et que toutes les propriétés varient continûment lorsque l'on passe de $E < 0$ à $E > 0$. Pour les fonctions $s_l(r; E)$ et $c_l(r; E)$ par exemple, la borne r_{max} au-delà de laquelle leur comportement n'est plus oscillant mais exponentiel tend vers $+\infty$ lorsque $E \rightarrow 0$ (avec $E < 0$), et elles oscillent jusque $+\infty$ pour $E \geq 0$.

2.3.3 Point de vue adopté dans la suite

Dans la suite de ce travail, nous ne conservons que les éléments essentiels du système introduits ci-dessus, afin d'obtenir un exposé simple de la méthode de résolution employée, et de ses résultats. Nous considérerons donc un atome caractérisé par un ensemble de défauts quantiques δ_l fixés (non-négligeables uniquement jusque $l = 4$ ou 5) dans un champ extérieur. Le champ extérieur sera négligé près du cœur (dans une sphère de quelques dizaines d'unités atomiques autour de cœur), alors que loin du cœur (au-delà de cette même sphère), c'est le caractère non-coulombien du potentiel qui sera négligé.

Les effets que nous ne prendrons pas en compte ici (variation du défaut quantique avec l'énergie, effet de la structure fine, polarisabilité du cœur,...) pourraient soit être inclus dans la méthode sans en changer le principe, soit être traités perturbativement *a posteriori*.

2.4 Résolution du problème en termes de diffuseur ponctuel

2.4.1 Introduction

Cette section explique comment on peut obtenir, à partir d'une analogie entre le cœur ionique et un diffuseur ponctuel, une équation permettant le calcul des niveaux d'énergie pour un atome non-hydrogénoïde en champ extérieur faible. On se limite dans cette section au cas où le cœur ionique est caractérisé par un seul défaut quantique δ_0 pour la composante $l = 0$ du moment angulaire (tous les autres défauts quantiques étant nuls). Cette situation correspond assez bien au cas des atomes légers, comme le lithium ou l'hélium, pour lesquels seul δ_0 est important. Par simplicité de notation, nous posons $\delta = \delta_0$.

Cette section s'organise comme suit. En 2.4.2, on détaille l'analogie que l'on peut faire entre le défaut quantique δ et un diffuseur ponctuel en $\mathbf{r} = 0$. En 2.4.3 on expose la méthode de résolution qui en découle. 2.4.4 montre comment on obtient une équation utilisable en pratique. En 2.4.5, on explique la technique de régularisation utilisée. La précision des résultats obtenus est détaillée en 2.4.6. Enfin, on montre en 2.4.7 que la méthode permet également d'obtenir les états propres du système.

2.4.2 Analogie entre le défaut quantique δ et un diffuseur ponctuel

Le système considéré est formé d'un électron dans le champ d'un cœur ionique et dans un champ extérieur, le cœur étant caractérisé par un seul défaut quantique δ non-nul pour la composante $l = 0$ du moment angulaire. Le hamiltonien H_0 du

système hydrogénoïde correspondant s'écrit, dans le cas d'un champ magnétique extérieur $\mathbf{B} = B \mathbf{e}_z$:

$$H_0(\mathbf{r}) = -\Delta - \frac{2}{r} + \gamma L_z + 2\gamma^2 \frac{(x^2 + y^2)}{8} \quad (2.21)$$

où γ est la valeur du champ \mathbf{B} en unités atomiques (1 u.a. = $2,35 \cdot 10^5$ T) ; et dans le cas d'un champ électrique extérieur $\mathbf{E} = E \mathbf{e}_z$:

$$H_0(\mathbf{r}) = -\Delta - \frac{2}{r} + 2Fz \quad (2.22)$$

où F est la valeur du champ \mathbf{E} en unités atomiques (1 u.a. = $5,14 \cdot 10^{11}$ V/m). Notons que lorsque l'on se limite à un seul champ extérieur (comme nous le ferons généralement dans la suite), la symétrie cylindrique entraîne que le nombre quantique magnétique m défini pour l'hydrogène en l'absence de champ reste un bon nombre quantique en présence du champ, et on peut donc se limiter à un seul m . Ceci permet, dans le cas du champ magnétique, d'oublier le terme γL_z du hamiltonien (2.21) qui pour des états de m donné déplace simplement toutes les énergies de γm . Nous noterons $G_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; E)$ la fonction de Green à l'énergie E associée au hamiltonien H_0 .

Près du cœur (pour $r_c < r < r_0$, où r_c est le rayon du cœur, et r_0 le rayon de la sphère à l'intérieur de laquelle le champ extérieur est négligeable), la fonction d'onde de l'électron est entièrement caractérisée par le défaut quantique, puisque le champ extérieur y est négligeable. En décomposant la fonction d'onde sur les harmoniques sphériques :

$$\psi(\mathbf{r}) = \sum_{l,m} Y_l^m(\theta, \phi) \psi_l(\mathbf{r}) \quad (2.23)$$

la composante $l = 0$ est donc de la forme :

$$\psi_0(r; E) = \cos(\pi\delta) \frac{s_0(r; E)}{r} + \sin(\pi\delta) \frac{c_0(r; E)}{r} \quad (2.24)$$

pour r petit, alors que les autres composantes de la fonction d'onde ($l \neq 0$) sont simplement :

$$\psi_l(r; E) = \frac{s_l(r; E)}{r} \quad (2.25)$$

puisque les défauts quantiques pour $l \neq 0$ sont nuls. L'expression (2.24) est valable dans la région proche du cœur où le champ extérieur est négligeable, mais pas à l'intérieur du cœur (c'est-à-dire $r < r_c$). Pour $r < r_c$, la fonction d'onde réelle est régulière pour $r \rightarrow 0$, au contraire de $\psi_0(r)$ qui diverge comme $1/r$ pour $r \rightarrow 0$. Ceci est illustré sur la figure 2.5. D'un point de vue pratique, on peut considérer que $r_c \simeq 0$, à condition de garder présent à l'esprit que la fonction obtenue n'est

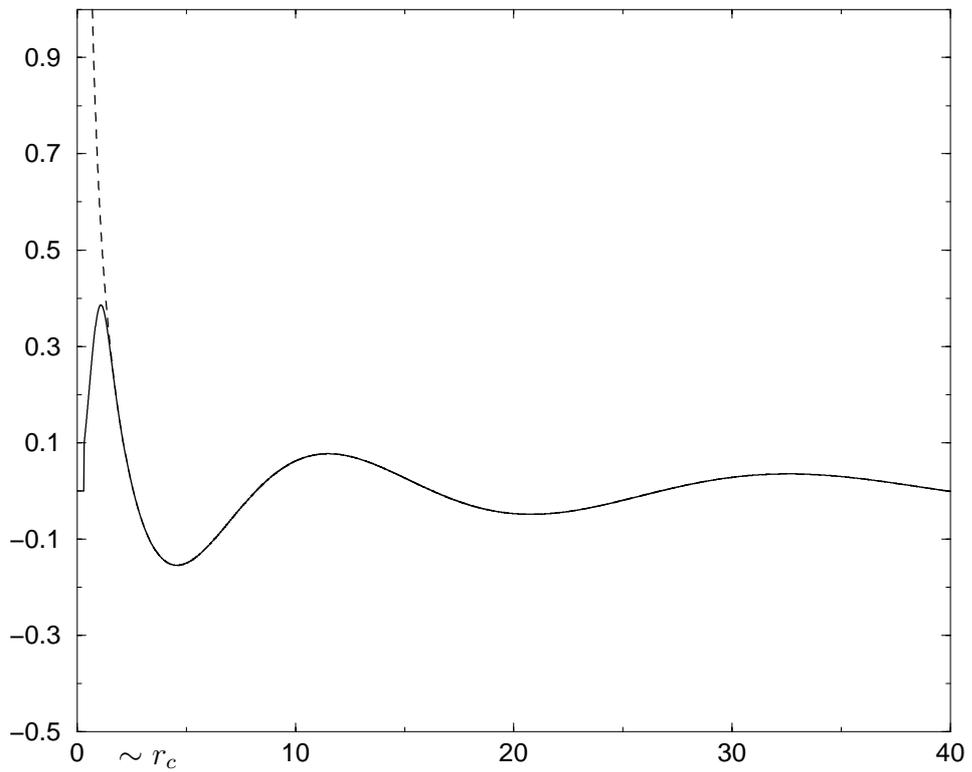


FIG. 2.5 – Allure typique de la fonction $\psi_0(r)$ (ligne tiretée) (équation (2.24)) et de la fonction d'onde réelle (ligne pleine). On voit que la divergence de $\psi_0(r)$ pour $r \rightarrow 0$ est artificielle, et que la vraie fonction d'onde est régulière pour $r \rightarrow 0$.

pas valable aux très petits r , et que fonction d'onde réelle ne diverge pas pour $r \rightarrow 0$.

Puisque les composantes $\psi_l(r)$ deviennent négligeables quand on s'approche de l'origine ($\psi_l(r) \sim s_l(r)/r \sim r^l$), on voit que l'effet du défaut quantique est d'imposer à la fonction d'onde totale $\psi(\mathbf{r})$ de l'électron de se comporter comme $\psi_0(r)$ près de $r = 0$.

Comparons maintenant ce système à celui où le cœur ionique est simplement celui de l'atome d'hydrogène (un proton), dans le même champ extérieur. Loin du cœur, les deux systèmes sont équivalents : l'électron voit un champ coulombien hydrogénoïde dû au cœur et le champ extérieur. La différence entre les deux systèmes se situe près du cœur. Dans le cas de l'hydrogène, la fonction d'onde près de 0 est simplement proportionnelle à $s_0(r)/r$, la solution régulière de l'équation de Schrödinger. Par contre, pour le cœur non-hydrogénoïde, la fonction d'onde près de 0 est une combinaison linéaire des fonctions $s_0(r)/r$ et $c_0(r)/r$ (respectivement solution régulière et irrégulière) dont les poids sont fixés par le défaut quantique δ . Il apparaît ainsi que le rôle du défaut quantique est uniquement d'imposer à la fonction d'onde un comportement donné près de l'origine, avec un rapport fixé entre une partie irrégulière ($c_0(r)/r \sim 1/r$) et une partie régulière ($s_0(r)/r \sim r^0$).

Cette comparaison montre que le rôle du défaut quantique est totalement similaire à celui d'un diffuseur ponctuel. Comme expliqué précédemment (voir chapitre 1), lorsqu'on rajoute un diffuseur ponctuel en un point \mathbf{r}_0 d'un système, on impose à la fonction d'onde du système un comportement donné près de \mathbf{r}_0 , avec un rapport fixé entre une fonction irrégulière pour $\mathbf{r} \rightarrow \mathbf{r}_0$ et une fonction régulière pour $\mathbf{r} \rightarrow \mathbf{r}_0$.

Cette similitude fournit une méthode de résolution du problème de l'atome non-hydrogénoïde (caractérisé par un défaut quantique $\delta \neq 0$ pour $l = 0$) en champ extérieur faible. Partant du système hydrogénoïde correspondant (celui où le cœur ionique est remplacé par un cœur hydrogénoïde, c'est-à-dire un proton), que l'on suppose connu, on ajoute un diffuseur ponctuel à l'origine (où se trouve le cœur). L'intensité du diffuseur sera choisie de manière à correspondre à la valeur du défaut quantique. En appliquant les techniques exposées dans le chapitre précédent, on obtient la solution du problème avec le diffuseur ponctuel, qui est aussi la solution du problème avec le défaut quantique non-nul. Notons que le fait que le potentiel coulombien $V(r)$ diverge pour $r \rightarrow 0$ rend le problème un peu plus délicat. La section suivante montre comment cette méthode de résolution est appliquée en pratique.

2.4.3 Méthode de résolution

La solution du problème pour l'atome d'hydrogène dans le champ extérieur étant supposée connue, on connaît la fonction de Green $G_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; E)$ de ce problème. D'après le chapitre 1, on sait que si l'on ajoute un diffuseur ponctuel d'intensité

$\theta \neq 0$ en 0, l'équation donnant les niveaux d'énergie est :

$$\lim_{\mathbf{r} \rightarrow 0} (c G_0(\mathbf{r}, 0; z)) = \lim_{\mathbf{r} \rightarrow 0} \frac{c}{1 - e^{i\theta}} (G_0(\mathbf{r}, 0; \mathcal{E}_0 i) - e^{i\theta} G_0(\mathbf{r}, 0; -\mathcal{E}_0 i)) \quad (2.26)$$

où \mathcal{E}_0 est une énergie arbitraire, que l'on choisit telle que $\mathcal{E}_0 \ll 1$, afin de se placer dans le domaine d'énergie où l'image physique expliquée au début de ce chapitre est valable. Comme expliqué précédemment, cette équation s'interprète de la manière suivante. Les solutions sont les énergies z telles que la fonction d'onde $G_0(\mathbf{r}, 0; z)$ ait le comportement requis par le diffuseur pour $\mathbf{r} \rightarrow 0$ (qui est donné par le membre de droite) de manière à être la solution du problème.

D'autre part, pour que le diffuseur ponctuel soit équivalent au défaut quantique, il faut que le comportement imposé par le diffuseur pour $\mathbf{r} \rightarrow 0$ soit identique au comportement imposé par le défaut quantique (ce comportement dépend de l'énergie z inconnue), ce qui s'écrit :

$$\lim_{\mathbf{r} \rightarrow 0} c (G_0(\mathbf{r}, 0; \mathcal{E}_0 i) - e^{i\theta} G_0(\mathbf{r}, 0; -\mathcal{E}_0 i)) = \lim_{\mathbf{r} \rightarrow 0} \left(\cos(\pi\delta) \frac{s_0(r; z)}{r} + \sin(\pi\delta) \frac{c_0(r; z)}{r} \right) \quad (2.27)$$

En combinant ces deux équations, on obtient :

$$\lim_{\mathbf{r} \rightarrow 0} G_0(\mathbf{r}, 0; z) = \lim_{\mathbf{r} \rightarrow 0} \frac{1}{c(1 - e^{i\theta})} \left(\cos(\pi\delta) \frac{s_0(r; z)}{r} + \sin(\pi\delta) \frac{c_0(r; z)}{r} \right) \quad (2.28)$$

Le facteur de proportionnalité $(c(1 - e^{i\theta}))^{-1}$ peut être déterminé en comparant le comportement divergent, pour $\mathbf{r} \rightarrow 0$, de $G_0(\mathbf{r}, 0; z)$ (comportement qui ne dépend pas du champ extérieur, et est donc celui de la fonction de Green hydrogénoïde sans champ), et celui de la fonction $c_0(r)/r$. Ceci donne

$$c(1 - e^{i\theta}) = (-1) \frac{4}{\sqrt{2}} \sin(\pi\delta) \quad (2.29)$$

et on obtient l'équation :

$$\lim_{\mathbf{r} \rightarrow 0} G_0(\mathbf{r}, 0; z) = \lim_{\mathbf{r} \rightarrow 0} (-1) \frac{\sqrt{2}}{4} \left(\frac{c_0(r; z)}{r} + \cotg(\pi\delta) \frac{s_0(r; z)}{r} \right) \quad (2.30)$$

On peut interpréter cette équation, sans faire référence à la notion de diffuseur ponctuel, de la manière suivante. La fonction de \mathbf{r} , $G_0(\mathbf{r}, 0; z)$, est une solution de l'équation de Schrödinger pour tout $\mathbf{r} \neq 0$ pour un électron soumis au potentiel hydrogénoïde et au champ extérieur. En trouvant les valeurs de z telles que cette fonction ait, de plus, le comportement près de 0 imposé par le défaut quantique, on obtient une solution du problème pour l'atome non-hydrogénoïde dans le champ extérieur.

L'avantage de prendre la fonction de Green du problème hydrogénoïde comme fonction d'onde est qu'elle contient toute l'information sur le champ extérieur, et

qu'elle fournit par construction une fonction d'onde ayant le bon comportement à l'infini. Notons que l'hypothèse essentielle pour l'application de cette méthode est la séparation de l'espace en deux régions aux propriétés distinctes. D'une part, près du noyau, une zone où l'effet du champ extérieur est négligeable, et où les défauts quantiques caractérisent totalement la fonction d'onde. D'autre part, loin du noyau, une région où l'électron voit celui-ci comme une charge ponctuelle, et où le problème est identique à celui d'un électron hydrogénoïde dans le champ extérieur.

Remarquons enfin que l'équation (2.29) ne permet pas à elle seule de déterminer la force θ du diffuseur utilisé pour reproduire le défaut quantique, car il y a également l'inconnue c . On obtient une deuxième équation en égalant les comportements $\sim r^0$ dans l'équation (2.27), ce qui permet en principe de déterminer θ . Toutefois, comme le terme en r^0 de $G_0(\mathbf{r}, 0; z)$ dépend en général du champ extérieur, l'expression de θ en fonction de δ dépend en général du champ extérieur.

2.4.4 Calcul pratique des valeurs propres

L'équation (2.30) a pour solutions les valeurs propres du problème de l'atome non-hydrogénoïde en champ extérieur faible, mais ne se prête pas telle quelle à un calcul de ces valeurs propres, car ses deux membres divergent à la limite $\mathbf{r} \rightarrow 0$. On peut obtenir une forme régularisée de l'équation (2.30) qui se prête à une résolution explicite, en appliquant des techniques similaires aux techniques de régularisation évoquées plus haut.

Dans le membre de droite de l'équation (2.30), on peut exprimer $c_0(r; z)/r$ en fonction de $\mathcal{G}_0(\mathbf{r}, 0; z)$, la fonction de Green pour l'hydrogène **sans champ extérieur**. On a :

$$\lim_{\mathbf{r} \rightarrow 0} \mathcal{G}_0(\mathbf{r}, 0; z) = \lim_{\mathbf{r} \rightarrow 0} \left(-\frac{\sqrt{2}}{4} \frac{c_0(r; z)}{r} \right) + \frac{1}{2} \cotg(\pi\nu) \quad (2.31)$$

avec $z = -1/\nu^2$ [37]. Dans les deux membres de cette équation, le coefficient de la divergence en $1/r$ est indépendant de l'énergie (aussi bien celui de \mathcal{G}_0 (cf. section 1.2) que celui de c_0). C'est à partir du terme $\sim r^0$ qu'apparaît la dépendance en énergie. La fonction $c_0(r; z)$ varie mollement avec z , alors que la fonction de Green $\mathcal{G}_0(\mathbf{r}, 0; z)$ présente un pôle en chaque valeur propre de l'hydrogène ($z = -1/n^2$), ce qui explique la présence du terme $\cotg(\pi\nu)$, qui présente les mêmes pôles. La relation (2.31) permet de substituer $c_0(r; z)/r$ dans l'équation (2.30), pour obtenir :

$$\lim_{\mathbf{r} \rightarrow 0} G_0(\mathbf{r}, 0; z) - \lim_{\mathbf{r} \rightarrow 0} \mathcal{G}_0(\mathbf{r}, 0; z) + \frac{1}{2} \cotg(\pi\nu) = \frac{-\sqrt{2}}{4} \cotg(\pi\delta) \lim_{\mathbf{r} \rightarrow 0} \frac{s_0(r; z)}{r} \quad (2.32)$$

On peut maintenant utiliser le développement spectral des fonctions de Green :

$$G_0(\mathbf{r}, 0; z) = \sum_n \frac{\phi_n(\mathbf{r})\phi_n^*(0)}{z - E_n} \quad (2.33)$$

$$\mathcal{G}_0(\mathbf{r}, 0; z) = \sum_n \frac{\psi_n(\mathbf{r})\psi_n^*(0)}{z - E_n^0} \quad (2.34)$$

où les E_n et les ϕ_n (respectivement E_n^0 et ψ_n) sont les valeurs propres et fonctions propres pour l'hydrogène dans le champ extérieur (resp. pour l'hydrogène seul). L'équation s'écrit alors :

$$\lim_{\mathbf{r} \rightarrow 0} \sum_n \frac{\phi_n(\mathbf{r})\phi_n^*(0)}{z - E_n} - \lim_{\mathbf{r} \rightarrow 0} \sum_n \frac{\psi_n(\mathbf{r})\psi_n^*(0)}{z - E_n^0} + \frac{1}{2} \cotg(\pi\nu) = \frac{-\sqrt{2}}{4} \cotg(\pi\delta) \lim_{\mathbf{r} \rightarrow 0} \frac{s_0(r; z)}{r} \quad (2.35)$$

Les deux sommes divergent à la limite $\mathbf{r} \rightarrow 0$. Mais comme le montre la section suivante, elles ont exactement la même divergence, et il est donc justifié de tronquer les deux sommes en passant à la limite $\mathbf{r} \rightarrow 0$. On obtient alors :

$$\sum_n' \frac{|\phi_n(0)|^2}{z - E_n} - \sum_n' \frac{|\psi_n(0)|^2}{z - E_n^0} + \frac{1}{2} \cotg(\pi\nu) = -\frac{\cotg(\pi\delta)}{2} \quad (2.36)$$

où le prime sur les sommes signifie qu'elles sont tronquées à une certaine énergie. Cette équation est du type "équation de Seba" : la fonction de Green, dont la divergence est régularisée, est égalée à une quantité qui dépend des propriétés du diffuseur (ici, le défaut quantique). Notons que le deuxième et le troisième terme du membre de gauche, qui régularisent la fonction de Green (premier terme), forment par compensation de leurs pôles une fonction qui varie mollement avec l'énergie z . Ceci assure que le membre de gauche de l'équation (2.36) est une fonction strictement décroissante de l'énergie z (à cause du premier terme), qui présente un pôle en chaque valeur propre E_n de l'hydrogène dans le champ extérieur. Les solutions de cette équation sont données par l'intersection de cette fonction et de la fonction constante $-1/2 \cotg(\pi\delta)$. Ceci est illustré sur la figure 2.6. On voit que lorsque $\delta \rightarrow 0$, cette constante augmente en valeur absolue, et les solutions se rapprochent des solutions pour l'hydrogène, que l'on retrouve exactement pour $\delta = 0$ (la constante est infinie, et les solutions sont les pôles de la fonction, c'est-à-dire les E_n).

2.4.5 Régularisation de l'équation : coupure des sommes

Nous allons voir dans cette section que l'on peut, en pratique, tronquer les deux sommes apparaissant dans l'équation (2.35), pour r petit. Ceci permet d'éviter les divergences que comportent ces deux sommes, et justifie la procédure de régularisation adoptée.

Considérons les fonctions de Green pour l'hydrogène dans le champ extérieur, et sans champ extérieur : $G_0(\mathbf{r}, 0; E)$ et $\mathcal{G}_0(\mathbf{r}, 0; E)$. On sait que pour $\mathbf{r} \rightarrow 0$, ces

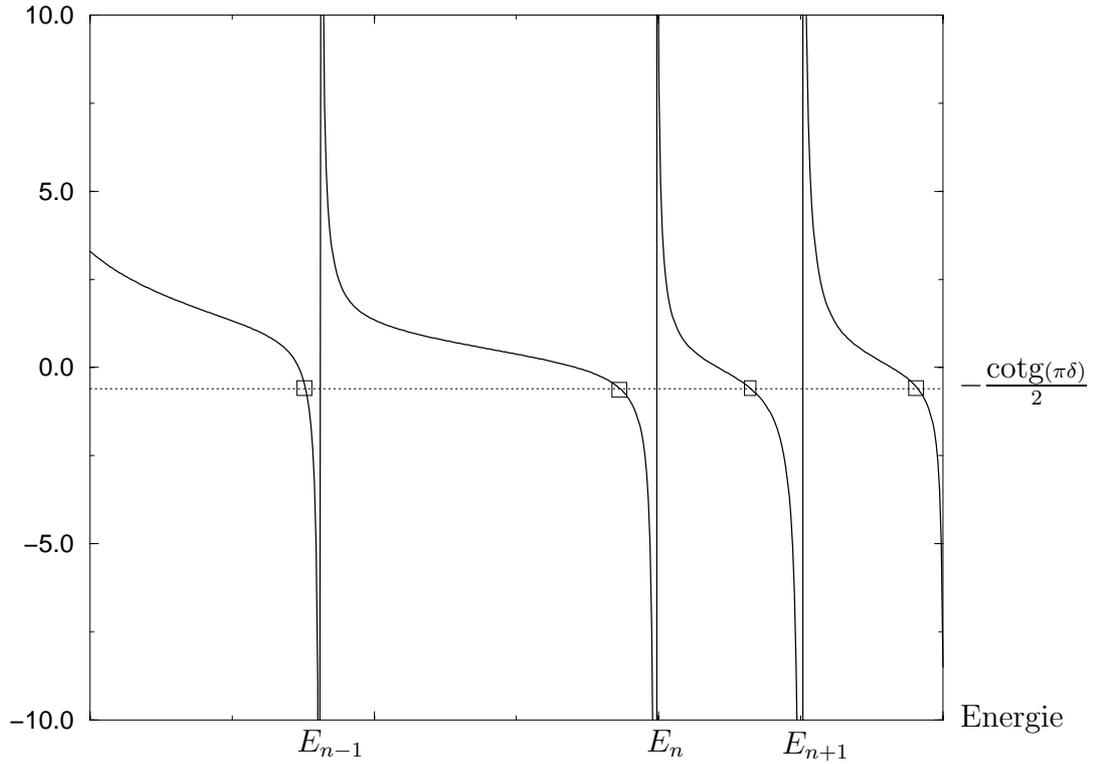


FIG. 2.6 – Représentation graphique de l'équation (2.36), en fonction de l'énergie E . Cette équation fournit les énergies propres d'un atome non-hydrogénoïde, caractérisé par un défaut quantique δ , dans un champ extérieur en fonction des énergies propres et des états propres de l'hydrogène dans le même champ extérieur. Le membre de gauche est en trait continu, et présente un pôle pour chaque valeur propre E_n de l'hydrogène dans le champ extérieur, et le membre de droite est en pointillé. Les solutions de l'équation sont indiquées par les carrés. On voit qu'elles alternent nécessairement avec les solutions pour l'hydrogène dans le champ extérieur (pôles du membre de gauche).

deux fonctions de \mathbf{r} ont le même comportement divergent ($\sim (1/r - 2\ln(r))$), qui est indépendant de l'énergie. En terme des représentations spectrales, ceci signifie que

$$\frac{\sum_n \phi_n(\mathbf{r})\phi_n^*(0)}{E - E_n} \quad \text{et} \quad \frac{\sum_n \psi_n(\mathbf{r})\psi_n^*(0)}{E - E_n^0} \quad (2.37)$$

ont le même comportement divergent, indépendant de l'énergie, pour $\mathbf{r} \rightarrow 0$. Dans chacune de ces sommes, on peut séparer une partie qui dépend fortement de l'énergie E , où l'on somme les termes avec E_n (ou E_n^0) proche de E , et une partie qui, localement, dépend peu de l'énergie E , où l'on somme les termes avec E_n loin de E . L'égalité entre les comportements divergents, indépendants de l'énergie, s'exprime donc par :

$$\lim_{\mathbf{r} \rightarrow 0} \sum_{n|E_n > E_+} \frac{\phi_n(\mathbf{r})\phi_n^*(0)}{E - E_n} \simeq \lim_{\mathbf{r} \rightarrow 0} \sum_{n|E_n^0 > E_+} \frac{\psi_n(\mathbf{r})\psi_n^*(0)}{E - E_n^0} \quad (2.38)$$

pour un E_+ suffisamment grand (c'est-à-dire suffisamment loin de E), E_+ étant une fonction de E . La partie de la somme avec les termes $E_n < E_+$, qui contient un nombre fini de termes, fournit la partie non-divergente de $G_0(0, 0; E)$, qui dépend de l'énergie E .

Pratiquement, cela signifie que l'on peut tronquer les deux sommes de l'équation (2.36) à une certaine énergie E_+ lorsque l'on cherche les solutions autour de l'énergie E . On peut également enlever dans les deux sommes les termes concernant les énergies E_n ou E_n^0 inférieures à une énergie E_- qui est suffisamment loin de E ($E_- < E$). Une justification de la relation (2.38) est donnée dans l'annexe A, ainsi qu'un ordre de grandeur pour E_+ .

2.4.6 Précision des résultats obtenus

En pratique, la méthode marche extrêmement bien. Pour en connaître la précision, j'ai utilisé les solutions du problème obtenues par la méthode de la matrice R (cette méthode est discutée dans la section 2.8.2). Il apparaît que l'on obtient les solutions avec une très bonne précision (le millième d'espacement moyen, ou mieux) en faisant intervenir un nombre limité de niveaux hydrogéoïdes dans la somme de l'équation (2.36).

Pour préciser ceci, voici les valeurs pour le cas d'un atome ayant un défaut quantique $\delta_0 = 0,5$, dans un champ magnétique $\gamma = 2,0 \cdot 10^{-5}$ (ua). 85 niveaux (pour $m = 0$ et de parité paire) ont été calculés entre $E_{min} = -4,0 \cdot 10^{-4}$ et $E_{max} = -2,8 \cdot 10^{-4}$ (unités Rydberg), en sommant sur les 480 niveaux E_n de l'hydrogène dans le champ (pour $m = 0$ et de parité paire) compris entre les bornes $E_- = -6,495 \cdot 10^{-3}$ et $E_+ = -8,515 \cdot 10^{-5}$. Notons que les niveaux calculés correspondent à un cas expérimentalement réalisable de champ fort : un champ magnétique de 4,7 T, pour des niveaux excités autour de $\nu = 50$ (ce qui donne une énergie réduite $\epsilon \simeq -0,2$). La figure 2.7 montre l'équation (2.36) dans ce cas,

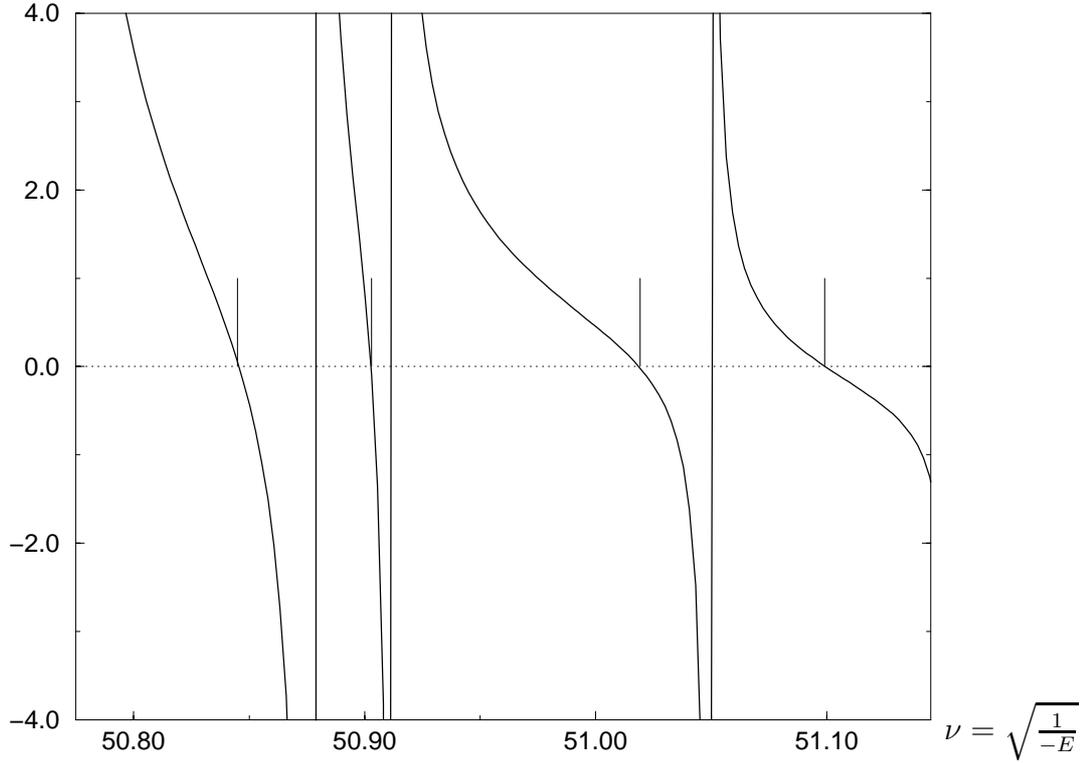


FIG. 2.7 – Représentation graphique de l'équation (2.36), pour un atome avec $\delta_0 = 0.5$, dans un champ magnétique $\gamma = 210^{-5}$ (ua), pour les niveaux avec $m = 0$ et de parité paire. Les solutions, qui donnent les niveaux d'énergie de l'atome non-hydrogénoïde ($\delta = 0,5$) dans le champ magnétique, sont obtenues aux zéros de la fonction en trait plein, alors que les barres verticales indiquent la position des solutions obtenues par la méthode de la matrice R .

près de $\nu = 51$. Les solutions correspondent aux zéros de la fonction dessinée en trait plein (car $\cotg(\pi\delta) = \cotg(\pi/2) = 0$), et les barres verticales représentent les solutions obtenues par la méthode de la matrice R . On voit que l'accord entre les deux méthodes est très bon. Afin de quantifier la précision obtenue, la figure 2.8 montre l'erreur relative Δ des niveaux calculés. Δ est défini par :

$$\Delta_i = \frac{(z_i)_{\text{calc}} - (z_i)_{\text{rmat}}}{\langle z_{j+1} - z_j \rangle_j} \quad (2.39)$$

où $(z_i)_{\text{calc}}$ est la valeur de z_i (la $i^{\text{ème}}$ solution) obtenue par notre méthode, $(z_i)_{\text{rmat}}$ la valeur obtenue par la méthode de la matrice R [7], et $\langle z_{j+1} - z_j \rangle_j$ est la valeur de l'espacement moyen pour la plage de solutions que l'on considère. La figure 2.8 montre Δ_i pour les 85 niveaux calculés. Il apparaît que $|\Delta_i|$ est toujours inférieur à $2,5 \cdot 10^{-3}$, avec une valeur moyenne pour $|\Delta_i|$ de $3,3 \cdot 10^{-4}$, et que la variance des Δ_i vaut $\sigma = 4 \cdot 10^{-4}$. On voit donc que l'erreur faite sur les niveaux est très petite, de moins d'un millièmme d'espacement moyen en général. En modifiant

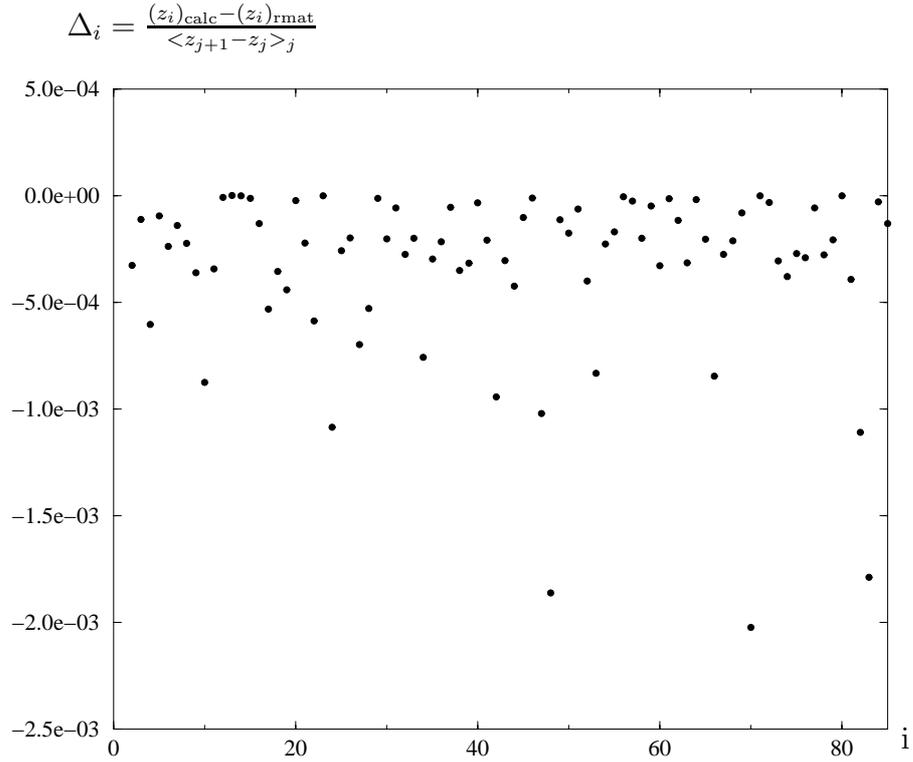


FIG. 2.8 – Erreurs relatives des niveaux calculés par rapport aux solutions obtenues par la méthode de la matrice R , pour un atome ayant un défaut quantique $\delta_0 = 0,5$, dans un champ magnétique $\gamma = 2,0 \cdot 10^{-5}$ (ua), pour les niveaux avec $m = 0$ et de parité paire. L'erreur relative est définie comme la différence par rapport à la solution obtenue par la méthode de la matrice R , divisée par l'espacement moyen entre les solutions. Ces solutions sont comprises entre $E_{\min} = -4,0 \cdot 10^{-4}$ et $E_{\max} = -2,8 \cdot 10^{-4}$, et on a utilisé les niveaux hydrogénoïdes compris dans l'intervalle d'énergie $[-6,495 \cdot 10^{-3}, -8,515 \cdot 10^{-5}]$.

les bornes utilisées pour tronquer la somme, on modifie bien sûr les valeurs de Δ_i , mais l'ordre de grandeur reste le même tant que les bornes ne varient pas trop. Ainsi, par exemple, le fait que, dans la figure 2.8, tous les Δ_i sont négatifs est spécifique aux bornes utilisées.

2.4.7 Calcul des états propres

La méthode de résolution présentée ici fournit également l'état propre associé à une valeur propre donnée. Par construction, l'état propre $f_i(\mathbf{r})$ associé à la valeur propre z_i (solution de (2.36)) est proportionnel à la fonction de Green pour l'hydrogène dans le champ prise à l'énergie z_i :

$$f_i(\mathbf{r}) \sim G_0(\mathbf{r}, 0; z_i) \quad (2.40)$$

Cette expression comporte une difficulté : $G_0(\mathbf{r}, 0; z_i)$ diverge pour $\mathbf{r} \rightarrow 0$. On sait toutefois que cette divergence n'est pas physique, et que la fonction d'onde calculée ainsi n'est valable que pour $r > r_c$, où r_c est le rayon du cœur ionique. La fonction d'onde réelle pour $r \leq r_c$ n'est pas donnée par $G_0(\mathbf{r}, 0; z_i)$ mais par une fonction régulière, qui tend vers 0 pour $\mathbf{r} \rightarrow 0$. On peut s'affranchir de cette difficulté à partir du développement spectral de la fonction de Green :

$$G_0(\mathbf{r}, 0; z_i) = \sum_n \frac{\phi_n(\mathbf{r})\phi_n^*(0)}{z_i - E_n} \quad (2.41)$$

Pour \mathbf{r} non-nul, la somme sur n est convergente, et on peut donc couper la somme à un n_{\max} donné sans modifier le résultat. Ceci n'est plus vrai pour $\mathbf{r} \rightarrow 0$, puisque la somme diverge en $r = 0$. Si l'on limite la somme ci-dessus à $n \leq n_{\max}$, on obtient donc une fonction d'onde qui correspond à la solution pour \mathbf{r} assez grand, et qui est régulière pour $\mathbf{r} \rightarrow 0$. En choisissant n_{\max} suffisamment grand, on obtient donc la fonction d'onde correspondant à la solution pour $r > r_c$, tout en ayant une fonction régulière pour $\mathbf{r} \rightarrow 0$. On a donc :

$$f_i(\mathbf{r}) = \alpha_i \sum_{n < n_{\max}} \frac{\phi_n(\mathbf{r})\phi_n^*(0)}{z_i - E_n} \quad (2.42)$$

Le coefficient α_i assure la normalisation de $f_i(\mathbf{r})$, et est donné par :

$$(\alpha_i)^{-2} = \int d\mathbf{r} \sum_{n < n_{\max}} \sum_{n' < n_{\max}} \frac{\phi_n(\mathbf{r})\phi_n^*(0)}{z_i - E_n} \frac{\phi_{n'}^*(\mathbf{r})\phi_{n'}(0)}{z_i - E_{n'}} \quad (2.43)$$

En utilisant l'orthogonalité des fonctions $\phi_n(\mathbf{r})$, on obtient :

$$(\alpha_i)^{-2} = \sum_{n < n_{\max}} \frac{|\phi_n(0)|^2}{(z_i - E_n)^2} \quad (2.44)$$

Remarquons que cette expression est simplement la valeur absolue de la pente en z_i de la fonction apparaissant dans le membre de gauche de l'équation (2.36) (et représentée en trait plein sur la figure 2.6). En effet, dans l'équation (2.36), le deuxième et le troisième terme du membre de gauche forment une fonction qui varie lentement en z à l'échelle de l'intervalle entre les E_n . La dérivée du membre de gauche de (2.36) est donc simplement donnée par la dérivée de $\sum_n |\phi_n(0)|^2 / (z - E_n)$, qui en valeur absolue coïncide avec l'expression ci-dessus.

Le paramètre α_i (ou encore la pente de la fonction) permet également de déterminer une propriété importante de l'état propre $f_i(\mathbf{r})$. En effet, d'après l'équation (2.30), on a pour r suffisamment petit (mais $r > r_c$) :

$$f_i(\mathbf{r}) \simeq \alpha_i \left(-\frac{\sqrt{2}}{4} \right) \left(\frac{c_0(r; z_i)}{r} + \cotg(\pi\delta) \frac{s_0(r; z_i)}{r} \right) \quad (2.45)$$

Ceci n'est autre que le développement de $f_i(\mathbf{r})$ sur les harmoniques sphériques $Y_l^m(\theta, \phi)$, où seul le terme pour $l = 0$ est important car les autres tendent vers 0 pour $r \rightarrow 0$. Pour un \mathbf{r} arbitraire, les termes pour $l \geq 1$ seront également importants dans le développement de $f_i(\mathbf{r})$, mais on voit que la connaissance de α_i fournit le poids sur la composante $l = 0$.

2.5 Généralisation de la méthode au cas de plusieurs défauts quantiques non-nuls

2.5.1 Introduction

La méthode exposée ci-dessus se généralise sans difficulté au cas plus général d'un atome ayant plusieurs défauts quantiques non-nuls. Ce cas concerne la plupart des atomes alcalins (par exemple Na, K, Rb, Cs). Le principe est similaire à celui exposé précédemment : on construit une fonction d'onde à partir de la fonction de Green pour l'hydrogène dans le champ extérieur, et on cherche les valeurs de l'énergie telles que cette fonction ait le comportement à l'origine imposé par les défauts quantiques. La résolution ne fait plus appel explicitement à la notion de diffuseur ponctuel, mais peut toujours être interprétée au moyen de celle-ci. Connaissant les solutions pour l'hydrogène dans le champ extérieur, on obtient celles pour l'atome non-hydrogénoïde en plaçant maintenant une distribution de diffuseurs près de l'origine, et non plus simplement un diffuseur en $\mathbf{r} = 0$. En 2.5.2, on explique comment l'équation est obtenue dans le cas de plusieurs défauts quantiques non-nuls, et en 2.5.3 on montre comment on obtient une équation utilisable en pratique.

2.5.2 Obtention de l'équation

Nous allons construire, via la fonction de Green pour l'hydrogène dans le champ extérieur, une fonction d'onde. Le point de départ est $G_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0; z)$, où \mathbf{r}_0 est un point quelconque sur la sphère de rayon r_0 (r_0 est un rayon petit mais non-nul, au maximum de quelques unités atomiques). $G_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0; z)$ est donnée par :

$$(H_0(\mathbf{r}) - z) G_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0; z) = -\delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_0) \quad (2.46)$$

Pour tout \mathbf{r} tel que $r > r_0$, $G_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0; z)$ fournit une solution de l'équation de Schrödinger pour le problème du potentiel hydrogénoïde avec le champ extérieur.

Nous allons considérer la fonction $f(\mathbf{r}, r_0; z)$, combinaison linéaire arbitraire de fonctions $G_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0; z)$ pour tous les \mathbf{r}_0 sur la sphère de rayon r_0 :

$$f(\mathbf{r}, r_0; z) = \int d\Omega_0 \left(\sum_{l'm'} a_{l'm'} Y_l^{m'}(\theta_0, \phi_0) G_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0; z) \right) \quad (2.47)$$

L'intégrale est prise sur les angles θ_0, ϕ_0 qui repèrent le point \mathbf{r}_0 en coordonnées sphériques. La somme sur l' va de 0 à l'infini, et pour chaque l' celle sur m' va de $-l'$ à l' (l' et m' entiers, cf. l et m). Les coefficients $a_{l'm'}$ sont indéterminés. Interprété en terme de diffuseur ponctuel, $f(\mathbf{r}, r_0; z)$ apparaît comme la fonction d'onde du problème du potentiel hydrogénoïde avec le champ extérieur et une distribution de diffuseurs sur la sphère de rayon r_0 , dont le développement multipolaire est donné par les $a_{l'm'}$.

On obtient le développement spectral de $f(\mathbf{r}, r_0; z)$ à partir de celui de $G_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0; z)$. On a :

$$\begin{aligned} G_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0; z) &= \sum_n \frac{\phi_n(\mathbf{r})\phi_n^*(\mathbf{r}_0)}{z - E_n} \\ &= \sum_{lm} \sum_{l_0 m_0} Y_l^m(\theta, \phi) Y_{l_0}^{m_0}(\theta_0, \phi_0) \sum_n \frac{\phi_{nlm}(r)\phi_{nl_0 m_0}^*(r_0)}{z - E_n} \end{aligned} \quad (2.48)$$

où l'on a développé les fonctions propres $\phi_n(\mathbf{r})$ sur la base des harmoniques sphériques : $\phi_n(\mathbf{r}) = \sum_{lm} Y_l^m(\theta, \phi)\phi_{nlm}(r)$. On introduit la notation :

$$g_{mm'}^{ll'}(r, r_0; z) = \sum_n \frac{\phi_{nlm}(r)\phi_{nl'm'}^*(r_0)}{z - E_n} \quad (2.49)$$

A partir de la définition de $f(\mathbf{r}, r_0; z)$, on obtient :

$$\begin{aligned} f(\mathbf{r}, r_0; z) &= \sum_{lm} Y_l^m(\theta, \phi) \sum_{l'm'} a_{l'm'} \sum_n \frac{\phi_{nlm}(r)\phi_{nl'm'}^*(r_0)}{z - E_n} \\ &= \sum_{lm} Y_l^m(\theta, \phi) \sum_{l'm'} a_{l'm'} g_{mm'}^{ll'}(r, r_0; z) \end{aligned} \quad (2.50)$$

L'équation donnant les niveaux d'énergie s'obtient en imposant à $f(\mathbf{r}, r_0; z)$ d'avoir le bon comportement près de l'origine. On considère un atome non-hydrogénoïde caractérisé par un ensemble de défauts quantiques $\{\delta_l, l = 0 \dots \infty\}$. Comme expliqué précédemment, les δ_l ne sont non-nuls que pour les petits l (jusque 3 ou 4). Le comportement que l'on impose près de l'origine ($r > r_0$, r proche de r_0) est celui de $\Psi(\mathbf{r}; z)$:

$$\Psi(\mathbf{r}; z) = \sum_{lm} Y_l^m(\theta, \phi) b_{lm} \left[\sin(\pi\delta_l) \frac{c_l(r; z)}{r} + \cos(\pi\delta_l) \frac{s_l(r; z)}{r} \right] \quad (2.51)$$

avec des coefficients b_{lm} indéterminés. L'équation s'obtient en imposant l'identité de $f(\mathbf{r}, r_0; z)$ et de $\psi(\mathbf{r}; z)$ pour tous les \mathbf{r} petits au-delà de la sphère de rayon r_0 . On obtient ainsi une équation pour chaque composante (l, m) , qui doit être vraie pour r proche de r_0 :

$$\sum_{l'm'} a_{l'm'} g_{mm'}^{ll'}(r, r_0; z) = b_{lm} \left[\sin(\pi\delta_l) \frac{c_l(r; z)}{r} + \cos(\pi\delta_l) \frac{s_l(r; z)}{r} \right] \quad (2.52)$$

En fixant un $r \geq r_0$, on obtient une équation pour chaque composante (l, m) , alors que l'on a deux ensembles d'inconnues : les a_{lm} et les b_{lm} . A priori, la deuxième équation s'obtient en imposant l'égalité entre les dérivées au même point r . On peut toutefois obtenir simplement une relation entre les a_{lm} et les b_{lm} en examinant le comportement divergent des deux membres de l'équation (2.52). Pour r petit, $c_l(r; z)/r$ se comporte proportionnellement à $1/r^{l+1}$. La fonction $g_{mm}^{ll}(r, r_0; z)$ a, pour $r \geq r_0$, le même comportement, et on peut montrer que ce comportement est indépendant du champ extérieur (puisque, pour $r \geq r_0$, $G_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0; z)$ est solution de l'équation de Schrödinger à l'énergie z pour l'atome d'hydrogène en champ extérieur, qui pour r petit se réduit à l'équation pour l'hydrogène sans champ). Il peut donc être simplement calculé à partir de la fonction de Green pour l'hydrogène sans champ extérieur. Ainsi, pour r_0 petit², on obtient une relation entre a_{lm} et b_{lm} en imposant le même comportement divergent (c'est-à-dire le même coefficient pour le terme en $1/r^{l+1}$) aux deux membres de l'équation (2.52). Ceci fournit :

$$b_{lm} \sin(\pi\delta_l) = (-\pi) a_{lm} \frac{s_l(r_0; z)}{r_0} \quad (2.53)$$

L'équation pour la composante (l, m) , pour $r \geq r_0$ fixé, s'écrit donc :

$$\sum_{l'm'} \left(g_{mm'}^{ll'}(r, r_0; z) + \delta_{ll'} \delta_{mm'} \pi \frac{s_l(r_0; z)}{r_0} \left[\frac{c_l(r; z)}{r} + \cotg(\pi\delta_l) \frac{s_l(r; z)}{r} \right] \right) a_{l'm'} = 0 \quad (2.54)$$

Ceci constitue un système homogène d'équations pour les inconnues $a_{l'm'}$. On obtient une solution non-nulle (et donc une fonction d'onde $f(\mathbf{r}, r_0; z)$) en annulant

²et on peut faire formellement $r_0 \rightarrow 0$

le déterminant de la matrice agissant sur les $a_{l'm'}$. C'est cette condition qui fournit les énergies z qui sont les solutions du problème :

$$\det \left(g_{mm'}^{ll'}(r, r_0; z) + \delta_{ll'} \delta_{mm'} \pi \frac{s_l(r_0; z)}{r_0} \left[\frac{c_l(r; z)}{r} + \cotg(\pi \delta_l) \frac{s_l(r; z)}{r} \right] \right) = 0 \quad (2.55)$$

Cette équation est la généralisation de l'équation (2.30). Remarquons que l'on a écrit ici $\cotg(\pi \delta_l)$, qui diverge pour $\delta_l = 0$ (ce qui est nécessairement le cas pour $l > 4$). Ce terme divergent ne pose pas de problème, et permet au contraire de réduire la taille de la matrice apparaissant dans l'équation (2.55). En effet, à partir de l'équation (2.53), on voit que $a_{lm} = 0$ pour tout l tel que $\delta_l = 0$. Le système d'équations (2.54) se limite dès lors aux $a_{l'm'}$ non-nuls, c'est-à-dire aux $a_{l'm'}$ avec $\delta_{l'} \neq 0$. Ceci entraîne que la taille du déterminant de l'équation (2.55) est limitée par le nombre de défauts quantiques non-nuls. Dans les cas traités dans la suite, nous considérerons uniquement un seul champ extérieur (électrique ou magnétique) uniforme; la symétrie cylindrique du problème permet alors de se limiter à un seul m à la fois, et d'obtenir une matrice dont la taille est exactement le nombre de défauts quantiques non-nuls (au plus, 5x5).

Notons enfin que s'il n'y a qu'un seul défaut quantique non-nul, l'équation (2.55) se réduit simplement à l'équation (2.30) en prenant les limites $r_0 \rightarrow 0$ et $r \rightarrow 0$.

2.5.3 Calcul pratique des valeurs propres

Tout comme dans le cas d'un seul défaut quantique pour $l = 0$ (équation (2.30)), il convient de modifier l'équation (2.55) afin d'obtenir une équation se prêtant à un calcul pratique des solutions. Ceci permettra de tronquer la somme infinie apparaissant dans $g_{mm'}^{ll'}(r, r_0; z)$. Le principe de modification de l'équation est le même que précédemment : on peut exprimer $c_l(r; z)/r$ en termes de la fonction équivalente à $g_{mm}^{ll}(r, r_0; z)$ pour l'hydrogène sans champ extérieur, que l'on notera $h^l(r, r_0; E)$ (elle est indépendante de m , et diagonale en l). On a précisément :

$$\pi \frac{s_l(r_0; z)}{r_0} \frac{c_l(r; z)}{r} = -h^l(r, r_0; z) + \cotg(\pi \nu) \pi \frac{s_l(r_0; z)}{r_0} \frac{s_l(r; z)}{r} \quad (2.56)$$

Cette relation (qui est la généralisation de l'équation (2.31)) nous permet de substituer le terme $\pi(s_l(r_0; z)/r_0)(c_l(r; z)/r)$ apparaissant dans l'équation (2.55), pour obtenir :

$$\det \left[g_{mm'}^{ll'}(r, r_0; z) - \delta_{ll'} \delta_{mm'} \left(h^l(r, r_0; z) - \pi \frac{s_l(r_0; z)}{r_0} \frac{s_l(r; z)}{r} \cotg(\pi \nu) \right) + \delta_{ll'} \delta_{mm'} \pi \frac{s_l(r_0; z)}{r_0} \frac{s_l(r; z)}{r} \cotg(\pi \delta_l) \right] = 0 \quad (2.57)$$

Enfin, en utilisant la définition de $g_{mm'}^{ll'}(r, r_0; z)$ (équation (2.49)) (et l'expression équivalente pour $h^l(r, r_0; z)$), on obtient :

$$\det \left[\sum_n \frac{\phi_{nlm}(r)\phi_{nl'm'}^*(r_0)}{z - E_n} - \delta_{ll'}\delta_{mm'} \left(\sum_n \frac{\psi_{nlm}(r)\psi_{nlm}^*(r_0)}{z - E_n^0} - \pi \frac{s_l(r_0; z)}{r_0} \frac{s_l(r; z)}{r} \cotg(\pi\nu) \right) + \delta_{ll'}\delta_{mm'}\pi \frac{s_l(r_0; z)}{r_0} \frac{s_l(r; z)}{r} \cotg(\pi\delta_l) \right] = 0 \quad (2.58)$$

Cette équation est une équation de type Seba généralisée : elle fait intervenir un déterminant du même type que celui de l'équation (1.138) (voir aussi (1.139) et (1.141)) qui concerne le calcul des valeurs propres d'un système avec plusieurs diffuseurs ponctuels. Comme dans l'équation (2.36), le deuxième et le troisième terme ont des pôles qui se compensent et ces deux termes forment donc une fonction de l'énergie z qui varie mollement. En utilisant le même argument que précédemment, il apparaît que les deux sommes de l'équation (2.58) se compensent mutuellement pour les termes E_n, E_n^0 au-delà d'une certaine énergie (voir équation (2.38)). Ceci permet en pratique de résoudre l'équation en ne calculant qu'un nombre fini de termes de la première somme, et donc en ne connaissant qu'un nombre fini de valeurs propres et fonctions propres pour l'hydrogène dans le champ extérieur.

Notons que dans l'équation (2.58) apparaissent encore les rayons r et r_0 utilisés dans la méthode, alors que le résultat n'en dépend pas. En pratique, pour faire le calcul, on passe à la limite r et $r_0 \rightarrow 0$. Toutes les fonctions de r ou r_0 apparaissant dans l'équation sont en effet proportionnelles aux fonctions régulières $s_l(r; z)/r$ ou $s_l(r_0; z)/r_0$: $\phi_{nlm}(r)$ est la fonction radiale pour le problème de l'atome d'hydrogène en champ extérieur, et pour $r \rightarrow 0$ elle est proportionnelle à $s_l(r)/r$; $\psi_{nlm}(r)$ est la fonction radiale pour l'hydrogène sans champ, et elle est pour tout r proportionnelle à $s_l(r)/r$. En passant aux limites $r \rightarrow 0$ et $r_0 \rightarrow 0$, on utilise :

$$s_l(r; z) = \alpha_l(z) r^{l+1} \quad r \rightarrow 0 \quad (2.59)$$

où $\alpha_l(z)$ est donné par [37]

$$\alpha_l(z) = \frac{2^{l+1}}{(2l+1)!} \sqrt{\frac{(\nu-l)(\nu-l+1)\dots(\nu+l)}{2\nu^{2l+1}}} \quad (2.60)$$

On peut alors factoriser les puissances r_0^l et r^l dans le déterminant de l'équation (2.58) et faire apparaître uniquement les coefficients $\alpha_l(z)$. Les rayons r et r_0 ont alors disparu, comme il se doit.

2.6 Adaptation de la méthode au calcul des solutions à énergie réduite fixée

2.6.1 Introduction

Cette section explique comment la méthode exposée dans les sections précédentes peut s'adapter pour résoudre le problème à énergie réduite fixée. Le hamiltonien classique pour un atome d'hydrogène en champ magnétique ou électrique possède une propriété de *scaling*, qui implique que la structure des trajectoires de l'électron ne dépend pas séparément de la valeur du champ et de l'énergie, mais uniquement d'une combinaison des deux que l'on nomme énergie réduite. Quantiquement, pour l'hydrogène dans le champ, il est possible de calculer les valeurs propres à énergie réduite fixée, plutôt qu'à champ fixé. On peut ainsi obtenir les états plus ou moins excités d'un système quantique dont l'équivalent classique est fixé, ce qui permet une meilleure comparaison entre le système classique et son équivalent quantique.

Cette section est organisée comme suit. En 2.6.2, on détaille la propriété de *scaling* du hamiltonien, et on introduit l'équation du problème hydrogénoïde à énergie réduite fixée. En 2.6.3 on montre comment notre méthode de résolution s'adapte au problème à énergie réduite fixée. 2.6.4 montre que l'on peut obtenir le développement de la fonction de Green hydrogénoïde sur les solutions du problème à énergie réduite fixée plutôt qu'à champ fixé. Ceci permet alors d'obtenir en 2.6.5 une équation régularisée se prêtant à un calcul pratique des solutions. Dans toute cette section, nous utilisons les unités atomiques.

2.6.2 Scaling du hamiltonien

Le hamiltonien pour un électron dans un potentiel hydrogénoïde et un champ électrique ou magnétique extérieur possède une propriété de *scaling* [7]. Prenons par exemple le cas d'un champ magnétique. Le hamiltonien s'écrit, en unités atomiques (γ est l'intensité du champ) :

$$H_0 = \frac{p^2}{2} - \frac{1}{r} + \gamma \frac{1}{2} L_z + \gamma^2 \frac{1}{8} r^2 \sin^2 \theta \quad (2.61)$$

Par simplicité, nous oublierons le terme $(1/2)\gamma L_z$ (ce qui revient à prendre $m = 0$). L'équation de Schrödinger est alors :

$$\left(-\frac{\Delta}{2} - \frac{1}{r} + \gamma^2 \frac{r^2 \sin^2 \theta}{8} - E \right) \psi(\mathbf{r}) = 0 \quad (2.62)$$

En passant à la variable réduite $\tilde{\mathbf{r}} = \gamma^{2/3} \mathbf{r}$, et en posant $\phi(\tilde{\mathbf{r}}) = \psi(\tilde{\mathbf{r}} \gamma^{2/3})$, l'équation devient :

$$\left(-\gamma^{2/3} \frac{\tilde{\Delta}}{2} - \frac{1}{\tilde{r}} + \tilde{r}^2 \frac{\sin^2 \theta}{8} - E \gamma^{-2/3} \right) \phi(\tilde{\mathbf{r}}) = 0 \quad (2.63)$$

où l'on retrouve le même potentiel que précédemment, mais avec un champ de valeur égale à 1. La résolution de l'équation de Schrödinger usuelle consiste à trouver les solutions E_i pour une valeur fixée du champ γ . Graphiquement, cela signifie prendre dans le plan (γ, E) l'intersection entre la droite $\gamma = \text{constante}$ et les courbes $E_i(\gamma)$ qui décrivent les niveaux d'énergie en fonction du champ (voir figure 2.9). A partir de l'équation (2.63), on voit qu'il est également possible de fixer l'énergie réduite ϵ , avec

$$\epsilon = E \gamma^{-2/3} \quad (2.64)$$

et de calculer les solutions le long de cette courbe (voir figure 2.9). Dans ce cas, les solutions sont obtenues en résolvant l'équation aux valeurs propres généralisée :

$$\left(-\gamma_i^{2/3} \frac{\tilde{\Delta}}{2} - \frac{1}{\tilde{r}} + \frac{\tilde{r}^2 \sin^2 \theta}{8} - \epsilon \right) \Phi_i(\tilde{\mathbf{r}}) = 0 \quad (2.65)$$

où l'énergie réduite ϵ a une valeur fixée, $\gamma_i^{2/3}$ est une valeur propre généralisée, et $\Phi_i(\tilde{\mathbf{r}})$ la fonction propre associée.

Résoudre l'équation (2.65) revient à trouver une valeur du champ γ_i telle que l'équation de Schrödinger (2.62) admette une valeur propre $E_i = \epsilon \gamma_i^{2/3}$ dans le champ d'intensité γ_i . Si $\Phi_i(\tilde{\mathbf{r}})$ est la fonction propre (non normalisée) associée à γ_i , la fonction propre de l'équation (2.62) associée à E_i est simplement $\psi_i(\mathbf{r}) \sim \Phi_i(\gamma_i^{2/3} \mathbf{r})$.

Le système classique correspondant est décrit par le même hamiltonien. On peut donc effectuer un scaling similaire sur le système classique, en posant $\tilde{\mathbf{r}} = \gamma^{2/3} \mathbf{r}$ et $\tilde{\mathbf{p}} = \gamma^{-1/3} \mathbf{p}$. La hamiltonien classique vaut alors :

$$H_0 = \gamma^{2/3} \tilde{H}_0 = \gamma^{2/3} \left(\frac{\tilde{\mathbf{p}}^2}{2} - \frac{1}{\tilde{r}} + \frac{1}{8} \tilde{r}^2 \sin^2 \theta \right) \quad (2.66)$$

Cela entraîne que, classiquement, les solutions ne dépendent pas séparément de l'énergie E et de la valeur du champ γ , mais uniquement de l'énergie réduite $\epsilon = E \gamma^{-2/3}$. Ceci signifie simplement que la dynamique pour un électron très excité dans un champ très faible est la même que celle pour un électron moins excité dans un champ plus intense (à un facteur d'échelle global près). Quantiquement, la valeur de \hbar introduit une échelle supplémentaire, qui entraîne que les différentes solutions pour un ϵ donné ne sont pas identiques. A partir de l'équation (2.65), il apparaît que $\gamma^{1/3}$ joue le rôle d'un \hbar effectif (en interprétant le premier terme comme $-\hbar^2 \Delta / 2$). Une solution $(\gamma_i, \Phi_i(\mathbf{x}))$ fournit donc une réalisation quantique pour un \hbar effectif donné du système classique fixé par ϵ . Ceci montre l'intérêt, dans une approche semi-classique, d'étudier les solutions du problème à énergie réduite fixée : toutes ces solutions correspondent à la même dynamique classique, qui ne dépend que de $\epsilon = E \gamma^{-2/3}$. Ceci nous permet d'effectuer un passage rigoureux à la limite semi-classique : les solutions pour $\gamma_i \rightarrow 0$ fournissent l'équivalent quantique avec " $\hbar \rightarrow 0$ " du système classique fixé par ϵ . Le fait que toutes les solutions γ_i ,

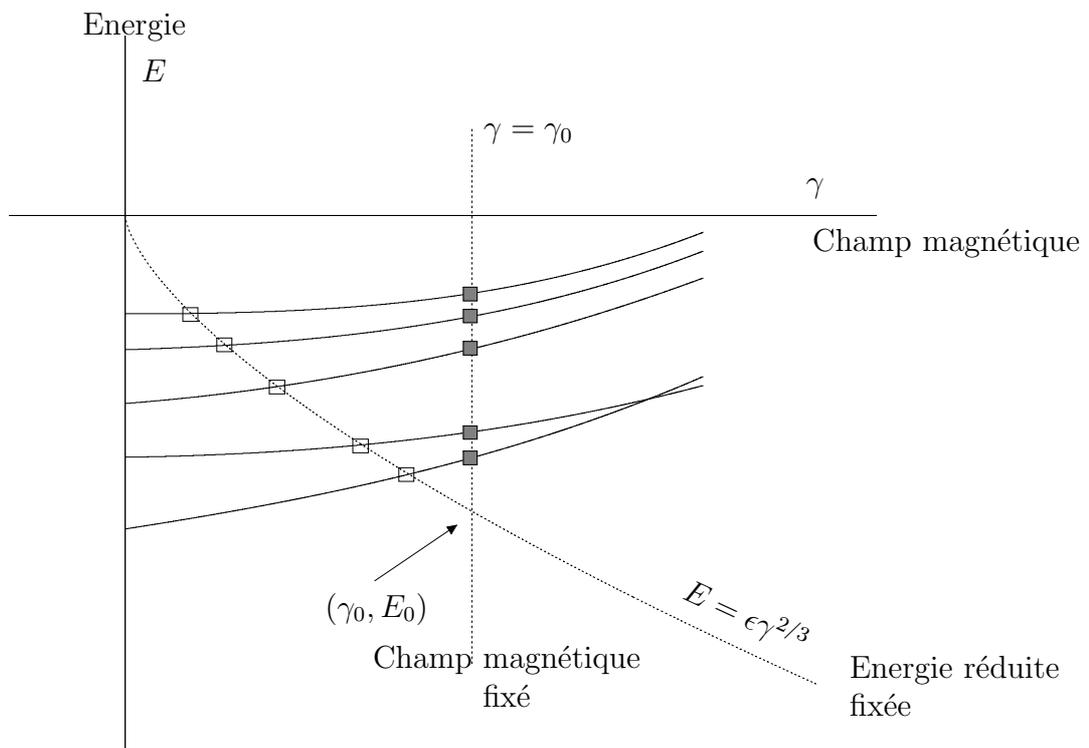


FIG. 2.9 – Les courbes en trait plein représentent schématiquement les niveaux d'énergie de l'atome d'hydrogène en fonction du champ magnétique (par simplicité, on n'a représenté que quelques niveaux). Les solutions du problème à champ fixé sont obtenues en considérant l'intersection de ces niveaux avec la courbe $\gamma = \gamma_0$ (en pointillé) et sont représentées par les carrés pleins. Les solutions à énergie réduite ϵ ($\epsilon < 0$) fixée sont obtenues en considérant l'intersection de ces niveaux avec la courbe $E = \epsilon \gamma^{2/3}$ (en pointillé) et sont représentées par les carrés creux. La fonction de Green en un point (γ_0, E_0) du plan (γ, E) peut se développer sur les solutions à champ constant (la long de la courbe $\gamma = \gamma_0$), ou sur les solutions à énergie réduite fixée (le long de la courbe $E = \epsilon \gamma^{2/3}$, avec $\epsilon = E_0 \gamma_0^{-2/3}$).

à ϵ fixé, correspondent au même système classique permet d'étudier les propriétés du système quantique à partir de celles du système classique, par exemple ses orbites périodiques. Cette correspondance serait plus délicate à réaliser à partir de l'équation de Schrödinger usuelle, car les niveaux plus ou moins excités qui sont solutions de cette équation correspondent à des systèmes classiques différents. Dans le cas du champ magnétique par exemple, le système classique passe d'une dynamique régulière à une dynamique chaotique lorsque l'énergie réduite ϵ augmente.

Il est donc intéressant de considérer le même problème que précédemment (atome non-hydrogénoïde en champ extérieur faible), mais dans le cas où l'énergie réduite est fixée. Nous allons voir qu'il est possible d'adapter la méthode de résolution au cas des solutions à énergie réduite fixée.

2.6.3 Méthode de résolution pour le problème à énergie réduite fixée

Par simplicité, nous allons considérer le cas d'un seul défaut quantique non-nul, dans le canal $l = 0$ (cf. section 2.4). La généralisation à plusieurs défauts quantiques non-nuls s'obtient de la même manière que dans le cas à champ fixé.

Soit une énergie réduite ϵ fixée. On considère un électron excité dans le champ d'un cœur ionique caractérisé par $\delta \neq 0$ dans le canal $l = 0$ et un champ extérieur. On cherche à déterminer les valeurs du champ γ_i ³ telles que $E_i = \epsilon \gamma_i^{2/3}$ soit une énergie propre de l'électron dans ces conditions.

Le défaut quantique δ impose un comportement connu à la fonction d'onde de l'électron, indépendant du champ extérieur. Il faut que, pour $r \rightarrow 0$

$$\psi(\mathbf{r}; E) \sim \cos(\pi\delta) \frac{s_0(r; E)}{r} + \sin(\pi\delta) \frac{c_0(r; E)}{r} \quad (2.67)$$

Comme dans le cas à champ fixé, nous allons prendre la fonction de Green du problème hydrogénoïde comme fonction d'onde, et obtenir l'équation donnant les énergies qui sont solutions en lui imposant le comportement requis pour $r \rightarrow 0$. Comme on cherche les solutions à énergie réduite fixée, on va considérer la fonction de Green à énergie réduite fixée $G_0^\epsilon(\mathbf{r}, 0; \gamma, E)$, pour laquelle l'intensité du champ γ apparaissant dans le hamiltonien et l'énergie E sont reliées par $\epsilon = \gamma^{-2/3} E$. L'équation fournissant les valeurs propres à énergie réduite fixée est alors :

$$\lim_{\mathbf{r} \rightarrow 0} G_0^\epsilon(\mathbf{r}, 0; \gamma, E) = \alpha \lim_{r \rightarrow 0} \left(\cos(\pi\delta) \frac{s_0(r; E)}{r} + \sin(\pi\delta) \frac{c_0(r; E)}{r} \right) \quad (2.68)$$

où E est l'énergie recherchée, et α une constante inconnue. Cette constante se détermine de la même manière que dans le cas à champ fixé, en comparant les comportements divergents de la fonction de Green et de $c_0(r; E)$ pour $r \rightarrow 0$. On

³Dans tout ce qui suit, le raisonnement est écrit dans le cas d'un champ magnétique. Le cas d'un champ électrique se traite de manière similaire.

utilise ensuite la relation (2.31) qui exprime $c_0(r; E)/r$ en fonction de la fonction de Green pour l'hydrogène sans champ $\mathcal{G}_0(\mathbf{r}, 0; E)$. L'équation (2.68) s'écrit alors :

$$\lim_{r \rightarrow 0} G_0^\epsilon(\mathbf{r}, 0; \gamma, E) = \lim_{r \rightarrow 0} \mathcal{G}_0(\mathbf{r}, 0; E) - \frac{1}{2} \cotg(\pi\nu) - \frac{\sqrt{2}}{4} \cotg(\pi\delta) \lim_{r \rightarrow 0} \frac{s_0(r; E)}{r} \quad (2.69)$$

A ce stade, il faut introduire le développement spectral des fonctions de Green. Toutefois, les solutions dont nous disposons sont les solutions du problème hydrogéoïde à énergie réduite fixée. La section suivante montre comment il est possible d'obtenir le développement spectral de la fonction de Green sur les solutions à énergie réduite fixée plutôt qu'à champ fixé.

2.6.4 Développement de la fonction de Green sur les solutions de l'équation à énergie réduite fixée

La fonction de Green $G_0^\epsilon(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; \gamma, E)$ est solution de l'équation :

$$\left(-\frac{\Delta_r}{2} - \frac{1}{r} + \gamma^2 \frac{r^2 \sin^2 \theta}{8} - E \right) G_0^\epsilon(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; \gamma, E) = -\delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}') \quad (2.70)$$

γ_i et $\Phi_i(\mathbf{x})$ sont les solutions de l'équation aux valeurs propres généralisée :

$$\left(\gamma_i^{2/3} \frac{\Delta_x}{2} - \frac{1}{x} + \frac{x^2 \sin^2 \theta}{8} - \epsilon \right) \Phi_i(\mathbf{x}) = 0 \quad (2.71)$$

A chacune de ces solutions correspond une solution de l'équation de Schrödinger usuelle dans un champ γ_i , avec une énergie $E_i = \epsilon \gamma_i^{2/3}$ et une fonction propre $\psi_i(\mathbf{r}) \sim \Phi_i(\gamma_i^{2/3} \mathbf{r})$. Les fonctions $\Phi_i(\mathbf{x})$ sont orthonormées suivant :

$$\int d\mathbf{x} \Phi_i^*(\mathbf{x}) \left(\frac{-\Delta_x}{2} \right) \Phi_j(\mathbf{x}) = \delta_{ij} \quad (2.72)$$

et satisfont la relation de fermeture :

$$\sum_i \Phi_i^*(\mathbf{y}) \left(\frac{-\Delta_x}{2} \right) \Phi_i(\mathbf{x}) = \delta(\mathbf{x} - \mathbf{y}) \quad (2.73)$$

Partons de la fonction de Green pour l'équation aux valeurs propres généralisée, notée $\mathcal{G}_0^\epsilon(\mathbf{x}, \mathbf{y}; \gamma)$:

$$\left(-\gamma^{2/3} \frac{\Delta_x}{2} - \frac{1}{x} + \frac{x^2 \sin^2 \theta}{8} - \epsilon \right) \mathcal{G}_0^\epsilon(\mathbf{x}, \mathbf{y}; \gamma) = -\delta(\mathbf{x} - \mathbf{y}) \quad (2.74)$$

En substituant dans l'équation, on vérifie que \mathcal{G}_0^ϵ admet le développement spectral suivant :

$$\mathcal{G}_0^\epsilon(\mathbf{x}, \mathbf{y}; \gamma) = \sum_i \frac{\Phi_i(\mathbf{x}) \Phi_i^*(\mathbf{y})}{\gamma^{2/3} - \gamma_i^{2/3}} \quad (2.75)$$

En posant $\mathbf{x}' = \gamma^{-2/3} \mathbf{x}$ et $\mathbf{y}' = \gamma^{-2/3} \mathbf{y}$, et en multipliant le tout par $\gamma^{2/3}$, l'équation (2.74) se transforme en :

$$\left(-\frac{\Delta_{x'}}{2} - \frac{1}{x'} + \gamma^2 \frac{x'^2 \sin^2 \theta}{8} - \epsilon \gamma^{2/3} \right) \mathcal{G}_0^\epsilon(\gamma^{2/3} \mathbf{x}', \gamma^{2/3} \mathbf{y}'; \gamma) = -\gamma^{-4/3} \delta(\mathbf{x}' - \mathbf{y}') \quad (2.76)$$

En comparant ceci à l'équation (2.70) (avec $\epsilon \gamma^{2/3} = E$), on voit que l'on a :

$$\gamma^{4/3} \mathcal{G}_0^\epsilon(\gamma^{2/3} \mathbf{r}, \gamma^{2/3} \mathbf{r}'; \gamma) = G_0^\epsilon(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; \gamma, E) \quad (2.77)$$

ce qui nous donne enfin le développement spectral de G_0^ϵ :

$$G_0^\epsilon(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; \gamma, E) = \gamma^{4/3} \sum_i \frac{\Phi_i(\gamma^{2/3} \mathbf{r}) \Phi_i^*(\gamma^{2/3} \mathbf{r}')}{\gamma^{2/3} - \gamma_i^{2/3}} \quad (2.78)$$

ou encore :

$$G_0^\epsilon(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; \gamma, E) = \frac{E^2}{\epsilon} \sum_i \frac{\Phi_i((E/\epsilon) \mathbf{r}) \Phi_i^*((E/\epsilon) \mathbf{r}')}{E - E_i} \quad (2.79)$$

On peut interpréter graphiquement les différents types de développement de la fonction de Green. Etant donné un point (γ_0, E_0) du plan (γ, E) , la fonction de Green en ce point peut se développer soit sur les solutions à champ constant (équation (2.33)), c'est-à-dire sur les solutions prises le long de la droite $\gamma = \gamma_0$, soit sur les solutions à énergie réduite fixée (équations (2.78) et (2.79)), c'est-à-dire sur les solutions prises le long de la courbe $E = \epsilon \gamma^{2/3}$, avec $\epsilon = E_0 \gamma_0^{-2/3}$ (voir figure 2.9). Remarquons que pour la résolution complète de notre problème (équation (2.69)), nous utilisons la fonction de Green uniquement le long de la courbe $E = \epsilon \gamma^{2/3}$, avec ϵ fixé, ce qui signifie que pour développer la fonction de Green il nous faut connaître les solutions hydrogénéoïdes de l'équation réduite uniquement à cette énergie réduite (de même que dans le cas à champ fixé, seules les solutions hydrogénéoïdes pour cette valeur du champ étaient nécessaires).

2.6.5 Calcul pratique des solutions

Notons tout d'abord que la propriété de scaling expliquée plus haut est évidemment valable pour l'hydrogène sans champ extérieur : il suffit de prendre les mêmes équations que dans le cas exposé en omettant le terme $\sim r^2 \sin^2 \theta$. Dans ce cas, γ devient l'intensité d'un champ fictif qui n'apparaît pas dans le hamiltonien, avec $\gamma^{2/3} \epsilon = E$. Cela signifie que l'on peut développer la fonction de Green pour l'hydrogène sans champ extérieur sur les solutions à énergie réduite fixée.

On peut maintenant remplacer, dans l'équation (2.69), les deux fonctions de Green par leur développement sur les solutions à énergie réduite ϵ fixée. Cela

donne :

$$\lim_{\mathbf{r} \rightarrow 0} \left[\frac{E^2}{\epsilon} \sum_i \frac{\Phi_i(\mathbf{r}E/\epsilon)\Phi_i^*(0)}{E - E_i} - \frac{E^2}{\epsilon} \sum_i \frac{\phi_i(\mathbf{r}E/\epsilon)\phi_i^*(0)}{E - E_i^0} \right] + \frac{1}{2} \cotg(\pi\nu) = -\frac{\sqrt{2}}{4} \cotg(\pi\delta) \lim_{r \rightarrow 0} \frac{s_0(r; E)}{r} \quad (2.80)$$

Dans cette équation, $E_i = \epsilon\gamma_i^{2/3}$ et $\Phi_i(\mathbf{x})$ sont les solutions de l'équation aux valeurs propres généralisée à énergie réduite ϵ pour le problème de l'hydrogène en présence de champ, et les E_i^0 et $\phi_i(\mathbf{x})$ sont les quantités équivalentes dans le cas de l'hydrogène sans champ. En prenant la limite pour $\mathbf{r} \rightarrow 0$, on obtient l'équivalent de l'équation (2.36) dans le cas à énergie réduite fixée :

$$\frac{E^2}{\epsilon} \sum_i \frac{|\Phi_i(0)|^2}{E - E_i} - \frac{E^2}{\epsilon} \sum_i \frac{|\phi_i(0)|^2}{E - E_i^0} + \frac{1}{2} \cotg(\pi\nu) = -\frac{1}{2} \cotg(\pi\delta) \quad (2.81)$$

Comme dans l'équation (2.36), le terme $(1/2)\cotg(\pi\nu)$ permet de compenser exactement les pôles pour $E = E_i^0$ de la fonction de Green pour l'hydrogène seul (deuxième terme). Avec des arguments similaires à ceux du cas à champ fixé (section 2.4.5), on montre que l'on peut en pratique tronquer les deux sommes de l'équation (2.81) sans modifier le résultat. Ceci permet de calculer les solutions en ne connaissant qu'un nombre fini de valeurs propres et fonctions propres du problème hydrogénoïde à énergie réduite fixée.

2.7 Propriétés statistiques des solutions

2.7.1 Introduction

Dans les sections précédentes, nous avons vu qu'il est possible de calculer les valeurs propres du système considéré à partir d'une analogie entre le défaut quantique et un diffuseur ponctuel. L'équation obtenue pour le calcul des valeurs propres est donc du même type que l'équation pour un système avec un diffuseur ponctuel (équation de Seba (1.94)), et impose donc les mêmes contraintes sur le comportement statistique des solutions (voir section 1.4 du chapitre 1). Dans cette section, nous examinons donc le comportement statistique des solutions, et nous comparons les modèles aux résultats obtenus. Nous nous limiterons ici au cas où le système hydrogénoïde est régulier. En effet, nous avons vu dans le chapitre 1 (en 1.4.3) que l'ajout d'un diffuseur ponctuel (et donc aussi d'un défaut quantique) à un système chaotique ne modifie pas les propriétés statistiques des niveaux d'énergie du système. Nous nous intéresserons principalement ici à la distribution d'espacement $P(s)$ des solutions, c'est-à-dire aux propriétés statistiques à courte distance.

Le plan de cette section est le suivant. Le lien avec l'équation de Seba est détaillé en 2.7.2. En 2.7.3, on considère le cas d'un défaut quantique $\delta = 0, 5$, et on compare

les résultats obtenus au modèle demi-Poisson. En 2.7.4, on considère le cas d'un défaut quantique $\delta \neq 0, 5$, et les résultats sont comparés au modèle δ -Poisson qui est introduit. 2.7.5 traite spécifiquement le cas d'un défaut quantique très faible, et compare les prévisions aux résultats obtenus et à des résultats expérimentaux. Enfin, en 2.7.6, on considère le cas plus difficile d'un atome ayant plusieurs défauts quantiques non-nuls.

2.7.2 Lien avec l'équation de Seba

Dans le chapitre 1, nous avons vu que l'équation de Seba, qui permet de calculer les niveaux d'énergie d'un système avec un diffuseur ponctuel à partir de ceux pour le système sans diffuseur, permet également de prévoir les propriétés statistiques de ses solutions en fonction de celles des niveaux de départ. La méthode de calcul des niveaux d'énergie d'un atome non-hydrogénoïde en champ faible exposée ci-dessus fournit également une équation de type "équation de Seba". Elle fournit donc les mêmes renseignements concernant la statistique de ses solutions.

Le cas que nous allons considérer est celui d'un atome non-hydrogénoïde avec un défaut quantique non-nul en champ faible, pour lequel le système hydrogénoïde correspondant est classiquement régulier. Cela signifie que les niveaux d'énergie du système hydrogénoïde quantique ont une statistique poissonnienne, et ont pour loi d'espacement $P(s) = e^{-s}$. En étudiant les propriétés statistiques des solutions pour le problème non-hydrogénoïde, nous pourrions voir de quelle manière le cœur modifie l'intégrabilité du système.

L'équation fournissant les solutions est l'équation (2.36) (à champ fixé), ou l'équation (2.81) (à énergie réduite fixée). Dans le raisonnement qui suit, nous ne ferons pas de différence entre le cas à champ fixé et celui à énergie réduite fixée (bien que dans le cas à champ fixé, on ne peut parler rigoureusement de statistique des solutions que localement en énergie, puisque la dynamique classique est modifiée lorsque l'énergie est modifiée).

Dans ces équations, le deuxième et le troisième terme servent à régulariser le premier terme. En sous-entendant, dans une notation moins précise, cette régularisation, on peut écrire :

$$\sum_n \frac{|\phi_n(0)|^2}{z - E_n} = -\frac{1}{2} \cotg(\pi\delta) \quad (2.82)$$

qui est exactement l'équation de Seba rencontrée précédemment (1.94). Sachant que les niveaux E_n ont par hypothèse une statistique poissonnienne, tout ce qui a été dit plus haut concernant la statistique des solutions $\{z_n\}$ de cette équation est applicable à notre cas (voir section 1.4.2). La loi d'espacement $P(s)$ des solutions est donc nécessairement intermédiaire entre celle d'un système régulier et celle d'un système chaotique : elle est proportionnelle à s à petit s (répulsion de niveaux, comme pour un système chaotique), mais décroît exponentiellement à grand s (comme pour un système régulier).

2.7.3 Cas d'un défaut quantique $\delta = 0,5$: résultats comparés au modèle demi-Poisson

Les propriétés générales données ci-dessus peuvent être précisées en fonction de la valeur de δ . Considérons tout d'abord le cas d'un défaut quantique $\delta = 0,5$ dans le canal $l = 0$ ⁴. Dans ce cas, le membre de droite de l'équation (2.82) est nul, et l'on peut s'attendre à ce que, en moyenne, la solution z_n se trouve au milieu de l'intervalle $[E_n, E_{n+1}]$. Les niveaux E_n étant poissonniens, on est naturellement conduit à considérer la distribution demi-Poisson pour les solutions, puisque cette distribution est obtenue en plaçant chaque niveau exactement au milieu de l'intervalle poissonnien où il se trouve (voir la section 1.5).

La figure 2.10 montre les résultats obtenus numériquement [43] pour la distribution d'espacement dans le cas d'un champ magnétique extérieur pour ce défaut quantique, à énergie réduite fixée ($\epsilon = -0,5$, $L_z = 0$, parité paire). Les trois premiers graphes de la figure (a,b,c) montrent la distribution cumulative d'espacement $N(s) = \int ds P(s)$, pour des niveaux de plus en plus excités (a : pour les niveaux entre le 200^{ème} et le 700^{ème} état excité, b : entre le 2000^{ème} et le 3000^{ème} état excité, c : entre le 5000^{ème} et le 40000^{ème} état excité). Les distributions Poisson, demi-Poisson et Wigner sont présentées également. Dans les cas a et b, les niveaux sont manifestement trop peu excités pour que la théorie présentée ici fonctionne bien, et la distribution obtenue est proche de la distribution de Wigner. Par contre, dans le cas c (niveaux les plus excités), on voit que la distribution obtenue est en très bon accord avec la distribution demi-Poisson. Nous avons vérifié qu'en prenant des niveaux plus excités, la distribution obtenue n'est plus modifiée (et en particulier ne tend pas vers la distribution de Wigner). Les graphes d et e montrent $P(s)$ pour les mêmes données que c. Le graphe e est en unités logarithmiques, ce qui permet de vérifier que la queue de la distribution obtenue est bien en e^{-2s} , en accord avec la distribution demi-Poisson. Le fait que la convergence des résultats vers la distribution demi-Poisson soit si lente (il faut aller dans les états très excités) est assez surprenant, et n'est pas encore compris.

La figure 2.11 montre les résultats obtenus dans le cas d'un champ électrique ($\epsilon = -2.2$, $L_z = 0$), pour les niveaux entre le 20000^{ème} et le 40000^{ème} état excité. On voit que la distribution obtenue est proche de (mais pas identique à) la distribution demi-Poisson, et bien différente des distributions Poisson et Wigner.

Dans le cas du champ électrique, on peut utiliser les résultats du chapitre précédent concernant la pente à l'origine de $P(s)$ (voir section 6). Le numérateur pour le terme E_i dans l'équation de Seba est $|\phi_i(0)|^2$, c'est-à-dire proportionnel au module carré de la composante $l = 0$ de la fonction d'onde. Or, le problème de l'atome d'hydrogène en champ électrique est séparable en coordonnées paraboliques [44]. En champ faible, on peut caractériser les états propres $\phi_i(\mathbf{r})$ par les

⁴Ceci n'est pas très éloigné du cas du lithium, où $\delta_0 = 0,4$, et les autres défauts quantiques pour l pair sont négligeables.

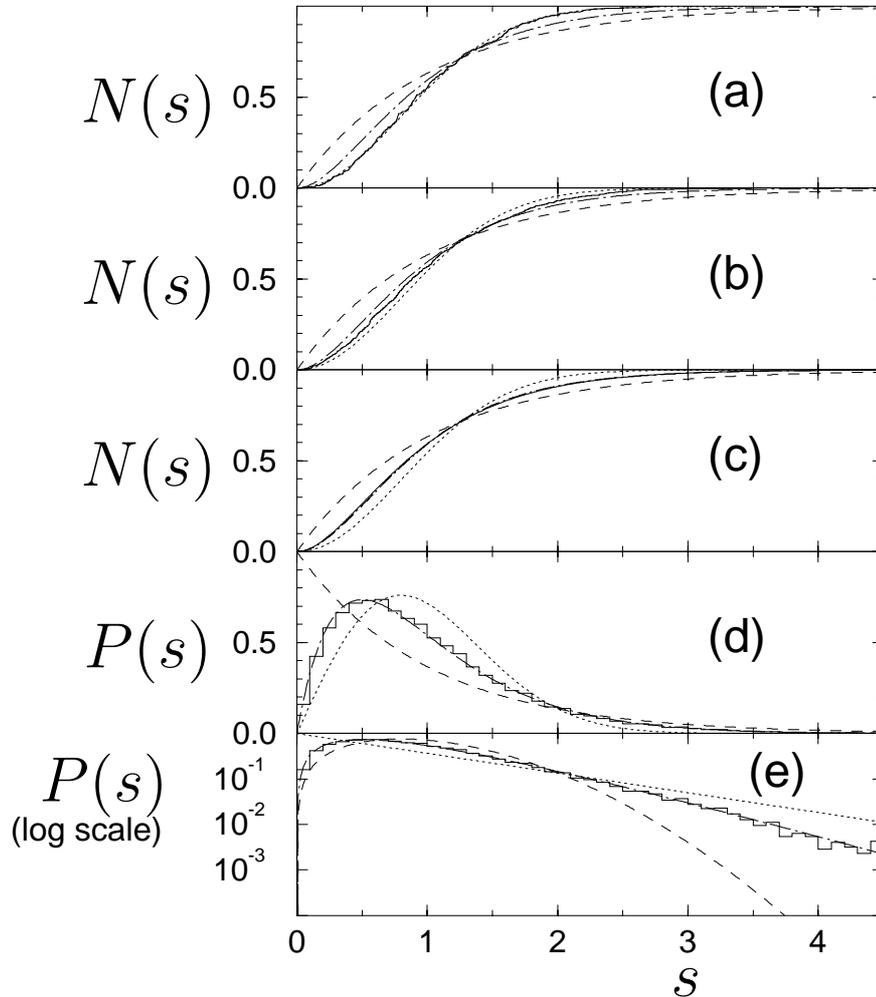


FIG. 2.10 – Résultats obtenus pour un atome ayant un défaut quantique $\delta_0 = 0,5$ dans un champ magnétique faible (énergie réduite $\epsilon = -0,5$, $L_z = 0$, parité paire). De (a) à (c) : distribution d'espacement cumulative $N(s)$ pour des niveaux de plus en plus excités (a : pour les niveaux entre le 200^{ème} et le 700^{ème} état excité, b : entre le 2000^{ème} et le 3000^{ème} état excité, c : entre le 5000^{ème} et le 40000^{ème} état excité). (d) et (e) montrent la distribution d'espacement $P(s)$ pour les mêmes données que (c), en unités linéaires et logarithmiques. Pour les cinq graphes sont représentées les distributions Poisson (tireté), demi-Poisson (pointillé-tireté) et GOE (pointillé). On voit que, pour les niveaux les plus excités, l'accord avec la distribution demi-Poisson est excellent.

trois nombres quantiques paraboliques (n, m_1, m_2) , et les fonctions propres sont donc $\phi_{n,m_1,m_2}(\mathbf{r})$ (en l'absence de champ électrique, l'énergie dépend uniquement de n). Notons que la base parabolique peut aussi être caractérisée en terme des nombres (n, n_1, n_2, m) , reliés à (n, m_1, m_2) par :

$$\begin{cases} n_1 - n_2 & = & m_1 - m_2 \\ n_1 + n_2 & = & n - 1 - |m_1 + m_2| \\ m & = & m_1 + m_2 \end{cases} \quad (2.83)$$

Le passage entre la base parabolique et la base sphérique usuelle s'exprime simplement au moyen d'un coefficient de Clebsch-Gordan :

$$|\langle n, m_1, m_2 | n', l, m \rangle|^2 = \delta_{n,n'} \left| \langle \frac{n-1}{2} \frac{n-1}{2} m_1 m_2 | lm \rangle \right|^2 \quad (2.84)$$

Pour obtenir $|\phi_{n,m_1,m_2}(0)|^2$, il suffit de prendre le recouvrement avec l'état $n, l = 0, m = 0$. Dans ce cas, le coefficient de Clebsch-Gordan est facilement calculable, et on a :

$$|\langle n, m_1, m_2 | n, l = 0, m = 0 \rangle|^2 = \frac{1}{n} \delta_{m_1, -m_2} \quad (2.85)$$

On voit donc que, parmi tous les états ayant un recouvrement non-nuls avec la composante $l = 0, m = 0$ (c'est-à-dire ceux satisfaisant $m_1 = -m_2$), tous les états caractérisés par le même n ont le même recouvrement, et donc la même valeur de $|\phi_{n,m_1,m_2}(0)|^2$. De plus, cette valeur dépend lentement de n (puisque'elle varie en $1/n$, avec n grand). Cela signifie que dans l'intervalle d'énergie sur lequel on somme les termes de l'équation de Seba, le numérateur $|\phi_{n,m_1,m_2}(0)|^2$ varie très peu et peut être considéré comme constant. Nous avons explicitement vérifié sur les données en champ électrique que la dispersion des numérateurs n'est pas plus grande que quelques pourcent. On a donc une équation de Seba avec les numérateurs égaux. Dans ce cas, les résultats du chapitre précédent (section 6) montrent que la pente à l'origine de $P(s)$ vaut $\pi\sqrt{3}/2 \simeq 2,7$, ce qui est notablement inférieur à la pente pour la distribution demi-Poisson, qui vaut 4. Sur la figure 2.11, qui montre la distribution cumulative d'espacement $N(s)$, et qui concerne le champ électrique, on observe bien pour les résultats une courbure à l'origine inférieure à celle de la distribution demi-Poisson.

Ce raisonnement est confirmé par l'examen des distributions des numérateurs $|\phi_n(0)|^2$ utilisées en pratique. La figure 2.12 montre les distributions de numérateurs typiques obtenues avec un champ électrique (en haut) et avec un champ magnétique (en bas). La distribution pour le cas du champ électrique est effectivement très étroite, ce qui explique la courbure observée pour $N(s)$, inférieure à celle de la distribution demi-Poisson. Par contre, la distribution observée dans le cas du champ magnétique est beaucoup plus large. Comme nous l'avons vu dans la section 6, plus la dispersion des numérateurs est grande, plus la pente à l'origine de $P(s)$ est élevée.

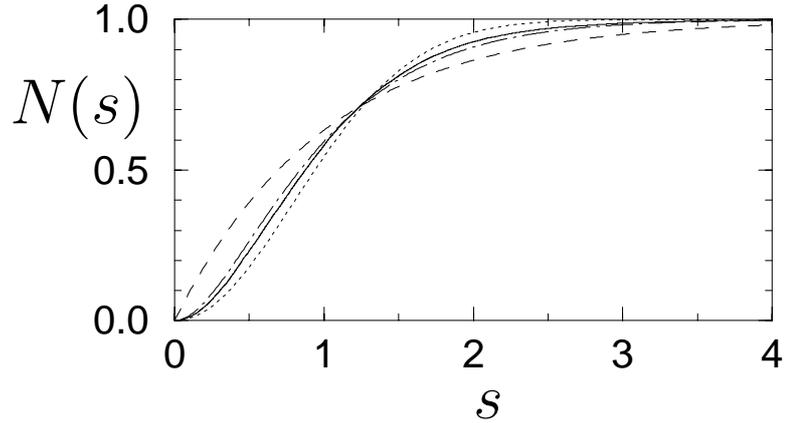


FIG. 2.11 – Figure équivalent à la figure 2.10 (c), pour un atome ayant un défaut quantique $\delta_0 = 0,5$ dans un champ électrique (niveaux entre le 20000^{ème} et le 40000^{ème} état excité, énergie réduite $\epsilon = -2,2$). La distribution obtenue est bon accord qualitatif avec la distribution demi-Poisson.

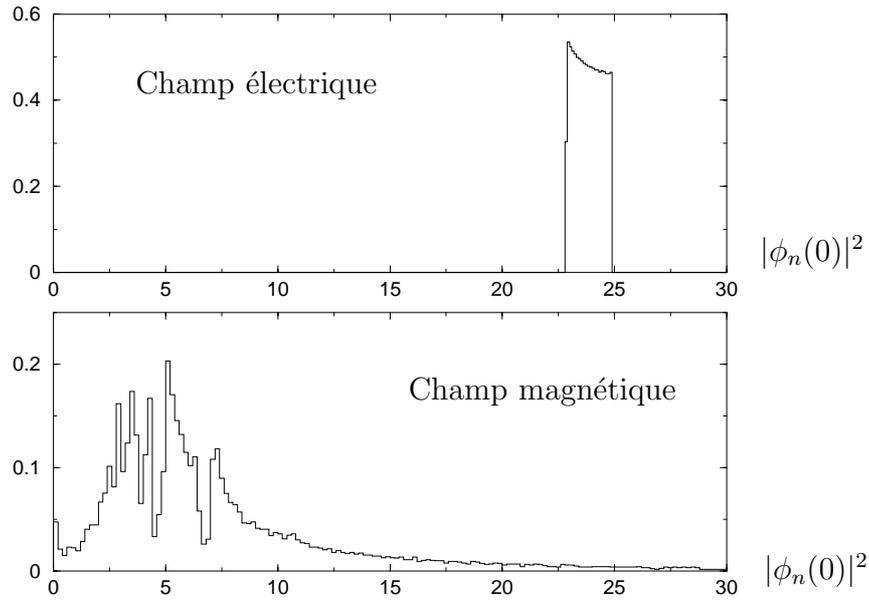


FIG. 2.12 – Densités de probabilité des numérateurs $|\phi_n(0)|^2$ (unités arbitraires) apparaissant dans l'équation (2.82) dans le cas d'un champ électrique extérieur (en haut, énergie réduite $\epsilon = -3,0$, niveaux entre le 24000^{ème} et le 30000^{ème} état excité) et d'un champ magnétique extérieur (en bas, énergie réduite $\epsilon = -0,7$, niveaux entre le 3000^{ème} et le 6000^{ème} état excité). Comme prévu par l'argument de la section 2.7.3, la distribution des numérateurs est très étroite dans le cas du champ électrique, ce qui explique que la courbure à l'origine de $N(s)$ observée dans ce cas diffère de celle de la distribution demi-Poisson. Par contre, dans le cas du champ magnétique, la distribution des numérateurs est beaucoup plus large.

Il est intéressant également de considérer la distribution d'espacement du second voisin $P_2(s)$, et sa version cumulative $N_2(s)$. La figure 2.13 montre les résultats numériques obtenus en champ magnétique (même paramètres que pour la figure 2.10 (c)), et les résultats obtenus en champ électriques (mêmes paramètres que pour la figure 2.11), comparés aux prévisions pour $N_2(s)$ de la distribution demi-Poisson (voir l'équation (1.128)), d'une distribution poissonnienne et d'un ensemble de statistique GOE. On voit que les résultats en champ magnétique et électrique (qui coïncident) sont bien intermédiaire entre le cas poissonnien et le cas GOE, mais ne sont pas identiques à la prévision de la distribution demi-Poisson. L'encart dans la figure montre les mêmes données en échelle logarithmique double ; on voit clairement que les résultats se comportent à petit s comme la prévision demi-Poisson, c'est-à-dire en s^3 , mais avec un coefficient différent, et non pas en s^2 ou en s^5 , comme (respectivement) une distribution poissonnienne et un ensemble de statistique GOE. Citons également ici un modèle de statistique appelé *short range plasma model* [45], qui s'obtient en considérant un ensemble de niveaux avec une répulsion logarithmique entre premiers voisins uniquement. La distribution d'espacement de ce modèle est la même que celle de la distribution demi-Poisson ($P(s) = 4s \exp(-2s)$), mais la distribution d'espacement du second voisin $P_2(s)$ est différente. A petit s , $N_2(s)$ se comporte pour ce modèle en s^4 , ce qui est bien différent des résultats obtenus.

2.7.4 Cas d'un défaut quantique $\delta \neq 0, 5$: modèle δ -Poisson

Considérons maintenant le cas plus général d'un défaut quantique $\delta \neq 0, 5$. Pour fixer les idées, on prend $0 < \delta < 0, 5$. Dans ce cas, le membre de droite de l'équation (2.82) est négatif, et est d'autant plus grand en valeur absolue que δ est petit. L'effet de cette constante négative est de décaler la solution z_n vers la droite de l'intervalle $[E_n, E_{n+1}]$ par rapport aux solutions avec une constante nulle ($\delta = 0, 5$). On peut obtenir une distribution tenant compte de cet effet en procédant de la manière suivante. La fonction définie par le membre de gauche de l'équation (2.82) ressemble à une fonction cotangente : c'est une fonction strictement décroissante entre ses pôles. A ce titre, il est instructif de considérer l'équation dans le cas où le champ extérieur est nul (pour lequel le système hydrogénoïde est simplement l'atome d'hydrogène : $E_n = -1/n^2$, et les solutions sont données par la théorie du défaut quantique : $z_n = -1/(n - \delta)^2$). Dans ce cas, le membre de gauche de (2.82) est :

$$\sum_n \frac{|\phi_n(0)|^2}{z - E_n} = \sum_n \frac{1/(\pi n^3)}{-1/\nu^2 + 1/n^2} \quad (2.86)$$

où l'on a posé $z = -1/\nu^2$. En pratique, la somme ne porte que sur un nombre limité de n (tous $\gg 1$), tels que E_n soit proche de la région d'énergie où l'on cherche une solution z (ceci à cause du terme de régularisation qui n'est pas écrit dans l'équation (2.82)). C'est également la raison pour laquelle on n'a pas écrit la

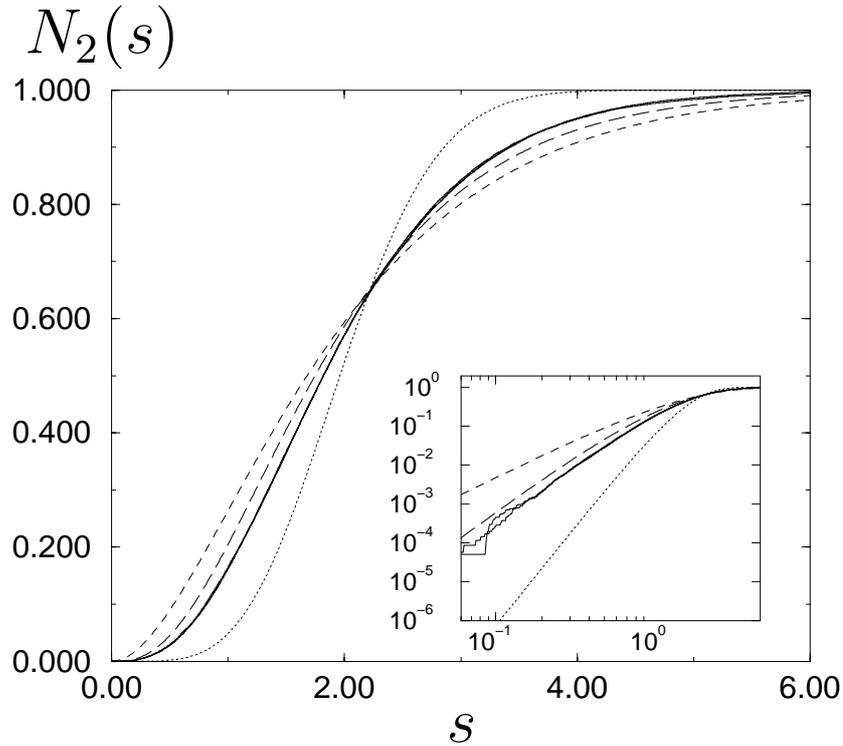


FIG. 2.13 – *Distribution cumulative d'espacement au second voisin $N_2(s)$ pour un atome avec un défaut quantique $\delta = 0,5$ en champ électrique et magnétique (courbes en trait plein, paramètres identiques à ceux de la figure 2.10 (c) et de la figure 2.11). Les distributions correspondant à une statistique poissonnienne (courbe tiretée), à la distribution demi-Poisson (courbe en longs tirets) et à une statistique GOE (courbe pointillée) sont également montrées. Les résultats en champ magnétique et électrique sont presque identiques, et sont bien intermédiaires entre les résultats pour la statistique poissonnienne et la statistique GOE, mais diffèrent légèrement de la prévision de la distribution demi-Poisson. L'encart montre les mêmes données en échelle doublement logarithmique. Il apparaît que le comportement à petit s des résultats est similaire à celui de la prévision demi-Poisson (c'est-à-dire en s^3), mais avec un coefficient différent.*

contribution des niveaux du continuum. On peut alors écrire :

$$\begin{aligned} \frac{1}{\pi} \sum_n \frac{1/n^3}{-1/\nu^2 + 1/n^2} &= \frac{1}{\pi} \sum_n \frac{\nu^2/n}{\nu^2 - n^2} \\ &= \frac{1}{\pi} \sum_n \frac{\nu^2}{n(n+\nu)} \frac{1}{\nu - n} \simeq \frac{1}{2\pi} \sum_n \frac{1}{\nu - n} \end{aligned} \quad (2.87)$$

car $|n - \nu|/n \ll 1$. En utilisant alors le développement de la fonction cotangente :

$$\pi \cotg(\pi x) = \sum_{n \in \mathbb{Z}} \frac{1}{x - n} \quad (2.88)$$

on voit que l'équation (2.82) peut s'écrire :

$$\frac{1}{2} \cotg(\pi \nu) = -\frac{1}{2} \cotg(\pi \delta) \quad (2.89)$$

qui a pour solution

$$\nu_n = n + (1 - \delta) \quad (2.90)$$

On obtient bien la solution attendue, et on voit que l'effet du terme en $\cotg(\pi \delta)$ est de placer la solution $z_n = -1/\nu_n^2$ à une fraction $(1 - \delta)$ de l'intervalle $[E_n, E_{n+1}]$:

$$z_n \simeq \delta E_n + (1 - \delta) E_{n+1} \quad (2.91)$$

La solution dans le cas où le champ extérieur est non-nul est bien sûr différente (puisque les énergies hydrogénoïdes ne sont plus régulièrement espacées), mais on peut s'attendre à ce que, en moyenne, chaque solution se trouve à une fraction $(1 - \delta)$ de l'intervalle formé par les niveaux hydrogénoïdes qui l'entourent. Ceci nous amène à définir un ensemble de niveaux qui alternent avec les niveaux d'un ensemble poissonnien, et où chaque niveau se trouve à une fraction $(1 - \delta)$ de l'intervalle formé par les niveaux poissonniens qui l'entourent. La loi d'espacement de cet ensemble de niveaux, que l'on nomme distribution δ -Poisson ($P_\delta(s)$), se calcule simplement. Elle est symétrique en δ par rapport à $1/2$ ($P_\delta = P_{1-\delta}$), et est donnée par :

$$P_\delta(s) = \frac{1}{1 - 2\delta} \left[\exp\left(\frac{-s}{1 - \delta}\right) - \exp\left(\frac{-s}{\delta}\right) \right] \quad (2.92)$$

La distribution δ -Poisson évolue d'une distribution poissonnienne pour $\delta = 0$ à une distribution demi-Poisson pour $\delta = 1/2$. Pour s petit, elle est linéaire, avec une pente à l'origine valant $s/(\delta(1 - \delta))$, et pour s grand elle est proportionnelle à $\exp(-s/(1 - \delta))$ ($\delta < 1/2$).

La figure 2.14 montre les lois d'espacement $P(s)$ obtenues pour $\delta = 0,15$ et $\delta = 0,85$ dans un champ magnétique ($\epsilon = -0,5$, $L_z = 0$, parité paire, du 13000^{ème} au 22000^{ème} état excité) ainsi que la distribution δ -Poisson pour $\delta = 0,15$. On voit d'une part que les distributions obtenues pour $\delta = 0,15$ et $\delta = 0,85$ coïncident, comme prévu par la théorie. Et d'autre part que le modèle δ -Poisson est en bon accord avec ces distributions.

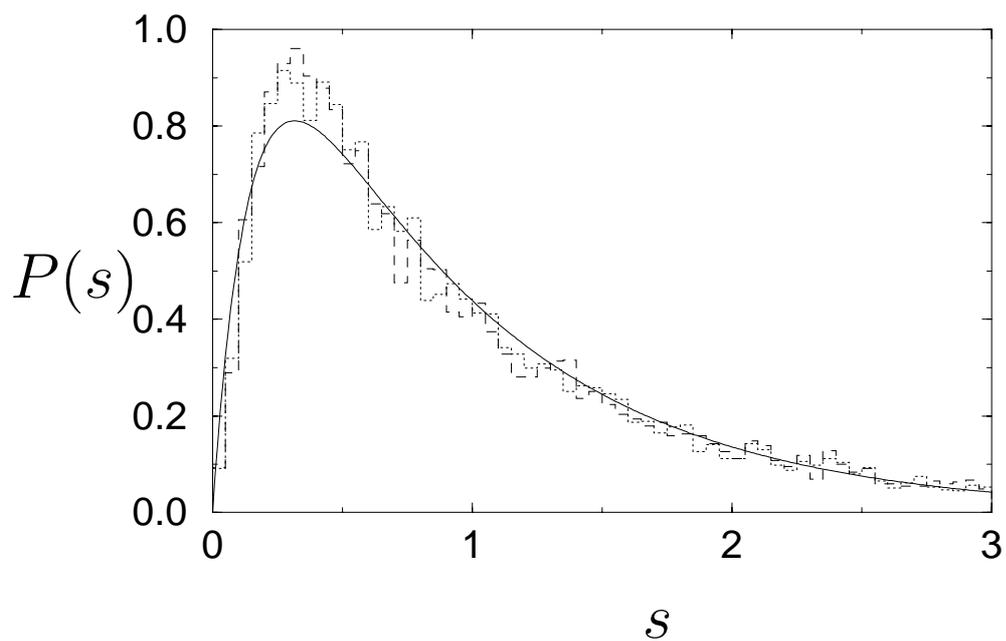


FIG. 2.14 – Distributions d’espacements $P(s)$ pour un atome dans un champ magnétique faible (du 13000^{ème} au 22000^{ème} état excité, énergie réduite $\epsilon = -0,5$), avec un défaut quantique $\delta = 0,15$ (en pointillé) et $\delta = 0,85$ (en tireté), comparées à la prédiction du modèle δ -Poisson (en trait plein). On voit d’une part que la distribution pour $\delta = 0,15$ coïncide avec celle pour $\delta = 0,85$, comme prévu par la théorie. Et d’autre part que ces distributions sont assez bien reproduites par le modèle δ -Poisson.

2.7.5 Cas d'un défaut quantique très faible

Des expériences récentes [46] sur l'hélium en champ électrique et en champ magnétique ont montré que pour un défaut quantique très petit, l'accord de la distribution obtenue avec la distribution δ -Poisson n'est pas bon à petit espacement s . Cela se manifeste clairement sur la distribution d'espacement intégrée $N(s)$, pour laquelle les résultats ont un "trou" par rapport à la distribution δ -Poisson pour $s \leq 2\delta$. L'équation (2.82) se prête à un traitement particulier pour le calcul de $P(s)$ à petit s lorsque δ est proche de 0 (ou de 1), qui permet de comprendre le désaccord observé et de reproduire les résultats expérimentaux pour s petit.

Le membre de droite de l'équation (2.82) est, pour $\delta \rightarrow 0$:

$$-\frac{1}{2}\cotg(\pi\delta) = -\frac{1}{2\pi}\frac{1}{\delta} + O\left(\frac{1}{\delta^2}\right) \quad (2.93)$$

Dans la suite, nous oublions le signe -, ce qui revient à faire la transformation $\delta \rightarrow 1 - \delta$ qui ne change pas les résultats. Si l'on modifie l'échelle des énergies dans le membre de gauche, de manière à ce que l'espacement moyen entre les E_n soit 1 dans l'intervalle d'énergie concerné par la somme, l'équation (2.82) devient :

$$\sum_n \frac{1}{z - E_n} = \frac{1}{\delta} \quad (2.94)$$

Le membre de droite étant très grand ($1/\delta \gg 1$), les solutions z_n de cette équation sont proches de pôles E_n . Ceci est visible sur la figure 2.15 qui représente graphiquement l'équation (2.94). Puisqu'on s'intéresse au comportement de $P(s)$ pour $s \ll 1$, nous considérons les cas où il y a deux solutions très proches de l'équation (2.94). Comme les solutions sont très proches des pôles, cela signifie qu'il faut deux pôles très proches. Nous considérons donc la situation où le pôle E_i se trouve en 0, et le pôle E_{i+1} en s_2 , avec $s_2 > 0$ et $s_2 \ll 1$.

Dans l'équation (2.94), nous allons garder explicitement les termes pour E_i et E_{i+1} , et prendre en compte statistiquement l'effet de tous les autres niveaux. Nous utilisons le résultat suivant [47]. Si K est donné par :

$$K = \sum_n \frac{1}{E_n} \quad (2.95)$$

où les E_n sont des variables aléatoires distribuées uniformément sur $[-\infty, \infty]$ avec une densité 1, alors la distribution de probabilité de K est :

$$w(K) = \frac{1}{K^2 + \pi^2} \quad (2.96)$$

Comme l'intervalle $[0, s_2]$ est très petit, nous utilisons ce résultat pour remplacer la somme sur tous les autres E_n par K . L'équation donnant les deux solutions z_i et z_{i+1} est alors :

$$\frac{1}{x} + \frac{1}{x - s_2} + K = \frac{1}{\delta} \quad (2.97)$$

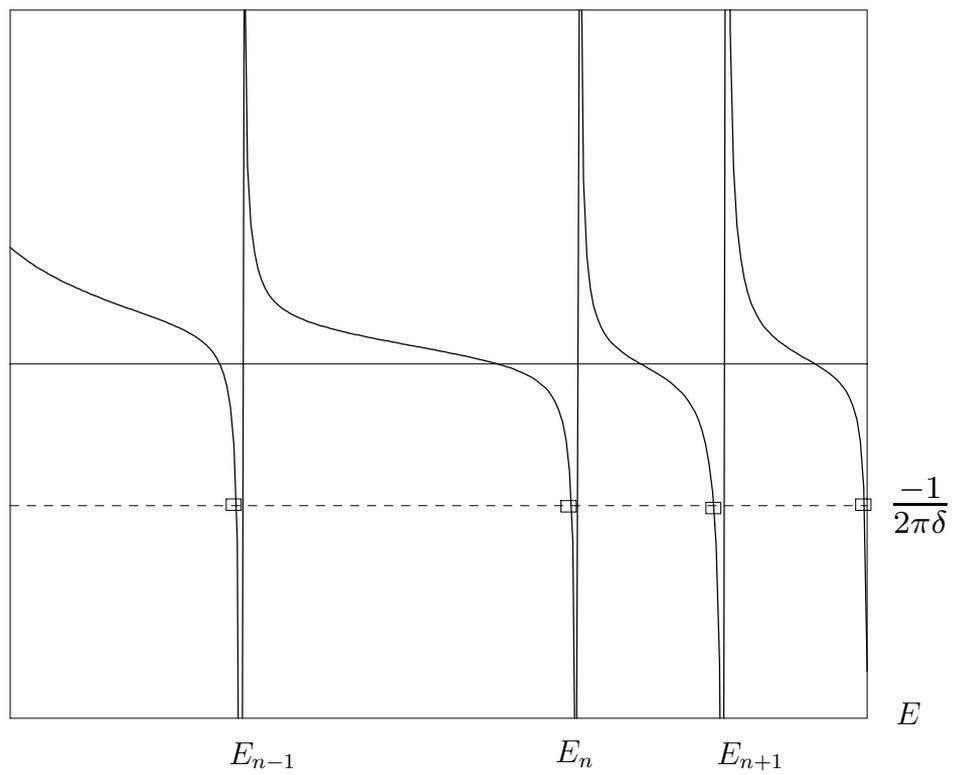


FIG. 2.15 – Représentation graphique de l'équation (2.94). Pour δ petit, on voit que les solutions (indiquées par les carrés) sont proches des pôles.

c'est-à-dire :

$$x^2 - (s_2 + \frac{2}{1/\delta - K})x + \frac{s_2}{1/\delta - K} = 0 \quad (2.98)$$

Notons $f(s_2)$ la distance entre les deux solutions de cette équation. On a :

$$(f(s_2))^2 = s_2^2 + \frac{4}{(1/\delta - K)^2} \quad (2.99)$$

Pour obtenir $P(s)$, on somme sur toutes les configurations s_2 qui donnent une distance s entre les solutions. Comme les pôles ont une statistique poissonnienne, la probabilité d'avoir le pôle E_{i+1} en s_2 est $\exp(-s_2)$. On a donc :

$$P(s) = \int_0^\infty ds_2 \delta(s - f(s_2)) e^{-s_2} \quad (2.100)$$

Par simplicité, on passe à $N(s) = \int P(s)$

$$N(s) = \int_0^\infty ds_2 \theta(s - f(s_2)) e^{-s_2} \quad (2.101)$$

Comme les s_2 qui contribuent à l'intégrale sont $\ll 1$, $\exp(-s_2) \simeq 1$, et on obtient :

$$N(s) = \sqrt{s^2 - \frac{4}{(1/\delta - K)^2}} \quad (2.102)$$

Ceci nous donne $N(s)$ pour une valeur particulière de K . On peut maintenant moyenner sur K , avec la condition $s^2 - 4/(1/\delta - K)^2 > 0$, c'est-à-dire $|1/\delta - K| > 2/s$ (les K qui ne satisfont pas cette condition ne permettent pas de trouver un espacement s entre les solutions). On a donc :

$$N(s) = \int_{-\infty}^{1/\delta - 2/s} dK \frac{1}{K^2 + \pi^2} \sqrt{s^2 - \frac{4}{(1/\delta - K)^2}} + \int_{2/s + 1/\delta}^{\infty} dK \frac{1}{K^2 + \pi^2} \sqrt{s^2 - \frac{4}{(1/\delta - K)^2}} \quad (2.103)$$

En passant à la variable $v = (K - 1/\delta) s/2$, et en posant $v' = -v$ dans la première intégrale, cette équation devient :

$$N(s) = s \int_1^\infty dv \frac{\sqrt{(v-1)(v+1)}}{v} \left[\frac{s/2}{(s/(2\delta) + v)^2 + \pi^2 s^2/4} + \frac{s/2}{(s/(2\delta) - v)^2 + \pi^2 s^2/4} \right] \quad (2.104)$$

Cette intégrale peut se calculer au moyen d'un contour dans le plan complexe. A cause du terme $\sqrt{(v-1)(v+1)}$, il y a une coupure dans le plan complexe sur l'axe réel pour $v \geq 1$ et une autre pour $v \leq -1$. Il s'ensuit que l'intégrale de $f(v)$

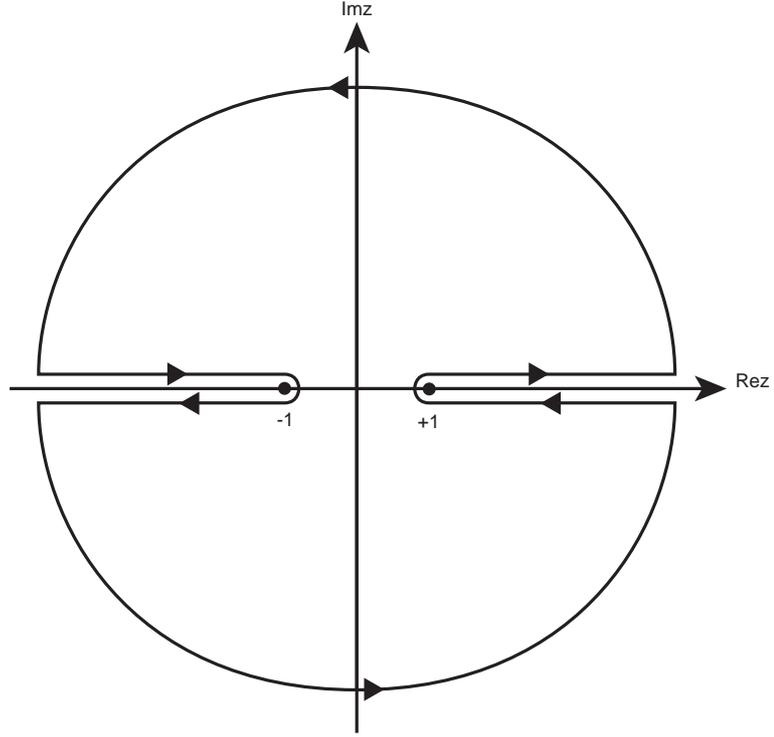


FIG. 2.16 – Contour utilisé dans le plan complexe pour le calcul de l'intégrale apparaissant dans l'équation (2.104).

sur le contour montré dans la figure 2.16, où $f(v)$ est la fonction apparaissant sous l'intégrale de l'équation (2.104), donne $4 \int_1^\infty dv f(v)$. L'intégrale sur le contour se calcule facilement via les résidus de $f(v)$, et tous calculs faits on obtient :

$$N(s) = \frac{(-s)}{(s/2\delta)^2 + (\pi s/2)^2} \left\{ \frac{\pi}{2}s + \Re \left[\left(\frac{s}{2\delta} + i\frac{\pi s}{2} \right) \sqrt{\left(\frac{s}{2\delta} - i\frac{\pi s}{2} \right)^2 - 1} \right] \right\} \quad (2.105)$$

A partir de cette équation, on obtient les comportements asymptotiques de $N(s)$. Pour $s \ll \delta$, on peut développer la racine apparaissant dans la partie réelle. On obtient :

$$N(s) = \frac{\pi s^2}{4} \quad s \ll \delta \quad (2.106)$$

Ce comportement est exactement celui de la distribution de Wigner, et donne des valeurs bien inférieures à celles de la distribution δ -Poisson, pour laquelle $N(s)$ se comporte comme $s^2/(2\delta)$ pour $s \rightarrow 0$. Pour $s \gg \delta$ (et toujours $s \ll 1$), on peut négliger le (-1) dans la racine, et on obtient

$$N(s) = s \quad s \gg \delta \quad (2.107)$$

Il y a donc un changement de comportement (un *crossover*) de $N(s)$ pour s proche de 2δ , qui explique le trou observé pour $N(s)$. La figure 2.17 montre

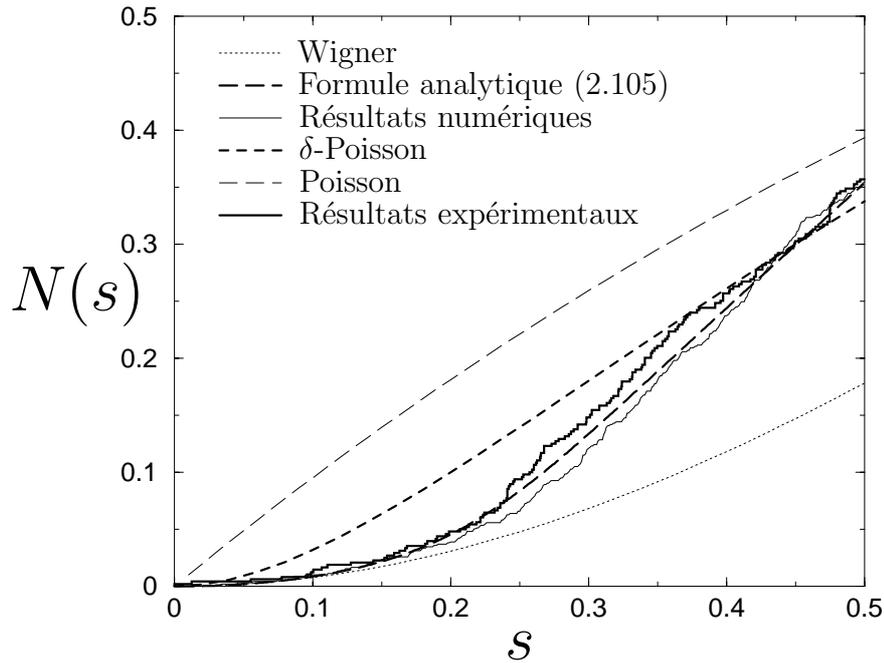


FIG. 2.17 – *Distribution d'espacement cumulative $N(s)$ à petit s pour l'hélium singulet (défaut quantique $\delta = 0, 14$) en champ électrique (énergie réduite $\epsilon = -2, 35$). La courbe épaisse continue montre le résultat expérimental [46], la courbe mince continue le résultat obtenu par un calcul numérique, et la courbe épaisse tiretée montre le résultat du calcul analytique (formule (2.105)). Les distributions Poisson, Wigner et δ -Poisson sont également montrées. Il apparaît clairement que les résultats expérimentaux (et numériques) sont inférieurs à la prédiction δ -Poisson pour $s < 0,4$, et que ce comportement est très bien reproduit par la formule analytique que nous avons obtenue. (Merci à Kees Karremans de m'avoir communiqué ses résultats expérimentaux et numériques.)*

le résultat analytique (2.105) comparé aux résultats obtenus numériquement et expérimentalement pour l'hélium en champ électrique [46]. On voit que l'accord à petit s est très bon, et que le comportement est bien distinct de la distribution δ -Poisson.

2.7.6 Cas de plusieurs défauts quantiques non-nuls

On peut s'interroger également sur les propriétés statistiques des niveaux d'énergie en champ faible d'un atome non-hydrogénoïde qui possède plusieurs défauts quantiques non-nuls. Dans ce cas, c'est l'équation (2.58) qui donne les niveaux d'énergie, à partir de ceux pour l'hydrogène dans le champ (ou bien l'équation équivalente dans le cas à énergie réduite fixée). Cette équation fait apparaître une matrice dont la taille est (généralement) le nombre de défauts quantiques non-nuls (ou la

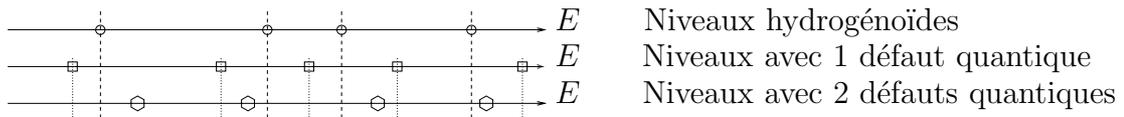


FIG. 2.18 – *Contraintes sur les solutions avec deux défauts quantiques. Les solutions avec deux défauts quantiques δ et δ' alternent avec les solutions pour δ uniquement, qui elles-mêmes alternent avec les solutions sans défaut quantique.*

moitié quand la parité est conservée). Elle ne se prête pas aisément à une analyse des propriétés statistiques de ses solutions, comme l'équation pour un seul défaut quantique non-nul. On peut toutefois s'attendre à ce que, lorsque l'on augmente le nombre de défauts quantiques qui sont importants, la statistique des solutions se rapproche de plus en plus de celle d'un système chaotique. L'argument est le suivant.

Dans le cas d'un seul défaut quantique, l'argument essentiel permettant de prédire un comportement de type demi-Poisson est le fait que les solutions du problème alternent avec les valeurs hydrogénéoides, qui ont une statistique poissonnienne. Ceci n'est plus vrai dans le cas de plusieurs défauts quantiques non-nuls, mais peut être généralisé. Prenons par exemple le cas de deux défauts quantiques δ et δ' importants. La solution obtenue via l'équation (2.58) peut aussi s'obtenir en calculant d'abord la solution avec δ uniquement, et puis ensuite en prenant ces solutions comme point de départ du calcul pour le cas $\delta' \neq 0$. De cette manière, on applique deux fois l'équation pour un seul défaut quantique plutôt que l'équation pour deux défauts quantiques. Ceci n'est pas utile en pratique (il faudrait calculer beaucoup de valeurs propres et fonctions propres avec δ uniquement pour pouvoir calculer quelques solutions avec δ et δ'), mais permet de voir quelles sont les contraintes pour les solutions avec deux défauts quantiques. Les solutions pour δ uniquement alternent nécessairement avec les solutions hydrogénéoides, et les solutions pour δ et δ' alternent avec celles pour δ uniquement. Ceci est illustré sur la figure 2.18. Ceci entraîne qu'il y a au plus deux solutions (du problème avec δ et δ') entre deux niveaux hydrogénéoides voisins, et qu'il peut également n'y en avoir aucune (mais dans les deux cas, ceci ne peut pas se répéter dans deux intervalles hydrogénéoides consécutifs).

Ceci se généralise à un nombre arbitraire de défauts quantiques non-nuls. Il apparaît ainsi que les contraintes imposées aux solutions sont de moins en moins restrictives lorsque le nombre de défauts quantiques importants augmente ⁵. On peut donc s'attendre à ce que la statistique des solutions pour plusieurs défauts quantiques importants soit d'autant plus proche de celle d'un système chaotique que le nombre de défauts quantiques est élevé.

Une vérification de ce comportement a été effectuée dans le cadre du billard

⁵Ajouter un défaut quantique très faible modifie peu la situation, car les solutions avec ce défaut quantique supplémentaire sont nécessairement très proches des solutions sans celui-ci.

avec diffuseur. En augmentant le nombre de diffuseurs présents dans le billard, on observe que la statistique obtenue se rapproche de celle d'un système chaotique [36].

2.8 Lien avec d'autres méthodes

2.8.1 Introduction

Le problème des niveaux excités d'un atome non-hydrogénoïde en champ extérieur faible peut être traité par d'autres méthodes que celle expliquée ici. J'évoquerai d'une part la méthode de la matrice R , qui est d'esprit similaire à notre méthode et qui permet de calculer les solutions du problème, et d'autre part les approches semi-classiques où les propriétés du système classique sont utilisées pour déterminer celles du système quantique.

2.8.2 La méthode de la matrice R

La méthode de la matrice R se base sur la même idée physique que notre méthode. L'espace est séparé en deux zones distinctes, une région interne autour du cœur ionique où l'effet du champ extérieur est négligeable, et où la fonction d'onde s'exprime simplement en terme des défauts quantiques ; et une zone externe, loin du cœur ionique, où l'on a simplement un problème hydrogénoïde. C'est en imposant la compatibilité dans une zone intermédiaire (on choisira la sphère de rayon a) entre les solutions du problème dans ces deux zones que l'on obtient les énergies qui sont solutions. A partir de ce principe, il y a de nombreuses variantes possibles.

La méthode la plus simple conceptuellement consiste à diagonaliser le problème externe en le développant sur une base adaptée (avec un comportement donné sur la sphère de rayon a), puis à utiliser les solutions obtenues pour former une fonction ayant le comportement requis par la solution du problème interne en $r = a$, ce qui fournit les solutions du problème [48]. Le désavantage de cette méthode est qu'il faut calculer un très grand nombre de valeurs propres et vecteurs propres du problème externe pour être à même de construire une fonction ayant le comportement adéquat.

Une méthode plus efficace consiste à diagonaliser le problème externe en incluant la condition aux limites imposée par la fonction interne [7]. Pour ce faire, on ajoute au hamiltonien, pour chaque composante l du moment angulaire, le terme $\delta(r - a)(d/dr - B_l)$ avant de diagonaliser le problème. Le premier terme de cette expression permet de rendre le hamiltonien symétrique sur le domaine $a \leq r \leq \infty$, et dans le second terme B_l est donné par la dérivée logarithmique de la composante l de la fonction interne en $r = a$, qui est fonction du défaut quantique. On utilise ensuite un algorithme⁶ qui permet de calculer un nombre restreint de valeurs

⁶L'algorithme de Lanczos [49]

propres de la matrice considérée dans une région d'énergie donnée. Par rapport à la méthode précédente, on évite donc de calculer un grand nombre de valeurs propres et vecteurs propres pour obtenir les solutions. Cette méthode s'applique aussi bien au problème à champ fixé qu'au problème à énergie réduite fixée, mais est limitée aux états très excités, pour lesquels B_l ne varie pas trop rapidement.

La méthode de résolution exposée dans les sections précédentes présente deux avantages importants par rapport à la méthode de la matrice R. Premièrement, elle nécessite uniquement la diagonalisation du problème pour l'hydrogène dans le champ, pour lequel la matrice à diagonaliser est plus simple que dans le cas de la matrice R. En effet, dans le cas de l'hydrogène, le domaine pour les fonctions de la base employée est $0 \leq r \leq \infty$, ce qui permet d'utiliser les propriétés d'orthogonalité de ces fonctions, qui ne sont plus valables dans le cas de la matrice R où le domaine est $a \leq r \leq \infty$.

Deuxièmement, notre méthode permet de calculer très simplement les solutions pour différents atomes dans le même champ extérieur. Dans le cas de la matrice R, il faut recommencer entièrement le calcul si l'on désire les solutions pour un autre atome dans le même champ extérieur (puisque'il faut changer les défauts quantiques, et donc les B_l). Par contre, avec notre méthode, une fois que les solutions pour l'hydrogène dans le champ sont connues, les solutions pour un atome particulier s'obtiennent simplement en calculant les zéros d'une fonction construite à partir des solutions hydrogénoïdes (la position de chaque zéro étant de plus limitée à un intervalle connu, ce calcul est particulièrement simple). Si l'on change d'atome, c'est-à-dire de défaut quantique, on utilise les mêmes résultats pour l'hydrogène. Il est donc très simple d'examiner le comportement des solutions lorsque l'on fait varier les défauts quantiques.

2.8.3 Méthodes semi-classiques

Description

Les méthodes semi-classiques cherchent à expliquer les propriétés d'un système quantique à partir de celles du système classique correspondant. Pour le problème qui nous occupe, elles ne sont pas utiles pour déterminer les niveaux d'énergie, mais permettent de mieux comprendre le rôle joué par le cœur ionique.

La formule type utilisée dans les approches semi-classiques est la formule de trace de Gutzwiller [23], qui donne la densité d'états $\rho(E)$ du système quantique en fonction des orbites périodiques du système classique :

$$\rho(E) = \rho_0(E) + \sum_k A_k e^{i(S_k/\hbar + \alpha_k)} \quad (2.108)$$

Dans cette formule, $\rho_0(E)$ est la densité d'états moyenne (liée au volume accessible de l'espace des phases), la somme sur k porte sur toutes les orbites périodiques du système, S_k est l'action de l'orbite k : $S_k = 1/(2\pi) \oint \mathbf{p} \cdot d\mathbf{q}$, A_k une amplitude

dépendant des propriétés de l'orbite, et α_k une phase liée à l'indice de Maslov. Comme $\partial S_k/\partial E = T_k$, où T_k est la période de l'orbite k , on voit que chaque orbite ajoute un terme oscillant avec une longueur d'onde $\lambda_k = 2\pi/T_k$. Les termes correspondant aux orbites longues ajoutent donc des oscillations rapides.

Dans la cadre d'un problème à énergie réduite fixée (comme le calcul des niveaux excités d'un atome non-hydrogénoïde en champ magnétique ou électrique), on peut écrire une formule du même type pour les valeurs de \hbar_{eff} solutions du problème (pour un atome en champ magnétique, on a $\hbar_{\text{eff}} = \gamma^{1/3}$). Dans ce cas, le terme S_k/\hbar est remplacé par $\widetilde{S}_k/\hbar_{\text{eff}}$, où \widetilde{S}_k est l'action réduite de l'orbite k (qui est constante). On voit alors qu'en prenant la transformée de Fourier de la partie oscillante de la densité par rapport à $(\hbar_{\text{eff}})^{-1}$, on obtient une série de pics aux valeurs de l'action égales à \widetilde{S}_k , correspondant aux valeurs des actions réduites des orbites classiques. Ceci permet, à partir des résultats d'un calcul quantique, d'obtenir des renseignements concernant les orbites classiques qui contribuent.

Ces méthodes ont tout d'abord été appliquées avec succès au cas de l'hydrogène en champ magnétique. Pour le spectre de photoabsorption à partir d'un état peu excité vers un état très excité, on a une formule du même type que l'équation (2.108), mais dans laquelle on somme sur les orbites fermées passant par le noyau. Ce spectre étant mesuré avec une résolution finie ΔE (qui ne permet pas de voir les niveaux séparément), les oscillations rapides apportées par les orbites longues sont moyennées, ce qui permet de limiter la somme aux orbites de période inférieure à $T_{\text{max}} \simeq \hbar/\Delta E$. En calculant une soixantaine d'orbites fermées classiques, le spectre de photoabsorption expérimental peut être reproduit [50, 51] (et [52] pour une amélioration récente de la méthode).

Rôle du cœur ionique : le core-scattering

La généralisation du calcul du spectre de photoabsorption à partir des orbites fermées au cas d'un atome non-hydrogénoïde en champ extérieur faible, et la comparaison avec le cas hydrogénoïde permettent de voir directement le rôle joué par le cœur ionique. En examinant la transformée de Fourier du spectre de photoabsorption pour un atome non-hydrogénoïde (obtenu par un calcul quantique), il apparaît que la présence du cœur ionique a deux effets. Le cœur peut d'une part modifier l'intensité des pics correspondant aux actions des orbites classiques pour l'hydrogène dans le champ, et d'autre part introduire de nouveaux pics pour des valeurs de l'action qui ne correspondent à aucune orbite hydrogénoïde. Après inspection, on voit que ces actions sont égales à la somme de deux (ou plus) actions d'orbites hydrogénoïdes [7, 53]. Semi-classiquement, ceci s'interprète de la manière suivante. L'électron suit une orbite classique hydrogénoïde. Lorsque celle-ci passe par le noyau, le paquet d'onde électronique est diffusé par le cœur ionique, et l'électron peut suivre maintenant une autre trajectoire hydrogénoïde. La diffusion sur le cœur ionique (on parle de "core scattering") permet d'avoir des orbites fermées qui sont des combinaisons de plusieurs orbites hydrogénoïdes.

Deux méthodes ont été utilisées pour adapter la théorie des orbites fermées en tenant compte de l'effet du cœur ionique. La première [54] consiste à modéliser le cœur par un potentiel classique, et à utiliser les orbites fermées obtenues avec ce potentiel. Si elle permet d'obtenir des pics aux actions correspondant à la combinaison d'orbites hydrogénoïdes, cette méthode présente deux inconvénients. Premièrement, à cause du potentiel non-hydrogénoïde près du cœur, le nombre d'orbites classiques est beaucoup plus grand que dans le cas hydrogénoïde, ce qui rend le calcul plus complexe. D'autre part, l'utilisation d'un potentiel classique pour le cœur ne peut pas donner des résultats quantitativement corrects. En effet, un électron d'énergie $E \simeq 0$ a une longueur d'onde près du cœur de l'ordre de 1 (en u.a.), ce qui est du même ordre de grandeur que la taille du cœur. Ceci signifie qu'il n'est pas possible d'appliquer une théorie semi-classique pour rendre compte quantitativement de l'effet du cœur puisqu'elle nécessite un potentiel aux variations lentes à l'échelle de la longueur d'onde de l'électron. Ici, la longueur d'onde de l'électron et la longueur de variation du potentiel étant du même ordre, l'inégalité requise pour l'approximation semi-classique est violée, mais pas fortement (la longueur d'onde de l'électron n'étant pas très grande devant la longueur de variation du potentiel), et l'approximation semi-classique peut donc donner des résultats qualitativement corrects. Notons que le problème est différent lorsque l'on considère un atome purement hydrogénoïde. En effet, on peut régulariser la divergence en $1/r$ du potentiel hydrogénoïde en passant aux coordonnées semi-paraboliques, et obtenir un potentiel constant dans ces coordonnées, ce qui justifie l'utilisation de l'approximation semi-classique dans le cas hydrogénoïde. L'utilisation de ces mêmes coordonnées en présence d'un cœur ionique mène à un potentiel variant de quelques unités sur la taille du cœur (quelques unités atomiques), et l'approximation semi-classique reste donc fautive.

La seconde méthode [55] consiste à traiter la diffusion sur le cœur quantiquement, en écrivant la fonction d'onde près du cœur en termes d'ondes incidentes et réfléchies dont le déphasage dépend en partie du défaut quantique. En imposant la compatibilité entre cette fonction d'onde et celle obtenue semi-classiquement à partir des orbites hydrogénoïdes classiques, on obtient la fonction d'onde près du cœur en fonction des orbites hydrogénoïdes et des défauts quantiques. Cette procédure est l'équivalent semi-classique de la méthode quantique exposée plus haut, où les énergies étaient obtenues en exigeant la compatibilité entre la fonction d'onde imposée par les défauts quantiques et la fonction de Green pour l'hydrogène dans le champ extérieur. Ceci permet alors de calculer le spectre de photoabsorption. Cette méthode permet de reproduire quantitativement les spectres obtenus par un calcul entièrement quantique.

A partir de l'image de la diffusion par le cœur développée ci-dessus, il apparaît clairement que l'on n'a pas un système chaotique au sens traditionnel du terme. L'électron excité suit uniquement des trajectoires hydrogénoïdes (qui, puisque le système hydrogénoïde est régulier, correspondent à des tores invariants), et le pas-

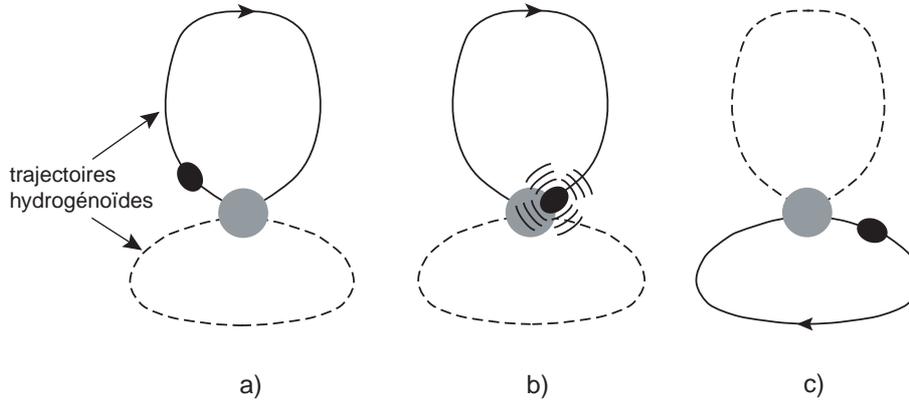


FIG. 2.19 – Illustration du “torus-hopping”. Le paquet d’onde électronique (en noir) suit une trajectoire hydrogénoïde (a). Quand il arrive sur le cœur ionique (en gris), il est diffusé (b). Il peut alors suivre une autre trajectoire hydrogénoïde (c).

sage par le cœur lui permet de changer de trajectoire (on parle de “torus hopping”, voir figure 2.19).

C’est uniquement la diffusion sur le cœur qui rend le système non-régulier. Et comme le montre l’argument semi-classique exposé dans la section suivante, le temps moyen entre deux diffusions par le cœur (que l’on note T_{coll} , pour “temps de collision”) est de l’ordre de T_H , le temps de Heisenberg du système. Celui-ci est donné par $T_H = (2\pi)\hbar/\Delta E$, où ΔE est l’espacement moyen entre niveaux, et c’est semi-classiquement le temps caractéristique le plus long du système. La diffusion de l’électron par le cœur est donc trop peu fréquente pour que, à l’échelle du temps de Heisenberg, le système soit chaotique. C’est précisément parce que le temps de collision et le temps de Heisenberg sont du même ordre que l’on a un système intermédiaire entre un système chaotique et un système régulier, avec une statistique de niveau intermédiaire, de type demi-Poisson. Si l’on avait $T_{coll} \ll T_H$ (c’est le cas lorsque le nombre de défauts quantiques non-nuls devient important), les collisions avec le cœur ionique seraient nombreuses à l’échelle du temps de Heisenberg, et l’effet du cœur ionique serait alors suffisant pour rendre le système totalement chaotique, avec une statistique de niveaux de type GOE. A l’opposé, si l’on avait $T_{coll} \gg T_H$ l’effet des collisions serait négligeable, et le système serait régulier, avec une statistique de niveaux poissonnienne.

Argument montrant que $T_{coll} \sim T_H$

Nous raisonnons dans l’espace des phases du système. Considérons (assez grossièrement) que la densité est constante dans l’espace des phases (hypothèse ergodique) :

$$\rho(\mathbf{p}, \mathbf{q}; E) = \frac{1}{\bar{\rho}(E)} \delta(H(\mathbf{p}, \mathbf{q}) - E) \quad (2.109)$$

où $H(\mathbf{p}, \mathbf{q})$ est le hamiltonien du système. Cette distribution est normalisée, car $\int d\mathbf{p}d\mathbf{q}\delta(H(\mathbf{p}, \mathbf{q}) - E) = \bar{\rho}(E)$ où $\bar{\rho}(E)$ est la densité d'états moyenne du système. On a

$$T_H(E) = (2\pi)\frac{\hbar}{\Delta E} = (2\pi)\hbar\bar{\rho}(E) = (2\pi)\bar{\rho}(E) \quad (\hbar = 1) \quad (2.110)$$

et donc :

$$\rho(\mathbf{p}, \mathbf{q}; E) = \frac{(2\pi)}{T_H(E)}\delta(H(\mathbf{p}, \mathbf{q}) - E) \quad (2.111)$$

On considère un cœur de taille 1 (en u.a.). Il y a collision entre l'électron et le cœur dès que $|\mathbf{q}| \leq 1$. Le volume de l'espace des phases correspondant à la collision est donc V_{coll} , donné par :

$$V_{coll} = \int d\mathbf{p} \int_{|\mathbf{q}| \leq 1} d\mathbf{q} \frac{(2\pi)}{T_H(E)} \delta(H(\mathbf{p}, \mathbf{q}) - E) \quad (2.112)$$

Pour $|\mathbf{q}| \leq 1$, on peut dans le hamiltonien négliger le champ extérieur devant l'énergie cinétique et le potentiel coulombien. On a donc :

$$\begin{aligned} V_{coll} &= (32\pi^3)\frac{1}{T_H(E)} \int_0^\infty dp p^2 \int_0^1 dq q^2 \delta\left(\frac{p^2}{2} - \frac{1}{q} - E\right) \\ &= (32\pi^3)\frac{1}{T_H(E)} \int_0^1 dq q^2 \sqrt{2}\sqrt{\frac{1}{q} + E} \end{aligned} \quad (2.113)$$

Puisque $|E| \ll 1$, on peut négliger E devant $1/q$. L'intégrale est alors ~ 1 , et on a :

$$V_{coll} \sim \frac{1}{T_H} \quad (2.114)$$

L'événement "collision" correspond donc à une fraction de l'ordre de $1/T_H$ de l'espace des phases. Puisqu'on a supposé que le système est ergodique (équation (2.109)), cela signifie que l'électron passe une fraction du temps de l'ordre de $1/T_H$ dans le cœur. Comme le temps de traversée du cœur est de l'ordre de 1 (cœur de rayon 1, et $p^2/2 - 1/q \simeq E \simeq 0$), cela signifie que le temps entre deux collisions avec le cœur est de l'ordre de T_H .

Notons que cet argument est indépendant de la dimension de l'espace des phases, et s'applique donc aussi bien au cas d'un atome dans un seul champ électrique ou magnétique (deux degrés de liberté, espace des phases de dimension quatre) qu'au cas d'un atome dans des champs croisés (trois degrés de liberté, espace des phases de dimension six).

Remarquons enfin que cet argument montre que le système se rapproche d'un système chaotique lorsque le nombre de défauts quantiques augmente (cf. section 2.7.6). En effet, lorsque le nombre de défauts quantiques croît, la taille de cœur augmente. Ceci entraîne que la fraction d'espace des phases associée à la collision augmente, ce qui signifie que le temps moyen entre deux collisions diminue⁷.

⁷Le temps de traversée du cœur augmente également avec la taille du cœur, mais moins vite

que V_{coll} .

Deuxième partie

**Rétrodiffusion cohérente sur des
atomes**

Note orthographique

Final, finale, als, ales : Qui est à la fin, qui sert de fin
(extrait du Petit Robert, édition 1967)

Nous écrirons donc, au masculin pluriel, **finals**. En particulier, nous serons amenés à parler des états initiaux et des états **finals**.

Introduction

La diffusion multiple d'ondes dans un milieu désordonné est un problème important pour différents domaines de la physique décrivant des phénomènes ondulatoires, comme l'optique, l'acoustique ou la mécanique quantique. Dans de nombreux cas, le caractère désordonné du milieu diffusant l'onde détruit tous les effets des interférences [56]. Toutefois, il y a également des situations où la prise en compte des effets des interférences est essentielle. C'est le cas par exemple de la localisation d'Anderson [57], pour laquelle les interférences sont suffisamment fortes pour empêcher la propagation de l'onde dans le milieu et mener à un état localisé. Un autre effet dû aux interférences, plus aisé à observer expérimentalement, est l'augmentation cohérente de la rétrodiffusion, qui peut se voir comme un effet précurseur de la localisation d'Anderson. Cet effet a été largement étudié depuis le milieu des années 1980, principalement pour la diffusion multiple de la lumière [58, 59].

L'observation de la rétrodiffusion cohérente - et de la localisation d'Anderson - nécessite un milieu fortement diffusant. A ce titre, l'utilisation d'atomes comme diffuseurs des ondes électromagnétiques semble très prometteuse : un atome est un très bon diffuseur, présentant des transitions résonantes étroites, avec une section efficace à résonance importante, de l'ordre du carré de la longueur d'onde, qui est très grande devant la taille de l'atome. Expérimentalement, l'utilisation d'atomes comme diffuseurs est possible grâce aux progrès récents concernant le contrôle et la manipulation de gaz d'atomes froids, dont un des aboutissements est l'observation de la condensation de Bose-Einstein [60, 61].

D'un point de vue théorique, dans le cadre de la diffusion multiple, les atomes sont généralement représentés par des diffuseurs ponctuels dipolaires (aussi appelés diffuseurs résonants de Rayleigh) [62, 15]. Ce point de vue rend bien compte du caractère résonant de la diffusion par une transition atomique donnée, mais néglige totalement la structure interne de l'atome. Pour une transition donnée, tant le niveau fondamental que le niveau excité présentent, en l'absence de champ magnétique, une dégénérescence importante. Ceci entraîne que la diffusion de la lumière par un atome est plus complexe que pour un diffuseur ponctuel dipolaire. Cette différence a des conséquences importantes sur les processus d'interférence en régime de diffusion multiple, et en particulier sur la rétrodiffusion cohérente. L'objet de cette partie est la compréhension du rôle de la structure interne atomique sur la rétrodiffusion cohérente.

Ce travail a été motivé par un résultat expérimental récent : l'observation de l'augmentation cohérente de la rétrodiffusion par un gaz d'atomes de rubidium refroidis [63, 64]. Les résultats de cette expérience sont très différents de ceux obtenus pour la rétrodiffusion cohérente sur des diffuseurs classiques, avec pour les atomes des facteurs d'augmentation nettement plus faibles. Nous verrons que ces résultats expérimentaux surprenants peuvent être compris en calculant exactement l'intensité de diffusion simple et de diffusion double pour un milieu atomique désordonné,

en tenant compte de la structure interne atomique. Ces résultats montrent que c'est la structure interne atomique qui est la cause de la réduction des effets d'interférence et donc du facteur d'augmentation.

Cette partie est composée des chapitres 3 à 6. Le chapitre 3 introduit les concepts généraux de la diffusion multiple d'ondes dans un milieu désordonné, qui seront utilisés dans la suite. Les chapitres suivants sont explicitement consacrés à l'augmentation cohérente de la rétrodiffusion. Le chapitre 4 est consacré au traitement de la rétrodiffusion cohérente pour des diffuseurs ponctuels usuels. Les formules explicites pour la diffusion simple et la diffusion double pour un milieu désordonné contenant ces diffuseurs sont présentées. Le chapitre 5 présente le calcul perturbatif de l'intensité de diffusion simple par un atome et de la diffusion double par deux atomes, au moyen de la théorie de la diffusion. Le chapitre 6 combine alors les résultats des chapitres 4 et 5 pour calculer l'intensité diffusée par un milieu atomique désordonné, en se limitant à la diffusion simple et à la diffusion double. Ce calcul permet de comprendre le rôle de la structure interne atomique sur les facteurs d'augmentation de la rétrodiffusion, et explique les résultats obtenus expérimentalement.

Chapitre 3

La diffusion multiple dans un milieu désordonné

3.1 Introduction

Alors que les chapitres suivants sont consacrés explicitement à l'étude de l'augmentation cohérente de la rétrodiffusion (sur des diffuseurs ponctuels classiques dans le chapitre 4, puis sur des atomes dans le chapitre 6), ce chapitre préliminaire s'attache à d'écrire le cadre général de la diffusion multiple d'une onde dans un milieu désordonné, et à montrer l'intérêt d'utiliser des atomes comme diffuseurs. La diffusion multiple dans un milieu désordonné concerne tous les types d'onde : ondes électromagnétiques, électrons dans un solide, ondes acoustiques, ondes sismiques, etc [65, 66, 67, 68]. Dans la discussion qui suit, nous aurons à l'esprit la diffusion multiple de la lumière, mais la plupart des notions présentées ici s'appliquent *mutatis mutandis* aux autres types d'ondes.

Ce chapitre introduit dans un premier temps les concepts essentiels pour la diffusion multiple en milieu désordonné. Après avoir introduit la série de diffusion multiple et le libre parcours moyen, on discute les relations entre les diverses longueurs caractéristiques du problème. Ensuite, on explique l'existence du speckle et on introduit l'intensité incohérente. Enfin, on montre qu'il est faux de toujours négliger, en moyenne, les effets d'interférence entre les chemins de diffusion multiple en donnant le principe de l'augmentation cohérente de rétrodiffusion (qui sera largement détaillée dans le chapitre 4).

Dans un deuxième temps, on montre qu'il est intéressant d'utiliser des atomes comme diffuseurs. On détaille tout d'abord les avantages des atomes par rapport à des diffuseurs classiques. On discute ensuite les deux principaux effets nouveaux dus à l'utilisation d'atomes : le rôle de la structure interne, et la saturation de la transition atomique. Enfin, on étudie le rôle de l'effet Doppler, et on montre qu'il est nécessaire d'utiliser des atomes refroidis pour observer des effets cohérents en diffusion multiple.

3.2 Série de diffusion multiple - Ordres de diffusion

Lorsqu'une onde est incidente sur un milieu désordonné contenant des diffuseurs¹, l'intensité diffusée hors du milieu dans une direction donnée résulte de l'interférence entre toutes les ondes partielles diffusées par les différents diffuseurs du milieu :

$$I = \left\| \sum_p a_p \right\|^2 \quad (3.1)$$

(où a_p est l'amplitude d'une onde partielle). Parmi toutes les ondes partielles, certaines sont diffusées une seule fois à l'intérieur du milieu, et d'autres sont diffusées plusieurs fois. On définit l'ordre de diffusion d'une onde partielle comme le nombre de diffusions qu'elle subit dans le milieu avant d'en sortir. On peut alors écrire l'intensité diffusée dans une direction donnée sous la forme d'un développement en série en fonction de l'ordre de diffusion :

$$I = \left\| \sum_p a_p^{(1)} + \sum_p a_p^{(2)} + \sum_p a_p^{(3)} + \dots \right\|^2 \quad (3.2)$$

Dans cette formule, $\sum_p a_p^{(1)}$ est la somme des amplitudes de toutes les ondes partielles résultant d'une diffusion unique de l'onde incidente dans le milieu (on parlera de diffusion simple), $\sum_p a_p^{(2)}$ est la somme des amplitudes de toutes les ondes partielles résultant de deux diffusions successives de l'onde incidente dans le milieu (on parlera de diffusion double), etc. Le régime de diffusion multiple correspond au cas où la contribution de toutes les ondes partielles diffusées plus d'une fois est dominante (ou au minimum aussi importante) par rapport à la contribution de celles diffusées une seule fois. Dans ce régime, on peut dire que, typiquement, l'onde incidente est diffusée plusieurs fois avant de sortir du milieu.

3.3 Libre parcours moyen

Un concept très important dans le cadre de la diffusion multiple est le libre parcours moyen. Il décrit l'effet moyen de la diffusion par le milieu sur onde s'y propageant. Nous noterons ℓ le libre parcours moyen de diffusion². Il correspond à la distance moyenne entre deux diffusions dans le milieu. Si n_d est la densité de

¹ C'est le terme générique que nous utiliserons pour parler des "objets diffusants" présents dans le milieu : billes, cylindres, etc. d'un matériau donné inclus dans un autre matériau, impuretés, ou même variation continue de la densité du milieu.

² On peut en définir beaucoup d'autres : libre parcours moyen de transport, d'extinction, d'absorption, etc. Voir section 4.4.2

diffuseurs, et σ leur section efficace, on a

$$\ell = \frac{1}{n_d \sigma} \quad (3.3)$$

Comme nous le verrons dans la suite, le libre parcours moyen correspond à la partie imaginaire de l'indice moyen du milieu avec les diffuseurs, et rend compte de la décroissance exponentielle de l'amplitude de l'onde se propageant dans le milieu sur une distance caractéristique ℓ .

L'introduction du libre parcours moyen, c'est-à-dire de l'effet moyen des diffuseurs, est un moyen puissant et physiquement justifié de faire converger la somme sur toutes les ondes partielles dans le milieu (par exemple l'équation (3.2)). Si l'on considère par exemple des diffuseurs dans le vide (ou dans un milieu d'indice donné), on pourrait imaginer de calculer l'amplitude d'une onde partielle comme une succession de propagations dans le vide et de diffusions par les diffuseurs. Toutefois, ce point de vue mène à de sérieuses difficultés techniques, notamment à des divergences (qui en réalité doivent se compenser). Ces difficultés disparaissent quand on considère que la propagation se fait dans un milieu d'indice moyen rendant compte de l'effet des diffuseurs, et donc en introduisant le libre parcours moyen. On peut montrer que cette manière de faire est rigoureuse³ [69].

3.4 Longueurs caractéristiques du problème

Plusieurs longueurs différentes interviennent dans le problème que l'on considère. Ce sont :

- la longueur d'onde λ de l'onde dans le milieu (le vecteur d'onde associé est $k = \lambda/(2\pi)$)
- la distance moyenne entre les diffuseurs, donnée par $n_d^{-1/3}$
- le libre parcours moyen ℓ dans le milieu
- la longueur caractéristique du milieu, que l'on note L

Pour le régime de diffusion multiple qui nous occupera dans la suite, on a la hiérarchie suivante pour ces longueurs :

$$\lambda \ll n_d^{-1/3} \ll \ell \ll L \quad (3.4)$$

L'inégalité $\lambda \ll n_d^{-1/3}$ (ou encore $n_d \lambda^3 \ll 1$) signifie que la densité de diffuseurs est faible, et que la distance typique entre deux diffuseurs est grande devant λ . Cette hypothèse a une conséquence très importante concernant les amplitudes des différentes ondes partielles. Si l'on considère deux ondes partielles dont les

³C'est relativement simple dans le cas d'un milieu diffusant infini, avec une densité constante de diffuseurs. Dans un cas plus général, la définition du libre parcours moyen a un sens physique tant que la densité de diffuseurs ne varie pas trop rapidement, c'est-à-dire peu à l'échelle du libre parcours moyen lui-même.

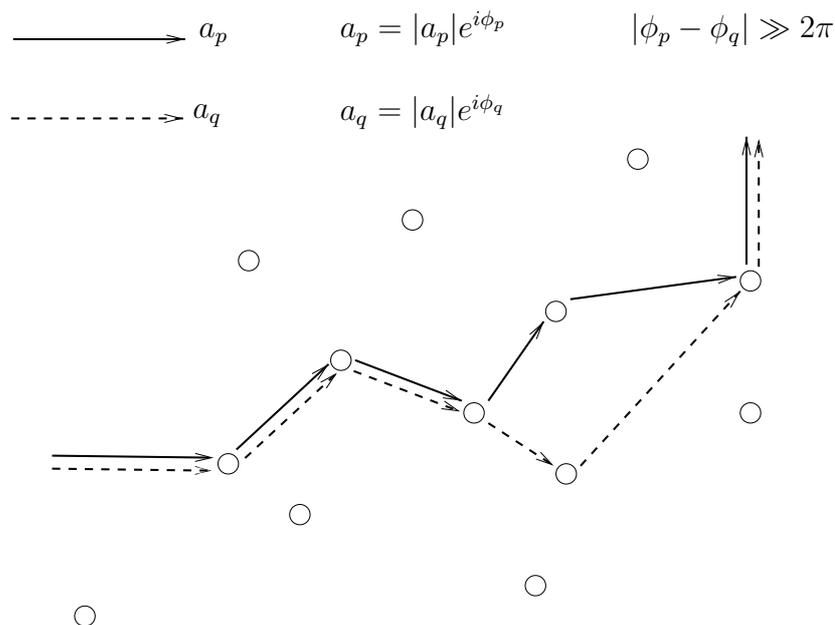


FIG. 3.1 – Deux chemins de diffusion (d’amplitudes a_p et a_q) qui ne diffèrent que par un seul diffuseur. La distance moyenne entre les diffuseurs étant grande devant λ , la différence de phase entre les deux chemins est grande devant 2π . Les positions des diffuseurs n’étant pas corrélées, on voit que les phases des chemins qui ne passent pas par les mêmes diffuseurs sont non-corrélées.

chemins de diffusion (c’est-à-dire la représentation géométrique du parcours de l’onde partielle dans le milieu) diffèrent par un diffuseur (ou plusieurs), alors la différence de phase entre ces deux ondes partielles sera grande devant 2π (voir figure 3.1). Comme les positions des différents diffuseurs sont par hypothèse non corrélées, cela signifie que les phases des chemins de diffusion qui diffèrent par un diffuseur (ou plus) sont non corrélées. Ceci nous permettra de négliger, en moyenne, les interférences entre les chemins de diffusion qui ne passent pas par les mêmes diffuseurs.

L’inégalité $n_d^{-1/3} \ll \ell$ s’écrit encore, en utilisant l’équation (3.3), $\sigma \ll n_d^{-2/3}$. Elle signifie que les diffuseurs sont suffisamment éloignés les uns des autres pour que leurs sections efficaces ne se recouvrent pas. Ceci permet de négliger la contribution des chemins de diffusion qui passent plus d’une fois par le même diffuseur (que l’on regroupe sous le terme de diffusion récurrente). On peut en effet montrer que la contribution de ces chemins est au moins d’un ordre plus élevé en $(n_d^{-1/3}/\ell)$ que celle des chemins qui ne passent au plus qu’une fois par chaque diffuseur [70, 71].

L’inégalité $\lambda \ll \ell$, ou encore $k\ell \gg 1$, signifie que l’on se place dans le régime de localisation faible. Comme nous le verrons dans la suite, il y a dans ce régime des effets physiques dus à l’interférence entre les chemins de diffusion multiple malgré le désordre, que l’on regroupe sous le terme de localisation faible. Ce régime est à

distinguer du régime de localisation forte, caractérisé par $k\ell \leq 1$, dans lequel les effets d'interférence entre les chemins de diffusion multiple sont suffisamment forts pour inhiber la propagation de l'onde dans le milieu et mener à des états localisés - c'est la localisation d'Anderson [57]. Bien que les résultats que nous obtiendrons dans la suite pour la diffusion multiple sur des atomes concernent le régime de localisation faible, les effets nouveaux qui y sont présentés sont certainement également pertinents pour le passage à la localisation forte.

Enfin, l'inégalité $\ell \ll L$ signifie simplement que l'on se place en régime de diffusion multiple. Nous utiliserons l'expression épaisseur optique pour désigner le rapport L/ℓ . Se placer à grande épaisseur optique (c'est-à-dire $\ell \ll L$) signifie que l'onde est typiquement diffusée plusieurs fois avant de sortir du milieu, et donc que l'on est bien en régime de diffusion multiple.

Dans la suite, nous nous intéressons au cas où les diffuseurs sont des atomes, que l'on peut considérer comme des diffuseurs ponctuels (leur taille est négligeable devant la longueur d'onde λ de l'onde diffusée). Il est intéressant d'examiner les inégalités ci-dessus dans le cas particulier des diffuseurs ponctuels. A cause de son caractère ponctuel, la section efficace maximale d'un tel diffuseur est de l'ordre de λ^2 . Si $\sigma \sim \lambda^2$, on voit que dès que la distance typique entre deux diffuseurs devient de l'ordre de λ (c'est-à-dire $\lambda \sim n_d^{-1/3}$), les sections efficaces des diffuseurs commencent à se recouvrir ($\sigma \sim n_d^{-2/3}$, c'est-à-dire $n_d^{-1/3} \sim \ell$). On voit donc que dans ce cas, les deux premières inégalités ($\lambda \ll n_d^{-1/3}$ et $n_d^{-1/3} \ll \ell$) sont équivalentes. Ceci montre que, pour des diffuseurs ponctuels, la transition vers la localisation forte $\ell \sim \lambda$ s'accompagne nécessairement de $n_d^{-1/3} \sim \ell$ et donc qu'on ne peut plus négliger l'effet de la diffusion récurrente. Si la section efficace des diffuseurs n'est pas maximale ($\sigma \sim \alpha\lambda^2$, avec $\alpha \ll 1$), alors la deuxième inégalité ($\sigma \ll n_d^{-2/3}$, ou encore $\sqrt{\alpha}\lambda \ll n_d^{-1/3}$) découle immédiatement de la première ($\lambda \ll n_d^{-1/3}$).

3.5 Speckle - Intensité incohérente

Considérons à nouveau l'expression de l'intensité en fonction des amplitudes des ondes partielles :

$$I = \left\| \sum_p a_p \right\|^2 \quad (3.5)$$

Dans le module carré, on peut séparer les termes diagonaux des termes croisés

$$I = \sum_p \|a_p\|^2 + \sum_p \sum_{q \neq p} a_p^* a_q \quad (3.6)$$

Le premier terme, que nous appellerons intensité incohérente, est la somme des contributions de chaque onde partielle séparément (ou encore de l'interférence de

chaque onde partielle avec elle-même). Le deuxième terme contient la somme de toutes les interférences entre les ondes partielles. Comme nous l'avons vu, l'hypothèse $\lambda \ll n_d^{-1/3}$ implique que les phases des différentes ondes partielles (ou chemins de diffusion) ne sont pas corrélées. L'interférence entre deux ondes partielles est donc aléatoire (elle peut être positive ou négative) et le deuxième terme est donc une somme de variables aléatoires non corrélées. Les phases des différents chemins de diffusion variant de manière non corrélée lorsque la direction du faisceau sortant (ou sa fréquence) est modifiée, on observe, pour une configuration donnée des diffuseurs, une intensité qui fluctue fortement suivant la direction de sortie (ou la fréquence) du faisceau diffusé. Cette fluctuation rapide est dénommée tavelure, ou en Anglais *speckle*. Remarquons que ce n'est pas un phénomène spécifique au régime de diffusion multiple : il est couramment observé pour des milieux désordonnés optiquement minces, pour lesquels seule la diffusion simple contribue de manière importante.

Lorsque l'on moyenne l'intensité sur la position des diffuseurs, on s'attend à ce que toutes les interférences s'annulent, à cause de la non-corrélation des différents chemins de diffusion. L'intensité observée se réduit alors à l'intensité incohérente qui varie lentement avec la direction de sortie du faisceau diffusé, cette variation étant fonction de la géométrie du milieu. Expérimentalement, la moyenne sur les positions des diffuseurs (moyenne sur le désordre) se fait soit naturellement, comme par exemple pour des diffuseurs en suspension dans un liquide, ou bien s'obtient en faisant explicitement fluctuer le milieu diffusant (cas d'un solide).

3.6 Principe de l'augmentation cohérente de rétrodiffusion

Nous venons de voir qu'il est naturel, lorsque l'on s'intéresse à l'intensité obtenue en moyenne sur les positions des diffuseurs, de négliger toutes les interférences entre les différents chemins de diffusion. Il y a toutefois un cas où ceci est faux : lorsque l'on s'intéresse à l'intensité rétrodiffusée, c'est-à-dire à l'intensité diffusée dans la direction opposée à la direction incidente. En effet, si l'on considère un chemin de diffusion multiple donné, et le chemin qui passe par les mêmes diffuseurs mais en sens inverse, il est clair que ces deux chemins ont des amplitudes de diffusion corrélées, quelle que soit la configuration des diffuseurs. A rétrodiffusion, ces deux chemins ont des amplitudes de diffusion égales (même module, même phase) (voir figure 3.2). L'interférence entre ces deux chemins est donc parfaitement constructive, quelle que soit la configuration des diffuseurs qui les composent. Cette interférence survit donc à la moyenne sur les positions, et la contribution de cette paire de chemins à l'intensité est le double de la contribution incohérente des deux chemins.

On s'attend donc à observer une intensité double à rétrodiffusion par rapport à

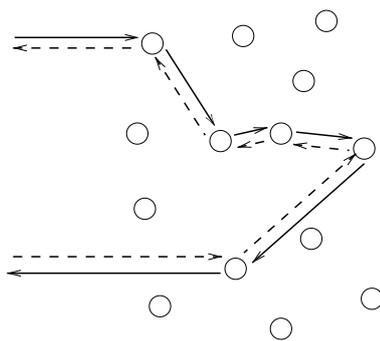


FIG. 3.2 – *Illustration du principe de l’augmentation cohérente de rétrodiffusion. Un chemin de diffusion donné (illustré ici par les flèches pleines), et le chemin associé passant par les mêmes diffuseurs mais en ordre inverse (flèches tiretées) ont des amplitudes de diffusion corrélées, quelle que soit la configuration des diffuseurs. A rétrodiffusion (comme c’est le cas sur la figure), leurs amplitudes de diffusion sont égales. L’interférence entre ces deux chemins à rétrodiffusion est donc parfaitement constructive, ce qui mène à une augmentation d’un facteur 2 de l’intensité à rétrodiffusion.*

l’intensité diffusée dans une direction quelconque. Cette augmentation cohérente de la rétrodiffusion, qui montre que l’on peut observer des effets dus à l’interférence entre des chemins de diffusion multiple dans un milieu désordonné, constitue le sujet essentiel des chapitres suivants.

3.7 Pourquoi utiliser des atomes comme diffuseurs ?

3.7.1 Introduction

Les effets de la localisation faible sur la diffusion multiple de la lumière sont généralement étudiés avec des diffuseurs complexes (diffuseurs de Mie d’une taille comparable à la longueur d’onde, comme dans les peintures, solides comme le teflon ou le polystyrène, lait, brouillard, ...). Toutefois, on peut également envisager d’utiliser des atomes comme diffuseurs. Ainsi, une expérience récente effectuée à Nice [63, 64] a permis d’observer l’augmentation cohérente de rétrodiffusion sur un gaz d’atomes de Rubidium refroidis. Cette expérience a mis en avant des résultats surprenants, que le traitement théorique présenté dans ce travail permet de comprendre.

Nous allons voir dans un premier temps que l’utilisation d’atomes comme diffuseurs présente plusieurs avantages par rapport aux diffuseurs usuels. Ensuite, nous verrons que des effets nouveaux apparaissent lorsque des atomes sont utilisés, effets dont l’importance est grande sur le processus de diffusion multiple.

Enfin, nous verrons quel est le rôle du mouvement des atomes, et pourquoi il est nécessaire d'utiliser des atomes refroidis pour observer l'augmentation cohérente de rétrodiffusion.

3.7.2 Avantages de l'utilisation d'atomes comme diffuseurs

L'utilisation d'atomes comme diffuseurs, plutôt que les diffuseurs macroscopiques usuels, présente plusieurs avantages :

- Les atomes ayant une taille très petite devant la longueur d'onde λ du rayonnement incident (une fraction de nanomètre devant quelques centaines de nanomètres, typiquement), ils peuvent être traités à une excellente approximation comme des diffuseurs ponctuels, ce qui rend quasiment exacts les calculs effectués avec ces diffuseurs.
- Les atomes sont des diffuseurs fortement résonants. A résonance, leur section efficace est importante (de l'ordre de λ^2). Cette section efficace importante permet de se placer facilement en régime de diffusion multiple. De plus, cette résonance est très étroite (typiquement, une largeur de quelques MHz, pour une fréquence de résonance $\sim 10^{14}$ Hz). Ceci permet d'une part de négliger tous les niveaux atomiques autres que les deux niveaux concernés par la transition résonante ; ces deux niveaux ayant un moment angulaire fixé (niveaux de structure fine ou hyperfine), la transition résonante est une transition entre deux niveaux de moment angulaire fixé. Comme expliqué ci-dessous, la dégénérescence de chacun de ces niveaux entraîne des effets nouveaux. D'autre part, l'étroitesse de la résonance permet de modifier très simplement la section efficace des atomes. Il suffit de désaccorder la fréquence laser de quelques MHz pour diminuer fortement la section efficace, et modifier notablement l'épaisseur optique du milieu.
- Les atomes sont naturellement tous identiques (même fréquence de résonance, même largeur, etc. pour tous les atomes), et forment donc un échantillon parfaitement monodisperse, ce qui est difficile à réaliser avec des diffuseurs macroscopiques fortement résonants.

Tous ces avantages montrent l'intérêt d'utiliser des atomes comme diffuseurs dans les expériences de diffusion multiple de la lumière. Les progrès réalisés ces dernières années sur le contrôle et le refroidissement des atomes [72] permettent d'étudier de manière approfondie les propriétés de transport dans les milieux atomiques froids. Les atomes étant de très bons diffuseurs, un gaz d'atomes froids est un bon candidat pour l'observation de la transition vers la localisation forte, qui a lieu quand les interférences deviennent suffisamment importantes pour empêcher la propagation de l'onde lumineuse dans le milieu. En particulier, les condensats de Bose-Einstein [60] constituent des systèmes atomiques particuliers, dont les propriétés de transport en diffusion multiple restent encore largement à étudier. La compréhension des effets particuliers dus à l'utilisation d'atomes pour l'étude de la diffusion multiple (pour la localisation faible, ou la transition vers la localisation

forte) est donc indispensable, et constitue la motivation essentielle de ce travail.

3.7.3 Effets nouveaux dus à l'utilisation d'atomes

Il y a essentiellement deux effets nouveaux qui apparaissent lorsque l'on utilise des atomes comme diffuseurs. Tout d'abord, il y a la dégénérescence des niveaux atomiques concernés par la transition. Comme expliqué ci-dessus, l'étalement de la résonance permet de considérer que seuls deux niveaux atomiques, de moment angulaire fixé, interviennent⁴. Mais en l'absence de champ magnétique extérieur, chacun de ces niveaux est dégénéré : si J_g est le moment angulaire du niveau fondamental de la transition, alors ce niveau est constitué de $(2J_g+1)$ niveaux dégénérés, caractérisés par le nombre quantique magnétique m_g ($-J_g \leq m_g \leq J_g$). Il en va de même pour le niveau excité de moment angulaire J_e ($(2J_e+1)$ sous-niveaux dégénérés, caractérisés par m_e). La situation est illustrée sur la figure 3.3 pour le cas $J_g = 2$ et $J_e = 3$. Ceci signifie que les nombres quantiques m_g et m_e spécifiant l'état d'un atome donné apparaissent comme des degrés de liberté supplémentaires, qui modifient l'image de la rétrodiffusion cohérente valable pour des diffuseurs classiques. L'effet très important de cette structure interne, dont la compréhension est indispensable pour l'analyse des résultats expérimentaux, est l'objet essentiel de la suite de ce travail. La dégénérescence du niveau fondamental permet à l'atome d'effectuer deux types différents de transition lors de la diffusion d'un photon. D'une part, la diffusion d'un photon sans changement d'état interne, où l'atome effectue une **transition Rayleigh** (en haut sur la figure 3.3). Et d'autre part la diffusion d'un photon avec un changement d'état interne ($\Delta m = -2, -1, +1, +2$) où l'atome effectue une **transition Raman dégénérée** (en bas sur la figure 3.3), l'état final après diffusion ayant la même énergie que l'état initial. L'influence importante de cette structure interne sur les résultats observés montre que l'image usuelle des atomes à deux niveaux est largement insuffisante pour l'étude de la diffusion multiple. Dans la suite, nous parlerons également de diffusion Rayleigh et de diffusion Raman, pour désigner respectivement le processus de diffusion d'un photon avec une transition Rayleigh et avec une transition Raman dégénérée. Il convient de noter ici que, contrairement à la dénomination habituelle de diffusion Raman qui concerne des transitions inélastiques, la diffusion Raman définie ici est totalement élastique, tous les états accessibles à l'atome étant dégénérés en l'absence de champ magnétique.

Notons également la grande sensibilité de la structure interne à un champ magnétique extérieur. A cause de l'effet Zeeman, la dégénérescence entre les différents sous-niveaux Zeeman est levée en présence d'un champ magnétique extérieur non nul, et les transitions entre différents sous-niveaux ont des fréquences de résonance

⁴En pratique, le moment angulaire est soit celui des niveaux de structure fine (J), soit celui des niveaux de structure hyperfine (F), comme c'est le cas dans l'expérience effectuée à Nice. Nous utiliserons indifféremment, dans toute la suite, la notation J .

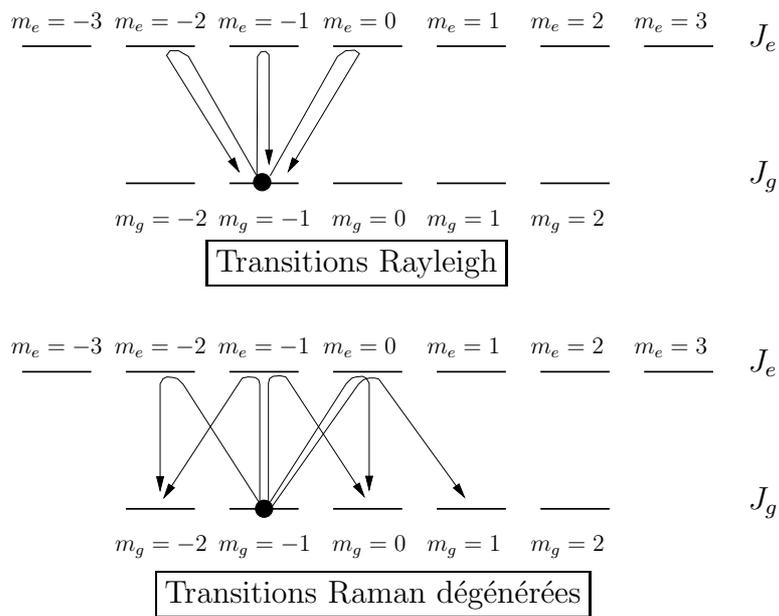


FIG. 3.3 – Les deux types de transitions atomiques lors de la diffusion d'un photon, illustrées dans le cas d'un niveau fondamental de moment angulaire $J_g = 2$ et un niveau excité de moment angulaire $J_e = 3$, pour un atome dans l'état initial $m_g = -1$. En haut, les possibilités de diffusion Rayleigh (diffusion d'un photon sans changement d'état interne) à partir du niveau $m_g = -1$. En bas, les possibilités de diffusion Raman dégénérée (diffusion d'un photon avec changement d'état interne) à partir de ce même niveau.

différentes. Ainsi, un champ magnétique faible (quelques Gauss, ou dizaines de Gauss) permet d'être résonant avec une transition entre deux sous-niveaux donnés, alors que les transitions faisant intervenir les autres sous-niveaux sont hors résonance. La diffusion de la lumière par les atomes - et les résultats observés dans une expérience de diffusion multiple - varient donc très rapidement en fonction d'un champ magnétique extérieur.

Le second effet important est la saturation de la transition atomique. On sait [73] que pour un seul atome, le caractère de la diffusion varie avec l'intensité incidente. Pour une intensité incidente faible, l'intensité diffusée est proportionnelle à celle-ci, et la lumière est diffusée à la même fréquence que celle de la lumière incidente. Par contre, quand l'intensité incidente croît, l'intensité diffusée tend à saturer, et le spectre de la lumière diffusée s'élargit. On peut attribuer cet effet à l'émission spontanée : quand l'intensité incidente croît, la population de l'état excité croît, et donc également la probabilité de se désexciter par émission spontanée avec une fréquence différente de la fréquence incidente. Les propriétés de cohérence de la lumière diffusée vis-à-vis de la lumière incidente étant très différentes suivant que l'intensité incidente est faible ou forte, il est intéressant d'étudier l'effet de la saturation dans le régime de diffusion multiple, notamment, pour l'étude de la rétrodiffusion cohérente, sur les phases des chemins associés qui interfèrent. Cet effet ne sera pas envisagé dans la suite de ce travail, tous les résultats pour les atomes étant obtenus au premier ordre en intensité. Remarquons qu'expérimentalement, on peut s'affranchir facilement de la saturation en se plaçant à faible intensité incidente, alors qu'il n'est pas possible de supprimer l'effet de la structure interne atomique. Ceci justifie de se consacrer, dans un premier temps, à l'étude de l'effet de la structure interne uniquement.

3.7.4 Rôle de l'effet Doppler

Par rapport aux diffuseurs utilisés habituellement, les atomes présentent une autre différence importante. Si l'on considère un gaz atomique à température ambiante, les atomes sont animés d'un mouvement rapide, avec des vitesses de l'ordre de quelques centaines de m/s. Il convient donc de s'interroger sur le rôle de l'effet Doppler, en particulier à cause de l'étroitesse de la résonance atomique : pour une largeur de résonance Γ de quelques MHz, dans le domaine optique, on obtient un décalage Doppler $k v$ comparable à Γ pour des vitesses de l'ordre de quelques m/s.

Nous allons voir que l'effet Doppler pour des atomes à température ambiante tend à détruire les interférences entre les différents chemins de diffusion, ce qui impose d'utiliser des atomes refroidis, pour lesquels le déphasage Doppler est petit devant Γ . Considérons pour cela l'augmentation cohérente de rétrodiffusion. Le processus menant à cette augmentation est l'interférence entre un chemin de diffusion, et le chemin associé passant par les mêmes diffuseurs mais dans l'ordre inverse. A rétrodiffusion, pour des atomes immobiles, il y a une interférence donnée entre ces deux chemins, qui mène à l'augmentation de l'intensité dans cette direc-

tion⁵. Considérons maintenant des atomes en mouvement. Dans l'amplitude de diffusion, chaque diffusion par un atome s'accompagne d'un facteur de phase, qui est fonction du désaccord entre la fréquence vue par l'atome et la fréquence de résonance atomique ω_0 . La fréquence vue par un atome de vitesse \mathbf{v} est donnée par :

$$\omega = \omega_L - \mathbf{k} \cdot \mathbf{v} = \omega_0 + \delta_0 - \mathbf{k} \cdot \mathbf{v} \quad (3.7)$$

où δ_0 est le désaccord vu par un atome immobile. Le facteur de phase associé à la diffusion par cet atome est donné par $\exp(-i\phi)$, le déphasage ϕ ayant pour expression :

$$\phi = \text{Arctg} \left(\frac{\delta_0 - \mathbf{k} \cdot \mathbf{v}}{\Gamma} \right) \quad (3.8)$$

Ce déphasage est nul quand l'atome voit une onde à résonance, et tend vers $\pm\pi/2$ quand $k v$ tend vers $\pm\infty$, avec une largeur typique de variation donnée par Γ . Considérons maintenant les déphasages dus à l'effet Doppler des amplitudes de diffusion des deux chemins associés qui interfèrent. Puisque le sens de parcours de l'onde est inversé d'un chemin à l'autre, on voit que, en général, les déphasages sont différents pour les deux chemins. Pour des atomes rapides, ces déphasages varient entre $-\pi/2$ et $\pi/2$, donc les deux chemins n'interfèrent plus nécessairement de manière constructive, et on s'attend à ce qu'en moyenne l'interférence entre les paires de chemins associés disparaisse ou soit fortement réduite. La seule manière d'éviter ces déphasages consiste à utiliser des atomes suffisamment lents pour les rendre négligeables. Ceci impose la condition :

$$k v \ll \Gamma \quad (3.9)$$

Cette condition est notamment réalisée dans un piège magnéto-optique, où la vitesse typique des atomes est de l'ordre de quelques cm/s, alors que la limite imposée par Γ (\sim quelques MHz) est de l'ordre de quelques m/s.

On peut également interpréter cette condition d'un point de vue temporel, complémentaire du point de vue fréquentiel donné plus haut. Près d'une résonance de largeur Γ , un atome met un temps de l'ordre de Γ^{-1} pour diffuser un photon (c'est le phénomène bien connu de *time delay* ou *dwell time* associé à une résonance). Pour que les deux chemins associés puissent interférer de manière constructive, il faut que les atomes qui les composent se déplacent d'une distance petite devant la longueur d'onde λ pendant un temps $\sim \Gamma^{-1}$, ce qui impose $v \Gamma^{-1} \ll \lambda$, ce qui est bien équivalent à la condition (3.9).

⁵Comme nous le verrons dans la suite, à cause de la structure interne atomique, deux chemins associés qui interfèrent n'ont pas des amplitudes de diffusion égales. Ceci entraîne que l'interférence entre ces deux chemins n'est pas parfaitement constructive et dépend de la configuration géométrique du chemin et de l'état interne des atomes qui le composent. Cette interférence est toutefois suffisante pour mener, en moyenne, à une augmentation notable de la rétrodiffusion.

Quand la condition (3.9) est satisfaite, on peut donc considérer que les atomes sont immobiles pendant le processus de diffusion multiple d'un photon. Le mouvement des atomes, sur une échelle de temps plus longue, permet d'obtenir simplement une moyenne sur les positions des diffuseurs. Notons que, même lorsque la condition (3.9) est satisfaite, le fait de considérer les atomes comme immobiles devient faux lorsque l'on étudie les ordres élevés de diffusion, puisque le déphasage s'accumule le long du chemin de diffusion. Le rapport $\Gamma/(kv)$ donne donc un ordre de grandeur de l'ordre de diffusion maximal pour lequel l'effet Doppler est négligeable. Au-delà de cet ordre de diffusion, l'effet Doppler risque de détruire les interférences. Dans la suite, nous calculerons des amplitudes de diffusion double sur des atomes en considérant que ceux-ci sont fixes, puis nous moyennerons sur les positions des atomes.

Chapitre 4

La rétrodiffusion cohérente

4.1 Introduction

Après avoir présenté dans le chapitre 3 les concepts généraux de la diffusion multiple dans un milieu désordonné, ce chapitre est consacré à la description de l'augmentation cohérente de la rétrodiffusion par un ensemble de diffuseurs ponctuels, et à l'introduction des méthodes théoriques utilisées pour traiter le problème. L'augmentation cohérente de la rétrodiffusion d'une onde par un milieu désordonné a été soigneusement étudiée depuis le milieu des années 1980, tant expérimentalement [58, 59, 74] que théoriquement [75, 76, 77, 69], et constitue maintenant un domaine bien établi. Ce chapitre ne présente donc pas de résultats nouveaux, mais introduit les notions qui seront utilisées dans le chapitre 6 pour traiter le problème de la rétrodiffusion cohérente sur des atomes, et les résultats présentés ici nous fourniront un point de comparaison pour les résultats concernant les atomes. L'organisation de ce chapitre est la suivante. Dans un premier temps, le principe de l'augmentation de rétrodiffusion est expliqué, et les expériences typiques sont décrites. Le traitement théorique au moyen de diffuseurs ponctuels est alors envisagé, tout d'abord pour le cas des ondes scalaires (caractérisées uniquement par la direction de propagation) et ensuite pour les ondes vectorielles (caractérisées en plus par la polarisation). Le cas des ondes scalaires nous permet de rappeler les points essentiels du traitement théorique, de voir le rôle joué par la réciprocité, et de donner les formules explicites pour la diffusion simple et la diffusion double. Tous ces points sont ensuite adaptés au cas des ondes vectorielles, en tenant compte de la polarisation.

4.2 Principe de l'augmentation cohérente de rétrodiffusion

Nous revenons ici en détail sur le principe de l'augmentation cohérente de rétrodiffusion, introduit brièvement dans le chapitre 3. Comme expliqué dans la section 3.5, l'intensité diffusée pour une position donnée des diffuseurs varie rapidement de manière aléatoire en fonction de la direction d'observation (phénomène de *speckle*). Ceci est dû à l'interférence entre tous les chemins de diffusion, qui ont des phases aléatoires non corrélées. Lorsque l'on moyenne sur les positions des diffuseurs, la non-corrélation des différents chemins de diffusion entraîne que les interférences disparaissent, et que seule subsiste la contribution incohérente de chaque chemin de diffusion. On obtient donc une intensité variant lentement en fonction de la direction d'observation, d'une manière dépendant de la géométrie du milieu. Il y a toutefois une exception : la différence de phase entre un chemin de diffusion donné, et le même chemin parcouru en sens inverse, est nulle à rétrodiffusion. Ces deux chemins sont donc toujours corrélés, et il y a donc une interférence parfaitement constructive entre ces deux chemins, indépendamment de leur configuration. Cette interférence survit lorsque l'on moyenne sur les positions des diffuseurs, et mène à une augmentation d'un facteur deux de l'intensité reçue à rétrodiffusion par rapport à l'intensité diffusée dans une direction quelconque. L'augmentation est d'un facteur deux car les chemins interfèrent par paire (un chemin donné n'interfère qu'avec un seul autre chemin) et l'intensité provenant d'une paire de chemins est, à cause de l'interférence, le double de la somme incohérente de l'intensité de chacun de ces chemins. Nous dirons dans la suite que deux chemins qui interfèrent forment une paire de chemins associés.

Lorsque l'on s'écarte de la rétrodiffusion, la différence de phase $\Delta\phi$ entre les deux chemins est donnée par $\Delta\phi = (\mathbf{k}_{in} + \mathbf{k}_{out}) \cdot (\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_N)$, où \mathbf{k}_{in} et \mathbf{k}_{out} sont les vecteurs d'onde entrant et sortant, et \mathbf{r}_1 et \mathbf{r}_N sont les positions des diffuseurs extrêmes le long du chemin (voir figure 4.1). Lorsque \mathbf{k}_{out} diffère de $-\mathbf{k}_{in}$ d'un angle $\theta \ll 1$, on a $\Delta\phi \sim \theta k (r_{1N})_{\perp}$, où $k = |\mathbf{k}_{in}|$ et $(r_{1N})_{\perp}$ est la distance transverse (c'est-à-dire \perp à \mathbf{k}_{in}) entre \mathbf{r}_1 et \mathbf{r}_N . L'ordre de grandeur de $(r_{1N})_{\perp}$ est donné par le libre parcours moyen ℓ de l'onde dans le milieu. On peut s'attendre à la disparition des effets d'interférence lorsque la différence de phase est de l'ordre de 2π , c'est à dire pour $\theta \sim \lambda/\ell$, ou encore $\theta \sim (k\ell)^{-1}$. Le facteur deux d'augmentation à rétrodiffusion décroît donc vers 1 (pas d'augmentation) sur une largeur angulaire de l'ordre de $(k\ell)^{-1}$. Ceci fournit une augmentation sur une très faible largeur angulaire, puisque le régime de localisation faible est caractérisé par $k\ell \gg 1$.

La figure 4.2 montre l'intensité diffusée autour de la rétrodiffusion dans une large plage angulaire par un milieu semi-infini (c'est-à-dire un demi-espace, défini par $z > 0$) [78]. C'est le résultat d'un calcul fait à l'approximation de diffusion [69]. La courbe en pointillé montre l'intensité incohérente. La variation de celle-ci en fonction de l'angle est un simple effet géométrique, et est approximativement pro-

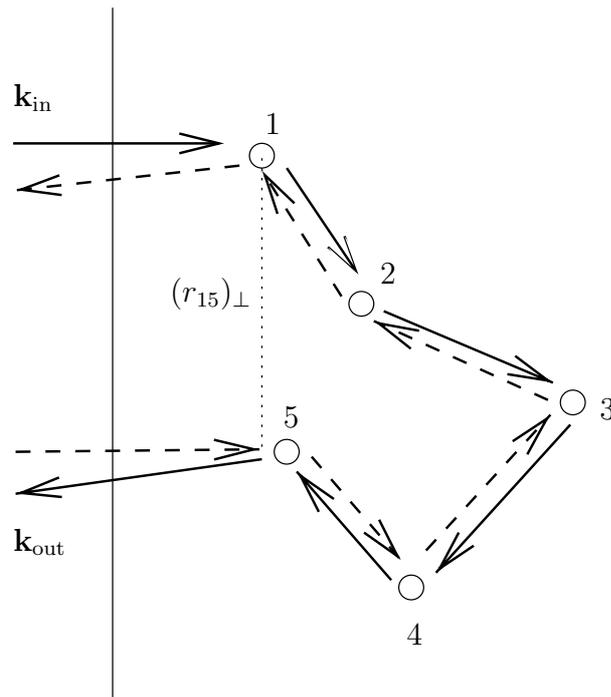


FIG. 4.1 – Représentation d’une paire de chemins de diffusion dont l’interférence contribue à l’augmentation de rétrodiffusion. Les deux chemins passent par les mêmes diffuseurs, mais en sens inverse. La différence de phase entre les deux chemins est donnée par $\Delta\phi = (\mathbf{k}_{in} + \mathbf{k}_{out}) \cdot (\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_5)$. S’il y a un angle $\theta \ll 1$ entre $-\mathbf{k}_{in}$ et \mathbf{k}_{out} , elle s’écrit : $\Delta\phi \simeq \theta k (r_{15})_{\perp}$, où $(r_{15})_{\perp}$ est la distance transverse (perpendiculaire à \mathbf{k}_{in}) entre les atomes extrêmes du chemin.

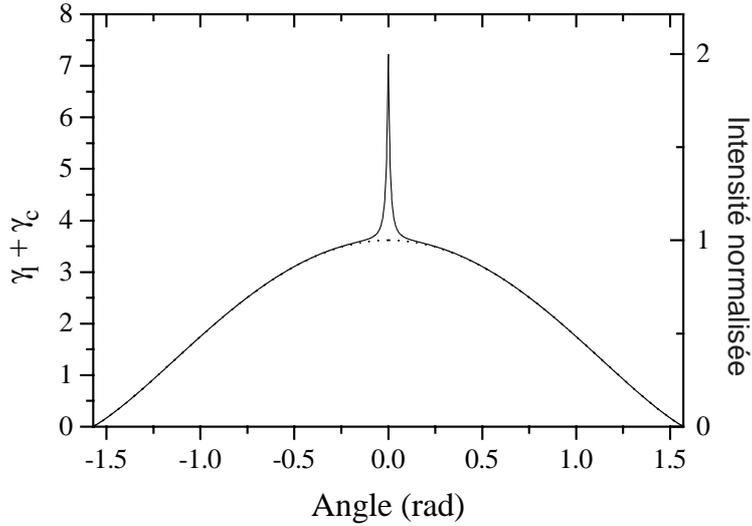


FIG. 4.2 – *Intensité diffusée autour de la rétrodiffusion (angle = 0) par un milieu semi-infini, calculée à l’approximation de diffusion [69]. La courbe en pointillé montre l’intensité incohérente, et la courbe pleine l’intensité totale, composée de l’intensité incohérente et de l’intensité due à l’interférence entre les paires de chemins associés. On voit que les deux coïncident, sauf dans une étroite plage angulaire de largeur d’ordre $(k\ell)^{-1} \simeq 0,022$ où l’on observe un cône de rétrodiffusion. L’échelle de droite est normalisée de manière à avoir l’intensité incohérente égale à 1 à rétrodiffusion; on voit sur celle-ci que l’intensité totale est deux fois plus élevée que l’intensité incohérente à rétrodiffusion. (Merci à D. Wiersma pour l’autorisation de reproduire cette figure.)*

portionnelle à $\cos\theta$ (loi de Lambert [79]), $\theta = 0$ désignant la rétrodiffusion. La courbe en trait plein montre l’intensité totale, composée de l’intensité incohérente et de l’intensité due à l’interférence entre les paires de chemins associés. On voit que l’intensité totale est confondue avec l’intensité incohérente, sauf dans un domaine angulaire étroit autour de la rétrodiffusion, d’une largeur de l’ordre de $(k\ell)^{-1}$, où se trouve le cône de rétrodiffusion. Ici, on a $k\ell \simeq 0,022$. A la rétrodiffusion exacte, l’intensité totale est deux fois plus élevée que l’intensité incohérente.

4.3 Description des expériences - Géométrie

Les expériences de rétrodiffusion cohérente de la lumière sont généralement effectuées sur des milieux dont la géométrie est celle d’une tranche (dans la suite, on parlera de *slab*) : un milieu parallélépipédique de profondeur ℓ et très étendu suivant les deux autres dimensions. La lumière incidente est envoyée sur la face d’entrée et on mesure la lumière diffusée vers l’arrière par le milieu en fonction de l’angle θ par rapport à la direction incidente (voir figure 4.3). Les milieux utilisés sont très

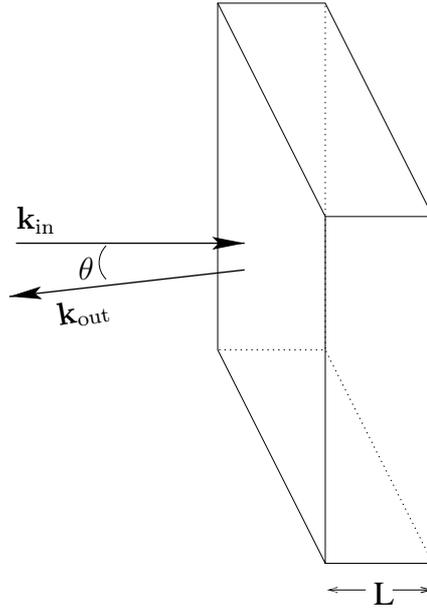


FIG. 4.3 – Géométrie utilisée dans les expériences.

variés, la seule contrainte étant de présenter des propriétés diffusantes suffisamment fortes. Parmi les milieux utilisés figurent le téflon, le papier, le polystyrène, le lait dilué, des poudres semi-conductrices, etc.

Lorsque nous parlerons d'intensité diffusée, nous utiliserons une intensité normalisée : le coefficient bistatique γ . Si μ_i (respectivement μ_f) est le cosinus de l'angle de la direction incidente (resp. sortante) avec la normale à la face d'entrée du *slab*, et A l'aire de cette surface, on a :

$$\gamma(\mu_i, \mu_f) = \frac{4\pi}{A\mu_i} \left\langle \frac{d\sigma}{d\Omega}(\mathbf{k}_i \rightarrow \mathbf{k}_f) \right\rangle \quad (4.1)$$

où $d\sigma/d\Omega$ est la section efficace par unité d'angle solide, et $\langle \dots \rangle$ signifie moyenner sur le désordre (c'est-à-dire la position des diffuseurs). Cette expression est à prendre comme une limite pour $A \rightarrow \infty$, avec une densité constante de diffuseurs dans le *slab*. Par simplicité, on prendra généralement dans la suite un faisceau incident perpendiculaire à la face d'entrée ($\mu_i = 1$), et le coefficient bistatique devient $\gamma(\theta_f) = \gamma(\theta)$.

Comme nous l'avons vu, une moyenne sur la position des diffuseurs est nécessaire pour observer l'augmentation de la rétrodiffusion. Sans cette moyenne, on observe le *speckle*, qui résulte de l'interférence aléatoire entre tous les chemins de diffusion. D'un point de vue expérimental, cette moyenne se fait naturellement dans les milieux liquides à cause du mouvement brownien. Pour les milieux solides, la moyenne peut être faite en faisant fluctuer l'échantillon.

La figure 4.4 montre un exemple de cône de rétrodiffusion obtenu pour un *slab* de très grande profondeur, le milieu diffusant étant une poudre de ZnO [78]. Cette

figure montre clairement l'augmentation de l'intensité pour les directions proches de la rétrodiffusion. A la rétrodiffusion exacte ($\theta = 0$, sommet de la courbe), le facteur d'augmentation de l'intensité reçue par rapport au fond d'intensité est 2. Pour obtenir précisément ce facteur, les conditions expérimentales ont été choisies de manière à avoir un signal de rétrodiffusion nul pour la diffusion simple. En effet, la diffusion simple ne contribue pas à l'augmentation de la rétrodiffusion, puisqu'il n'y a pas deux chemins distincts ayant des sens de propagation opposés pour une diffusion simple. La diffusion simple, si elle est présente, contribue donc uniquement à l'intensité incohérente, et mène donc à un facteur d'augmentation inférieur à 2.

Ici, la diffusion simple à rétrodiffusion a été supprimée en envoyant un faisceau incident de polarisation circulaire avec une hélicité donnée (l'hélicité étant le sens de rotation de la polarisation relativement à la direction de propagation), et en détectant la lumière diffusée avec la même hélicité¹. La diffusion par un diffuseur sphérique ne modifiant pas le sens de rotation de la polarisation, on obtient à rétrodiffusion, pour la diffusion simple par des diffuseurs sphériques, uniquement de la lumière ayant l'hélicité opposée à l'hélicité du faisceau incident, à cause de l'inversion de la direction de propagation lorsque l'on se place à rétrodiffusion. Détecter la lumière ayant la même hélicité que la lumière incidente permet donc de se débarrasser de la diffusion simple, et d'observer un facteur d'amplification égal à 2.

Une caractéristique remarquable de cette courbe est sa singularité en $\theta = 0$ (rupture de pente). On a clairement un cône pointu pour $|\theta| \rightarrow 0$ (voit l'encart de la figure 4.4). Cette singularité résulte de la contribution des chemins de diffusion arbitrairement longs (qui contiennent un nombre arbitrairement grand de diffusions). En effet, comme expliqué précédemment, la différence de phase entre un chemin de diffusion et le chemin parcouru en sens inverse est proportionnelle à la distance entre les points de diffusion extrêmes du chemin. Cette distance est de manière générale d'autant plus grande que le chemin de diffusion est long. La contribution des ordres de diffusion élevés à l'augmentation de l'intensité sera donc d'autant plus étroite en θ que l'ordre de diffusion est élevé. Le sommet de la courbe d'augmentation près de $\theta = 0$ contient donc la contribution des chemins arbitrairement longs, et c'est la somme de toutes ces contributions qui mène au comportement singulier en $\theta = 0$. Notons que cette singularité n'existe que pour un milieu (effectivement) semi-infini ($L \rightarrow \infty$), et sans absorption, puisque sa présence nécessite des chemins de diffusion très longs.

La largeur observée du cône (ici, $\Delta\theta \sim 50$ mrad) correspond bien à l'ordre de grandeur attendu $\Delta\theta \sim \lambda/\ell$ (ici, $\lambda = 514$ nm et $\ell = 1,9$ μ m, donnant $\lambda/\ell \sim 0.25$). La largeur du cône est un peu moindre que λ/ℓ car la valeur typique de la distance entre les deux diffuseurs extrêmes d'un chemin de diffusion est en général plus grande que ℓ , sauf pour les ordres de diffusion les plus bas. La comparaison de la

¹On parle du canal d'observation : "hélicité conservée", voir section 4.5.1.

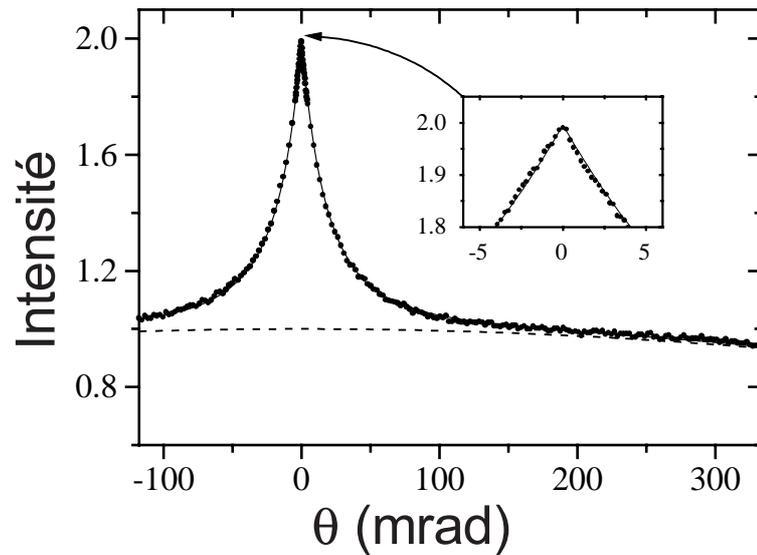


FIG. 4.4 – Courbe expérimentale montrant l'augmentation cohérente de rétrodiffusion par une poudre de ZnO [78]. L'intensité diffusée est représentée en fonction de l'angle de diffusion θ , $\theta = 0$ correspondant à la rétrodiffusion exacte. L'intensité incohérente (ligne pointillée) a été normalisée à 1 à rétrodiffusion. La ligne continue correspond à un fit obtenu à l'approximation de diffusion. Le facteur d'augmentation observé est $1,994 \pm 0,012$. (Merci à D. Wiersma pour l'autorisation de reproduire cette figure.)

courbe expérimentale avec les prévisions théoriques fournit un moyen de mesurer le libre parcours moyen.

4.4 Cône de rétrodiffusion pour des diffuseurs scalaires

4.4.1 Introduction

La manière la plus simple pour traiter la rétrodiffusion cohérente consiste à oublier, dans un premier temps, la caractéristique vectorielle des ondes électromagnétiques (c'est-à-dire la polarisation), et à considérer des ondes scalaires. Une fois que les éléments essentiels ont été compris pour des ondes scalaires, on peut étendre sans difficulté de principe la théorie au cas des ondes vectorielles.

Tous les résultats présentés ici (et dans toute la suite) concernent des diffuseurs ponctuels. L'utilisation des diffuseurs ponctuels permet de simplifier considérablement le problème, en fournissant des diffuseurs non corrélés.

Le cadre théorique dans lequel se placent les sections qui suivent est celui d'une approche perturbative, qui permet de distinguer les différents ordres de diffusion multiple (l'ordre d'un chemin de diffusion étant le nombre de diffusion présentes le long du chemin). Le système non perturbé dont la solution est connue est simplement un milieu homogène d'indice donné (ce peut être le vide), et la perturbation est la variation de l'indice causée par la présence des diffuseurs. Notons que le problème peut également être résolu directement et exactement, pour un milieu semi-infini, à partir de l'équation de Milne qui décrit la propagation de l'intensité dans le *slab* (et qui peut être modifiée afin de prendre en compte les effets d'interférence menant à la rétrodiffusion cohérente) [80, 81, 82, 83]. Toutefois, nous n'envisagerons pas ici cette méthode de résolution exacte, pour deux raisons. D'une part, elle est techniquement assez complexe, et l'adaptation de cette méthode au cas de la diffusion par des atomes est un problème délicat. D'autre part, les calculs explicites limités à l'ordre 2 que nous ferons dans la suite pour la diffusion sur les atomes nous permettront de mettre simplement en évidence les particularités propres à la diffusion sur les atomes, et de comprendre les résultats obtenus expérimentalement. La résolution exacte mettrait moins bien évidence les mécanismes fondamentaux, à cause de sa complexité.

4.4.2 Fonction de Green moyenne - Libre parcours moyen

La fonction de Green décrit la propagation de l'amplitude dans le milieu, et satisfait l'équation :

$$\Delta G(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; k) + k^2 \frac{n^2(\mathbf{r})}{n^2} G(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; k) = \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}') \quad (4.2)$$

où $n(\mathbf{r})$ est l'indice du milieu avec les diffuseurs. On peut rendre cette équation totalement similaire à l'équation pour la fonction de Green de l'équation de Schrödinger, en séparant l'indice $n(\mathbf{r})$ en une partie correspondant à l'indice constant n du milieu sans diffuseur, et une partie $\mu(\mathbf{r})$ due à la présence des diffuseurs :

$$n^2(\mathbf{r}) = n^2 + n^2 \mu(\mathbf{r}) \quad (4.3)$$

En posant alors

$$k^2 \mu(\mathbf{r}) = -V(\mathbf{r}; k) \quad (4.4)$$

l'équation (4.2) devient :

$$\Delta G(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; k) - V(\mathbf{r}; k)G(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; k) + k^2 G(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; k) = \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}') \quad (4.5)$$

Comparons cette équation à celle obtenue à partir de l'équation de Schrödinger. D'après la section 1.2 du chapitre 1, on a l'équation :

$$-\frac{\Delta}{2}G(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; E) + V(\mathbf{r})G(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; E) - E G(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; E) = -\delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}') \quad (4.6)$$

On voit que ces deux équations sont bien similaires. $V(\mathbf{r}; k)$ joue le rôle du potentiel extérieur $V(\mathbf{r})$, et k^2 joue le rôle de l'énergie E . Il y a deux différences entre ces équations. D'une part, le facteur $1/2$ accompagnant l'opérateur Δ est absent² de (4.5), ce qui entraîne que la divergence de $G(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; k)$ (solution de (4.5)) pour $\mathbf{r} \rightarrow \mathbf{r}'$ est $\sim (-4\pi|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|)^{-1}$. D'autre part, le potentiel $V(\mathbf{r}; k)$ dépend de l'énergie, puisqu'il est proportionnel à k^2 . Ceci est une différence importante [62]. L'analogie entre l'équation (4.5) et l'équation (4.6) concernant l'équation de Schrödinger, nous permet d'adapter à l'équation (4.5) les méthodes que nous avons vues précédemment (chapitre 1) pour l'équation (4.6).

On considère dans la suite des diffuseurs ponctuels identiques (aux positions \mathbf{r}_i), ce qui conduit formellement au potentiel :

$$V(\mathbf{r}; k) = (-1) k^2 g \sum_i \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_i) \quad (4.7)$$

où g est une constante. Comme nous l'avons vu dans le chapitre 1 (section 1.3), l'utilisation du potentiel $\delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_i)$ mène à des divergences, et nécessite une procédure de régularisation. Les techniques de régularisation du chapitre 1 s'appliquent également ici, et nous ne reviendrons pas sur celles-ci.

Comme pour la fonction de Green de l'équation de Schrödinger, on peut traiter le potentiel $V(\mathbf{r}; k)$ de manière perturbative. Soit $G_0(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2; k) = G_0(\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2; k)$ la fonction du Green du système sans diffuseurs (c'est-à-dire simplement la fonction de Green libre). $G(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2; k)$ satisfait alors l'équation :

$$G(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; k) = G_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; k) + \int d\mathbf{r} G(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}; k)V(\mathbf{r}; k)G_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}_2; k) \quad (4.8)$$

²On aurait pu écrire l'équation (4.6) sans le facteur $1/2$; voir la remarque sur les unités de la section 2.2.

qui mène à un développement en série de $G(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; k)$. Ce développement en série est strictement équivalent à celui des équations (1.15) et (1.16). Puisque la position de diffuseurs est aléatoire, on s'intéresse aux quantités moyennées sur ces positions (c'est-à-dire aux quantités moyennées sur le désordre). Nous considérons ici un milieu infini, pour lequel la fonction de Green moyenne est invariante par translation :

$$\langle G(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; k) \rangle = \langle G(\mathbf{r} - \mathbf{r}'; k) \rangle \quad (4.9)$$

On introduit alors la self-énergie $\Sigma(k)$, telle que :

$$\langle G(\mathbf{r} - \mathbf{r}'; k) \rangle = G_0(\mathbf{r} - \mathbf{r}'; k) + \int d\mathbf{r}'' \langle G(\mathbf{r} - \mathbf{r}''; k) \rangle \Sigma(\mathbf{r}''; k) G_0(\mathbf{r}'' - \mathbf{r}'; k) \quad (4.10)$$

L'invariance par translation permet de résoudre simplement le problème dans l'espace de Fourier \mathbf{p} associé à \mathbf{r} . On a :

$$G(\mathbf{p}; k) = \frac{1}{G_0^{-1}(\mathbf{p}; k) - \Sigma(\mathbf{p}; k)} = \frac{1}{k^2 - \mathbf{p}^2 - \Sigma(\mathbf{p}; k)} \quad (4.11)$$

Σ peut s'obtenir par un développement perturbatif (en termes de diagrammes, Σ ne contient que les diagrammes irréductibles). A l'ordre le plus bas en la densité de diffuseur n_d , on trouve :

$$\Sigma(\mathbf{p}; k) = n_d t_{\mathbf{p}\mathbf{p}}(k) \quad (4.12)$$

où $t_{\mathbf{p}\mathbf{p}'}(k)$ est la matrice t pour un diffuseur. Celle-ci s'obtient en régularisant le potentiel $\delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_i)$ d'un diffuseur ponctuel en \mathbf{r}_i , de la même manière que pour un diffuseur ponctuel pour l'équation de Schrödinger (la renormalisation de la force du potentiel est bien adaptée au cas des ondes électromagnétiques, voir la section 1.3.5 du chapitre 1 et les références [15, 62]). Elle ne dépend de \mathbf{p} et \mathbf{p}' que par la phase $\exp(i(\mathbf{p} - \mathbf{p}') \cdot \mathbf{r}_i)$, et on a l'expression :

$$t_{\mathbf{p}\mathbf{p}}(k) = t(k) = (-1) \left(\frac{\omega}{\omega_0} \right)^2 \frac{4\pi\Gamma c}{\omega_0^2 - \omega^2 - i\Gamma\omega^3/\omega_0^2} \quad (4.13)$$

(avec $\omega = kc$), ce qui correspond à un diffuseur ponctuel résonant à la fréquence ω_0 , avec une largeur de résonance Γ . A résonance, la section efficace totale du diffuseur $\sigma(k)$ vaut simplement $\sigma(\omega_0/c) = \lambda^2/\pi$, qui est la valeur maximale atteignable pour un diffuseur ponctuel d'ondes scalaires. Cette matrice t satisfait le théorème optique, qui exprime l'égalité entre l'atténuation du faisceau incident et la section efficace totale de diffusion :

$$-\text{Im} \left(\frac{t_{\mathbf{p}\mathbf{p}}(k)}{k} \right) = \frac{|t(k)|^2}{4\pi} = \sigma(k) \quad (4.14)$$

L'effet de la self-énergie est de modifier l'indice du milieu (effet de la partie réelle), que l'on notera $m(k)$, et d'introduire le libre parcours moyen $\ell(k)$ qui décrit la

décroissance exponentielle de l'amplitude dans le milieu à cause de l'effet moyen des diffuseurs. On a, à l'ordre le plus bas en la densité n_d [70] :

$$m(k)^2 = 1 - \frac{n_d}{k^2} \operatorname{Re}(t_{\mathbf{pp}}(k, \mathbf{p} = k\mathbf{p}/|\mathbf{p}|)) \quad (4.15)$$

$$\frac{1}{\ell(k)} = -\frac{n_d}{k} \operatorname{Im}(t_{\mathbf{pp}}(k, \mathbf{p} = k\mathbf{p}/|\mathbf{p}|)) = n_d \sigma(k) \quad (4.16)$$

La fonction de Green moyenne s'écrit donc :

$$\langle G(\mathbf{r}; k) \rangle = -\frac{1}{4\pi r} \exp(i m(k) k r) \exp\left(-\frac{r}{2\ell(k)}\right) \quad (4.17)$$

Le libre parcours moyen défini ici est le libre parcours moyen de diffusion (il correspond à la distance moyenne entre deux diffusions). En l'absence d'absorption, il correspond également au libre parcours moyen d'extinction, qui décrit la distance typique de décroissance de l'amplitude. Enfin, il doit en général être distingué du libre parcours moyen de transport ℓ_t , qui décrit la distance moyenne nécessaire pour rendre la direction de propagation aléatoire. La relation entre ℓ_t et ℓ est [69] :

$$\ell_t = \frac{1}{1 - \langle \cos \theta \rangle} \ell \quad (4.18)$$

où $\langle \cos \theta \rangle$ est la moyenne du cosinus de l'angle de diffusion. Dans le cas de diffuseurs isotropes, on a bien $\ell_t = \ell$ (puisque une seule diffusion suffit pour rendre la direction aléatoire). La distinction entre ℓ_t et ℓ est notamment importante lorsque l'on désire décrire des diffuseurs qui ont une taille comparable à la longueur d'onde et qui diffusent préférentiellement vers l'avant.

4.4.3 Intensité diffusée

L'intensité diffusée s'exprime en termes du produit de deux fonctions de Green, et peut également se calculer dans le cadre de la théorie perturbative évoquée ci-dessus. Sans rentrer dans les détails du calcul, précisons ici quelles sont les deux contributions distinctes à l'intensité. Rappelons tout d'abord que l'on se place dans le régime de diffusion multiple introduit dans le chapitre 3. L'inégalité $n_d^{-1/3} \ll \ell$ (ou encore $\sigma \ll n_d^{-2/3}$) est donc satisfaite (voir section 3.4). Elle signifie que les sections efficaces des diffuseurs ne se recouvrent pas, et entraîne que l'on peut négliger la contribution des chemins de diffusion passant plus d'une fois par le même diffuseur (diffusion récurrente). Rappelons également que pour des diffuseurs ponctuels, dont la section efficace est au plus de l'ordre de λ^2 , l'inégalité $n_d^{-1/3} \ll \ell$ est une conséquence de l'inégalité $\lambda \ll n_d^{-1/3}$.

Pour distinguer les deux types de contribution à l'intensité, nous considérons une paire de chemins associés. En effet, comme nous l'avons vu, les chemins de

diffusion interfèrent uniquement par paires de chemins associés, et l'intensité totale est simplement la somme des intensités pour toutes les paires de chemins. On considère donc un chemin donné, que nous appelons chemin direct, d'amplitude t_{dir} ; et le chemin associé, qui passe par les mêmes diffuseurs mais en sens inverse, que nous appelons chemin inverse, d'amplitude t_{rev} (avec rev pour *reversed*). L'intensité due à cette paire de chemins est :

$$(t_{\text{dir}} + t_{\text{rev}}) (t_{\text{dir}}^* + t_{\text{rev}}^*) = (|t_{\text{dir}}|^2 + |t_{\text{rev}}|^2) + (t_{\text{dir}}t_{\text{rev}}^* + t_{\text{dir}}^*t_{\text{rev}}) \quad (4.19)$$

La première contribution à l'intensité est simplement l'intensité incohérente : $|t_{\text{dir}}|^2 + |t_{\text{rev}}|^2$ (voir figure 4.5). Pour celle-ci, chaque chemin de diffusion multiple, ayant une amplitude t , donne un terme $|t|^2$. L'intensité incohérente comporte donc la contribution de chaque chemin séparément, sans aucun effet d'interférence entre les différents chemins. Lorsque l'on peut négliger tous les effets d'interférence, l'intensité totale se réduit simplement à l'intensité incohérente. C'est le cas lorsque l'on s'intéresse, par exemple, à l'intensité diffusée en moyenne sur la position des diffuseurs dans une direction quelconque (autre que la rétrodiffusion).

Cette contribution est aussi dénommée "intensité ladder", d'après sa représentation diagrammatique [77]. En effet, dans le cadre du développement perturbatif évoqué plus haut, l'intensité incohérente est représentée par la somme (infinie) des diagrammes de Feynmann montrés sur la figure 4.7(A). Sur ces diagrammes, la ligne horizontale supérieure représente la diffusion de l'amplitude de l'onde, et la ligne horizontale inférieure représente la diffusion du complexe conjugué de l'amplitude. Les lignes verticales pointillées identifient les diffuseurs identiques.

La seconde contribution est celle menant à l'augmentation de rétrodiffusion. Elle est donnée par $t_{\text{dir}}t_{\text{rev}}^* + t_{\text{dir}}^*t_{\text{rev}}$, et résulte de l'interférence entre les deux chemins de la paire considérée (voir figure 4.6). Notons que les chemins de diffusion simple ne participent pas à cette contribution à l'intensité, puisqu'il n'y a qu'un seul sens possible pour une diffusion simple (l'unique diffusion étant à la fois la première et la dernière du chemin). Comme expliqué précédemment, la différence de phase entre les deux chemins d'une paire est nulle pour la rétrodiffusion, menant à l'égalité $t_{\text{dir}} = t_{\text{rev}}$ pour cette direction. Dans ce cas, la contribution due à l'interférence entre ces deux chemins ($t_{\text{dir}}t_{\text{rev}}^* + t_{\text{dir}}^*t_{\text{rev}}$) est égale à la contribution incohérente ($|t_{\text{dir}}|^2 + |t_{\text{rev}}|^2$), et la contribution totale pour une paire de chemins sera égale à deux fois la contribution incohérente. L'intensité due à l'interférence entre les paires de chemins est dénommée "intensité crossed" d'après sa représentation diagrammatique [77] montrée sur la figure 4.7(B). Ces diagrammes sont appelés "crossed" car ils s'obtiennent à partir des diagrammes "ladder" en croisant la partie inférieure. On voit qu'en retournant la partie inférieure d'un diagramme "ladder", on obtient bien l'intensité recherchée, puisque, pour le diagramme d'ordre N , le $i^{\text{ème}}$ diffuseur pour l'amplitude (ligne supérieure) correspond alors au $(N - i)^{\text{ème}}$ diffuseur pour l'amplitude conjuguée (ligne inférieure), et on a donc bien l'interférence entre deux chemins identiques mais parcourus en sens inverse.

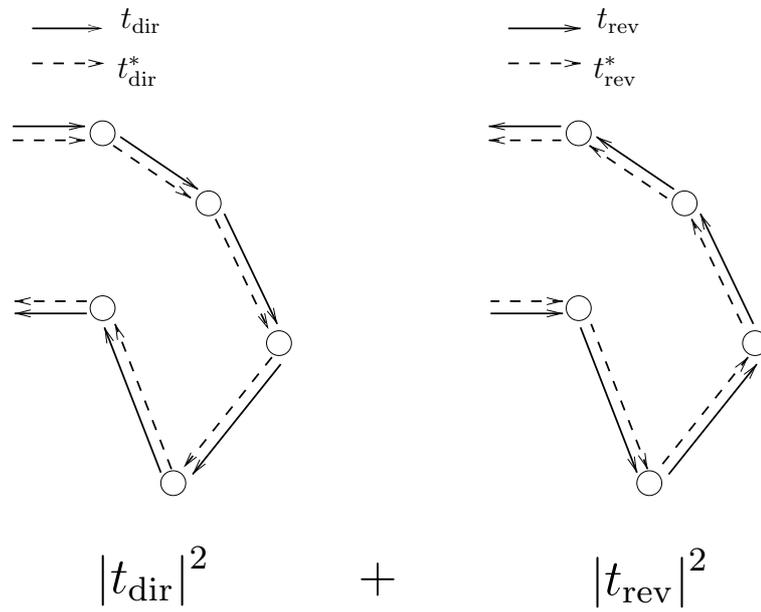


FIG. 4.5 – Contributions à l'intensité incohérente d'une paire de chemins associés, d'amplitudes t_{dir} pour le chemin direct et t_{rev} pour le chemin inverse.

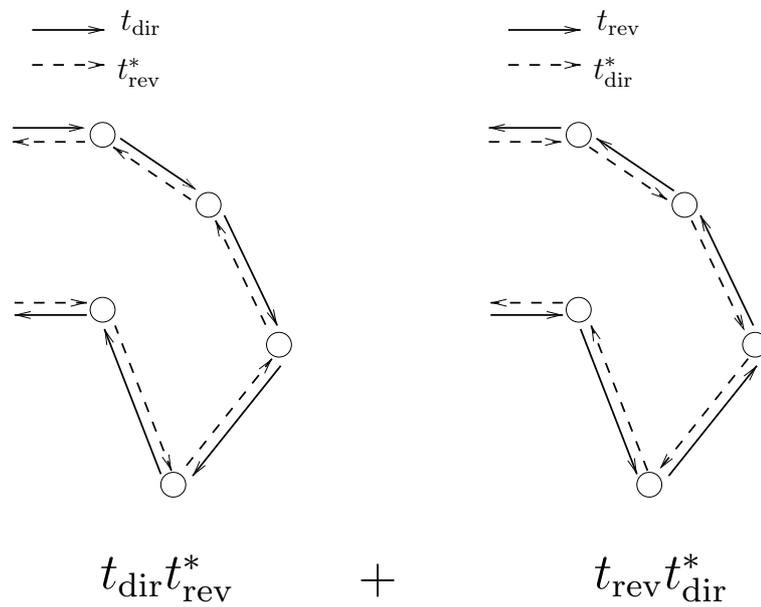


FIG. 4.6 – Contributions à l'intensité due à l'interférence entre les chemins associés, d'amplitudes t_{dir} pour le chemin direct et t_{rev} pour le chemin inverse.

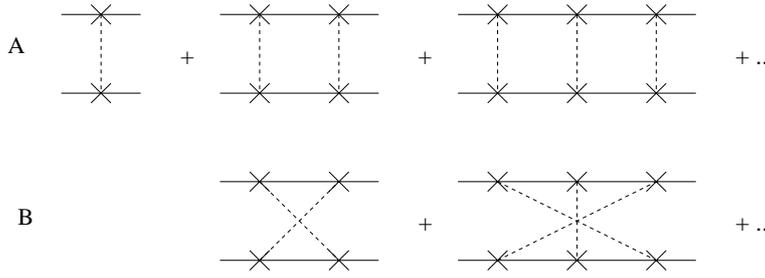


FIG. 4.7 – Série de diagrammes donnant l’intensité ladder (A) et crossed (B). Une croix représente une diffusion, une ligne horizontale le propagateur dans le milieu, et les lignes pointillées relient les diffusions sur un même diffuseur. La diffusion simple est absente de l’intensité crossed.

4.4.4 Facteur d’augmentation et réciprocité

Comme expliqué ci-dessus, l’intensité comporte deux contributions, d’une part l’intensité incohérente (ou “ladder”) et d’autre part l’intensité “crossed” qui provient de l’interférence entre les paires de chemins associés (c’est-à-dire qui visitent les mêmes diffuseurs mais en ordre inverse). Cette deuxième contribution n’est non-nulle que pour les directions proches de la rétrodiffusion : elle décroît vers 0 sur une largeur angulaire $\Delta\theta \sim (k\ell)^{-1}$ autour de la rétrodiffusion ($\theta = 0$). On définit le facteur d’augmentation α :

$$\alpha = \frac{\gamma(\theta = 0)}{\gamma((k\ell)^{-1} \ll \theta \ll 1)} \quad (4.20)$$

qui est le rapport de l’intensité à rétrodiffusion (où l’augmentation est maximale) avec l’intensité dans une direction où l’augmentation est nulle (on se place relativement près de la rétrodiffusion à cause de la lente variation de l’intensité due à des facteurs purement géométriques). α est au mieux égal à 2. En effet, pour une paire de chemins donnée, on a l’intensité :

$$I = (|t_{\text{dir}}|^2 + |t_{\text{rev}}|^2) + (t_{\text{dir}}t_{\text{rev}}^* + t_{\text{dir}}^*t_{\text{rev}}) \quad (4.21)$$

Il est clair que le deuxième terme (deuxième parenthèse), est en valeur absolue inférieur ou égal au premier, et que les deux termes sont égaux si et seulement si $t_{\text{dir}} = t_{\text{rev}}$. Cette égalité est satisfaite à rétrodiffusion, ce qui entraîne une augmentation par un facteur deux de l’intensité pour cette paire de chemins. Ce raisonnement s’applique pour tous les chemins de diffusion multiple, mais pas pour les chemins de diffusion simple, pour lesquels il n’y a pas d’interférence par paire, et donc une augmentation nulle. La présence de la diffusion simple implique donc que le facteur d’augmentation est inférieur à deux. La valeur précise du facteur d’augmentation dépend de la contribution relative de la diffusion simple par rapport aux ordres de diffusion supérieurs. Dans le cas d’un slab semi-infini, la résolution exacte fournit le facteur d’augmentation $\alpha = 1,8817$ [83, 81].

L'égalité entre les amplitudes t_{dir} et t_{rev} à rétrodiffusion a été obtenue ici en examinant la phase de chaque chemin en fonction de la direction finale du faisceau diffusé (les modules de t_{dir} et t_{rev} étant clairement égaux pour des diffuseurs ponctuels scalaires). On peut obtenir directement cette égalité à partir d'une puissante propriété de symétrie : la réciprocité.

La réciprocité est valable dès que les équations microscopiques fondamentales du système sont invariantes par renversement du temps [84], et elle induit une propriété de symétrie pour la matrice $S(\mathbf{k}_{\text{in}}, \mathbf{k}_{\text{out}})$ du système, reliant $S(\mathbf{k}_{\text{in}}, \mathbf{k}_{\text{out}})$ à $S(-\mathbf{k}_{\text{out}}, -\mathbf{k}_{\text{in}})$. Dans notre cas, elle s'exprime simplement par l'égalité [85] :

$$S(\mathbf{k}_{\text{in}}, \mathbf{k}_{\text{out}}) = S(-\mathbf{k}_{\text{out}}, -\mathbf{k}_{\text{in}}) \quad (4.22)$$

Si $t_{\text{dir}}(\mathbf{k}_{\text{in}}, \mathbf{k}_{\text{out}})$ est l'amplitude de diffusion pour un chemin de diffusion donné, avec un vecteur d'onde incident \mathbf{k}_{in} , et un vecteur d'onde sortant \mathbf{k}_{out} , cette équation entraîne l'égalité :

$$t_{\text{dir}}(\mathbf{k}_{\text{in}}, \mathbf{k}_{\text{out}}) = t_{\text{rev}}(-\mathbf{k}_{\text{out}}, -\mathbf{k}_{\text{in}}) \quad (4.23)$$

où t_{rev} est l'amplitude pour le chemin inverse associé, qui passe par les mêmes diffuseurs mais en ordre inverse (voir figure 4.8). Cette propriété ressemble à l'invariance globale par renversement du temps, mais elle est plus générale. Ainsi, par exemple, si l'on considère un système où l'absorption n'est pas nulle, l'invariance par renversement du temps est violée alors que la réciprocité est valide. Pour des vecteurs d'onde \mathbf{k}_{in} et \mathbf{k}_{out} quelconques, la relation (4.23) ne nous apprend rien d'utile pour la compréhension de la rétrodiffusion, puisqu'elle relie deux amplitudes avec des vecteurs d'onde initiaux et finals différents. Par contre, si l'on considère la rétrodiffusion, c'est-à-dire $\mathbf{k}_{\text{out}} = -\mathbf{k}_{\text{in}}$, la relation (4.23) devient :

$$t_{\text{dir}}(\mathbf{k}_{\text{in}}, -\mathbf{k}_{\text{in}}) = t_{\text{rev}}(\mathbf{k}_{\text{in}}, -\mathbf{k}_{\text{in}}) \quad (4.24)$$

et fournit l'égalité entre les amplitudes du chemin direct et du chemin inverse qui interfèrent à rétrodiffusion. L'augmentation de l'intensité rétrodiffusée par un facteur 2 (en oubliant la diffusion simple) est donc une conséquence directe de la réciprocité.

4.4.5 Formules explicites : diffusion simple et diffusion double

Introduction

La théorie perturbative permet de calculer l'intensité diffusée ordre par ordre, et ainsi d'identifier les contributions relatives des différents ordres de diffusion. Dans la suite, lorsque nous étudierons l'augmentation de rétrodiffusion avec des atomes comme diffuseurs, nous nous limiterons à l'étude de la diffusion double (qui est l'ordre le plus bas contribuant à la rétrodiffusion cohérente). Il est donc utile d'introduire ici les formules explicites pour les contributions à l'intensité de la diffusion simple et de la diffusion double. Elles s'obtiennent de manière rigoureuse

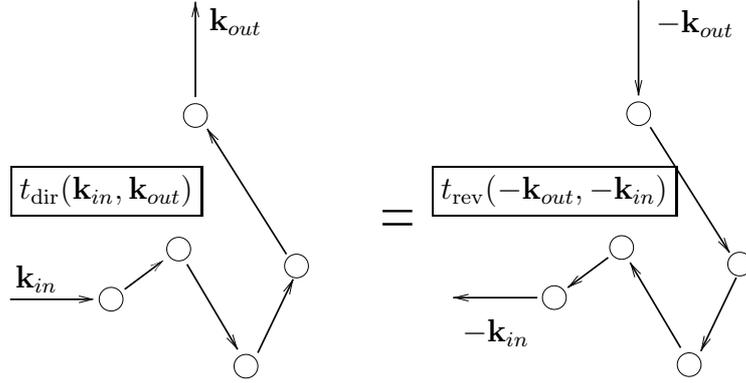


FIG. 4.8 – Illustration de la relation de réciprocité (4.23). En choisissant $\mathbf{k}_{out} = -\mathbf{k}_{in}$, cette propriété peut être utilisée pour obtenir l'égalité des amplitudes des chemins qui interfèrent pour donner l'augmentation de rétrodiffusion.

à partir du développement perturbatif montré plus haut, mais se comprennent à partir d'arguments simples. Par simplicité, nous écrirons ces formules dans le cas d'un milieu semi-infini (*slab* d'épaisseur $L \rightarrow \infty$).

Diffusion simple

La contribution de la diffusion simple au coefficient bistatique (l'intensité diffusée normalisée définie en (4.1)) est [70] :

$$\gamma^{(1)}(\theta) = \frac{n_d |t|^2}{4\pi A} \int_{\text{slab}} d\mathbf{r} e^{-z/\ell} e^{-z/\mu\ell} \quad (4.25)$$

avec $\mu = \cos\theta$, et la variable z est prise suivant la normale à la face d'entrée (pour laquelle $z = 0$). La matrice t et le libre parcours moyen ℓ sont pris à la fréquence du faisceau incident.

Dans cette formule, on intègre sur la position du diffuseur. La première exponentielle rend compte de l'atténuation de l'intensité incidente jusqu'au diffuseur, qui se trouve à une profondeur z . La seconde exponentielle rend compte de l'atténuation de l'intensité diffusée jusqu'à la sortie du *slab*. Enfin, le carré de la matrice t rend compte de la présence d'une diffusion. On peut effectuer l'intégrale, et en utilisant $|t|^2/4\pi = \sigma$ et $n_d \sigma \ell = 1$, on aboutit à :

$$\gamma^{(1)}(\theta) = \frac{1}{1 + \frac{1}{\cos\theta}} \quad (4.26)$$

qui donne 1/2 à rétrodiffusion. La dépendance en θ est un simple effet géométrique ; le cône de rétrodiffusion ayant une largeur $\Delta\theta \sim (k\ell)^{-1} \ll 1$, on peut généralement négliger ce facteur, sauf lorsque l'on s'intéresse aux ailes du cône. Ceci revient à faire $\mu = 1$ dans l'intégrale, ce que nous ferons dans la suite.

Diffusion double

Pour la diffusion double, il faut distinguer la contribution à l'intensité *ladder* (notée $\gamma_L^{(2)}$) et celle à l'intensité *crossed* (notée $\gamma_C^{(2)}$). On a :

$$\gamma_L^{(2)}(\theta) = \frac{n_d^2 |t|^4}{4\pi A} \iint_{\text{slab}} d\mathbf{r}_1 d\mathbf{r}_2 e^{-z_1/\ell} e^{-z_2/\mu\ell} \frac{e^{-r_{12}/\ell}}{(4\pi)^2 r_{12}^2} \quad (4.27)$$

$$\gamma_C^{(2)}(\theta) = \frac{n_d^2 |t|^4}{4\pi A} \iint_{\text{slab}} d\mathbf{r}_1 d\mathbf{r}_2 e^{-\left[\frac{z_1+z_2}{2\ell} (1+1/\mu)\right]} \frac{e^{-r_{12}/\ell}}{(4\pi)^2 r_{12}^2} \cos((\mathbf{k}_{in} + \mathbf{k}_{out}) \cdot \mathbf{r}_{12}) \quad (4.28)$$

Dans ces intégrales, on intègre sur les positions des deux diffuseurs. Elles comportent le propagateur entre les diffuseurs $\exp(-r_{12}/\ell)/((4\pi)^2 r_{12}^2)$, et dans $\gamma_C^{(2)}$ il y a de plus la phase $\cos((\mathbf{k}_{in} + \mathbf{k}_{out}) \cdot \mathbf{r}_{12})$ rendant compte de la différence de phase entre le chemin direct et le chemin inverse. Puisqu'on s'intéresse à l'intensité reçue pour $\theta \ll 1$, on peut poser $\mu = 1$ pour calculer ces intégrales.

Considérons $\gamma_L^{(2)}(\theta)$. On sépare tout d'abord les variables z_1, z_2 (l'axe z est perpendiculaire à la face d'entrée du *slab*) des variables transverses \mathbf{r}_1^\perp et \mathbf{r}_2^\perp . On passe alors aux variables \mathbf{r}_1^\perp (dont l'intégrale donne l'aire A de la face d'entrée du *slab*), \mathbf{r}_{12}^\perp , $z_{12} = z_1 - z_2$ et $z_1 + z_2$. En faisant l'intégrale sur $z_1 + z_2$, on obtient :

$$\gamma_L^{(2)}(\theta) = \frac{n_d^2 |t|^4 \ell}{4\pi} \frac{1}{2} \int_{\mathbb{R}^3} d\mathbf{r}_{12} \frac{e^{-r_{12}/\ell}}{(4\pi)^2 r_{12}^2} e^{-r_{12} |\cos(\theta)|/\ell} \quad (4.29)$$

L'intégrale se fait en passant en coordonnées sphériques. En utilisant $|t|^2/(4\pi) = \sigma$ et $n_d \sigma \ell = 1$, on obtient :

$$\gamma_L^{(2)} = \frac{\ln(2)}{2} \quad (\theta \ll 1) \quad (4.30)$$

Puisque $\gamma_L^{(2)}(\theta)$ est indépendant de θ pour $\theta \ll 1$, on écrit simplement $\gamma_L^{(2)}$. Pour $\gamma_C^{(2)}(\theta)$, on fait les mêmes changements de variable. On choisit de prendre $(\mathbf{k}_{in} + \mathbf{k}_{out})$ suivant l'axe x (ce choix est ici sans incidence pour le résultat). Puisque $\theta \ll 1$, on a $(\mathbf{k}_{in} + \mathbf{k}_{out}) \cdot \mathbf{r}_{12} \simeq k \theta r_{12} \sin(\theta_{12}) \cos(\phi_{12})$ (avec $k = |k_{in}|$). On a alors l'intégrale :

$$\gamma_C^{(2)}(\theta) = \frac{n_d^2 |t|^4 \ell}{4\pi} \frac{1}{2} \frac{1}{(4\pi)^2} \int_{\mathbb{R}^3} d\mathbf{r}_{12} \frac{e^{-r_{12}/\ell (1+|\cos \theta_{12}|)}}{(4\pi)^2 r_{12}^2} \cos(k \theta r_{12} \sin \theta_{12} \cos \phi_{12}) \quad (4.31)$$

qui donne après intégration sur r_{12} :

$$\gamma_C^{(2)}(\theta) = \frac{1}{4\pi} \frac{1}{2} \int_0^{2\pi} d\phi_{12} \int_{-1}^1 d(\cos \theta_{12}) \frac{1 + |\cos \theta_{12}|}{(1 + |\cos \theta_{12}|)^2 + (k\ell\theta)^2 \cos(\phi_{12})^2 (1 - \cos(\theta_{12})^2)} \quad (4.32)$$

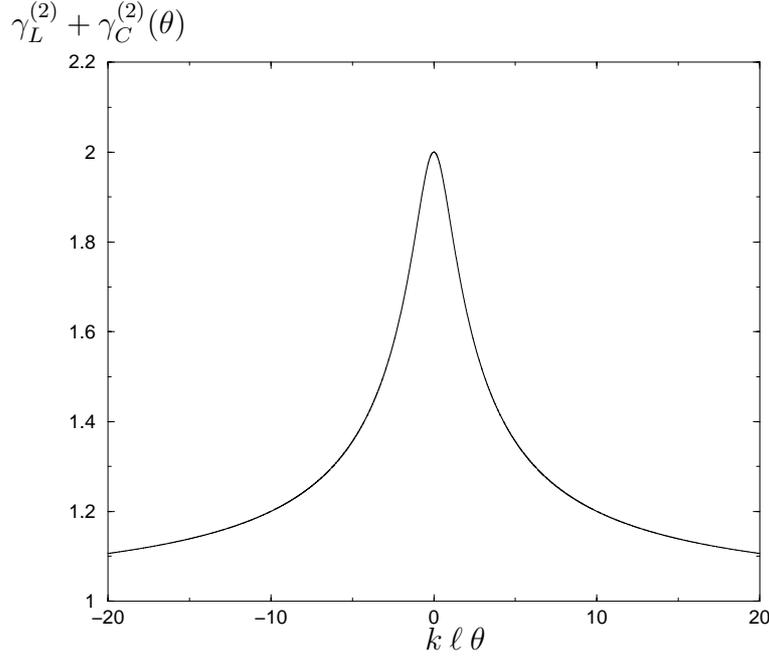


FIG. 4.9 – Courbe de rétrodiffusion pour la diffusion double, pour des diffuseurs ponctuels scalaires, en fonction de la variable réduite $k\ell\theta$. On a normalisé l'intensité incohérente ($\gamma_L^{(2)}$) à 1. On voit d'une part que le facteur d'augmentation est 2, et d'autre part la largeur de la courbe (pour la variable θ) est $\sim (k\ell)^{-1}$.

On peut calculer cette intégrale analytiquement. Notons l'apparition de la variable réduite ($k\ell\theta$), que l'on nomme ici β . $\gamma_C^{(2)}$ s'exprime en fonction de $F(\beta)$:

$$\gamma_C^{(2)}(\theta) = \frac{9}{4} F(\beta) \quad (4.33)$$

avec l'expression suivante pour $F(\beta)$ [86] :

$$F(\beta) = \begin{cases} \frac{2}{\sqrt{1-\beta^2}} \arg \sinh \left(\frac{\sqrt{1+\beta^2}-1}{\sqrt{2}\beta^2} \sqrt{1-\beta^2} \right) & |\beta| < 1 \\ \frac{2}{\sqrt{\beta^2-1}} \arcsin \left(\frac{\sqrt{1+\beta^2}-1}{\sqrt{2}\beta^2} \sqrt{\beta^2-1} \right) & |\beta| > 1 \end{cases} \quad (4.34)$$

Notons que la forme non-intégrée (4.32) nous sera utile dans la suite, puisque nous obtiendrons des expressions très similaires à celle-ci lorsque l'on considérera le cas des ondes vectorielles, et le cas des atomes. La largeur (en θ) de la courbe obtenue est $\sim 1/(k\ell)$. Pour $\theta = 0$, on retrouve la même intégrale que pour $\gamma_L^{(2)}$, et on a donc comme il se doit $\gamma_C^{(2)}(0) = \gamma_L^{(2)}$. La somme $\gamma_L^{(2)} + \gamma_C^{(2)}(\theta)$ est montrée sur la figure 4.9 en fonction de la variable réduite $k\ell\theta$.

4.5 Cône de rétrodiffusion pour les ondes vectorielles

4.5.1 Canaux de polarisation

Nous pouvons maintenant considérer le cas plus réaliste des ondes vectorielles. En plus du vecteur d'onde \mathbf{k} qui spécifie sa fréquence et sa direction, l'onde électromagnétique possède une polarisation $\boldsymbol{\epsilon}$ perpendiculaire à \mathbf{k} . De manière générale, $\boldsymbol{\epsilon}$ est un vecteur complexe décrivant une polarisation elliptique. Dans la suite, nous utiliserons deux bases distinctes permettant de décrire la polarisation :

- la base des polarisations linéaires $(\boldsymbol{\epsilon}_x, \boldsymbol{\epsilon}_y)$, où $\boldsymbol{\epsilon}_x$ et $\boldsymbol{\epsilon}_y$ sont des vecteurs réels parallèles respectivement aux axes x et y d'un trièdre dont l'axe z est suivant \mathbf{k}
- la base des polarisations circulaires $(\boldsymbol{\epsilon}_+, \boldsymbol{\epsilon}_-)$, $\boldsymbol{\epsilon}_+$ ayant une hélicité positive et $\boldsymbol{\epsilon}_-$ une hélicité négative, l'hélicité étant le sens de rotation de la polarisation par rapport à la direction de propagation. On a les relations

$$\begin{aligned}\boldsymbol{\epsilon}_+ &= -\frac{1}{\sqrt{2}}(\boldsymbol{\epsilon}_x + i\boldsymbol{\epsilon}_y) \\ \boldsymbol{\epsilon}_- &= \frac{1}{\sqrt{2}}(\boldsymbol{\epsilon}_x - i\boldsymbol{\epsilon}_y)\end{aligned}\tag{4.35}$$

Ces deux bases distinctes mènent à la définition de quatre canaux de polarisation pour les expériences de rétrodiffusion cohérente, suivant le choix de la polarisation incidente et de la polarisation détectée à rétrodiffusion. Ces canaux sont les suivants :

- **linéaire parallèle** (ou $lin \parallel lin$) et **linéaire perpendiculaire** (ou $lin \perp lin$), où la polarisation incidente est linéaire, et où l'on détecte la lumière diffusée soit dans la même polarisation (canal $lin \parallel lin$), soit dans la polarisation perpendiculaire (canal $lin \perp lin$).
- **hélicité conservée** (ou $h \parallel h$) et **hélicité inversée** (ou $h \perp h$), où l'on envoie une polarisation circulaire d'hélicité donnée, et où l'on détecte la lumière diffusée soit avec la même hélicité (canal $h \parallel h$), soit avec l'hélicité opposée (canal $h \perp h$). Notons que, puisque l'hélicité est définie relativement à la direction de propagation, la polarisation sortante dans le canal "hélicité conservée" a, vu depuis une base fixe, un sens de rotation opposé à celui de la polarisation entrante, à cause de l'inversion de la direction de propagation pour la rétrodiffusion.

L'expression des polarisations entrante et sortante pour les quatre canaux de polarisation, dans une base fixe, est donnée dans le tableau 4.1. Outre ces quatre canaux, on peut bien sûr définir des canaux mélangeant les polarisations linéaires et circulaires, mais nous ne les utiliserons pas.

Notons que dans les canaux linéaires, la polarisation incidente introduit une direction privilégiée dans le plan perpendiculaire à la direction incidente, ce qui signifie que l'intensité diffusée dépend non seulement de l'angle θ de la direction

	ϵ_{in}	ϵ_{out}
$lin \parallel lin$	ϵ_x	ϵ_x
$lin \perp lin$	ϵ_x	ϵ_y
$h \parallel h$	$-\frac{1}{\sqrt{2}}(\epsilon_x + i\epsilon_y)$	$-\frac{1}{\sqrt{2}}(\epsilon_x - i\epsilon_y)$
$h \perp h$	$-\frac{1}{\sqrt{2}}(\epsilon_x + i\epsilon_y)$	$-\frac{1}{\sqrt{2}}(\epsilon_x + i\epsilon_y)$

TAB. 4.1 – Expressions des polarisations entrante et sortante pour les quatre canaux de polarisation, dans une base fixe (par exemple celle définie par la direction incidente).

de sortie par rapport à la direction incidente, mais également de la déviation par rapport à la direction définie par la polarisation incidente. On s'attend donc *a priori* à observer, dans les canaux linéaires, des cônes de rétrodiffusion anisotropes, différents suivant que l'on fait varier l'angle θ parallèlement ou perpendiculairement à la polarisation incidente.

4.5.2 Diffuseur ponctuel pour les ondes vectorielles

La définition rigoureuse d'un diffuseur ponctuel pour les ondes vectorielles s'obtient de la même manière que pour les ondes scalaires, en régularisant les divergences qui apparaissent lors de l'utilisation d'un potentiel $g \delta(\mathbf{r})$ [15, 62]. On aboutit ainsi au diffuseur ponctuel dipolaire (aussi appelé diffuseur de Rayleigh), défini par la matrice t suivante (pour un diffuseur en \mathbf{r}_0) :

$$t(\mathbf{r}, \mathbf{r}', k) = 1 t(k) \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_0) \delta(\mathbf{r}' - \mathbf{r}_0) \quad (4.36)$$

où 1 est la matrice unité 3x3 agissant dans l'espace des polarisations, et $t(k)$ est donnée par :

$$t(k) = (-1) \left(\frac{\omega}{\omega_0} \right)^2 \frac{6\pi\Gamma c}{\omega_0^2 - \omega^2 - i\Gamma\omega^3/\omega_0^2} \quad (4.37)$$

avec $\omega = kc$. Cette expression est presque identique à l'expression correspondante pour un diffuseur ponctuel scalaire (éq. (4.13)), le facteur 4π de (4.13) devenant ici un facteur 6π . Cette matrice définit un diffuseur qui a les mêmes propriétés que le diffuseur ponctuel scalaire (résonant à la fréquence ω_0 , largeur de résonance Γ , section efficace totale à résonance $\sigma(\omega_0/c) = (3/2)\lambda^2/\pi$), mais qui émet un rayonnement dipolaire avec un dipôle induit parallèle au dipôle incident (cf. la matrice 1 dans (4.36)) - d'où le nom de diffuseur dipolaire.

Notons que la matrice t donnée ici correspond à la limite de plusieurs systèmes physiques [15]. Elle peut notamment se voir comme la matrice t pour un diffuseur de Mie, à la limite où la taille du diffuseur est très petite devant la longueur d'onde du rayonnement incident [62, 87].

On obtient la fonction de Green moyenne de la même manière que dans le cas scalaire. La fonction de Green libre s'écrit ici (en champ lointain, c'est-à-dire $kr \gg 1$) [15] :

$$G_0(\mathbf{r}; k) = \frac{-1}{4\pi r} e^{ikr} \Delta_{\mathbf{r}} \quad (4.38)$$

où $\Delta_{\mathbf{r}}$, qui agit dans l'espace des polarisations, est le projecteur sur le plan perpendiculaire à \mathbf{r} (avec $\hat{\mathbf{r}} = \mathbf{r}/r$) :

$$(\Delta_{\mathbf{r}})_{ij} = \delta_{ij} - \hat{r}_i \hat{r}_j \quad (i, j = x, y, z) \quad (4.39)$$

Le présence de ce projecteur traduit la structure transverse du champ électromagnétique. A l'ordre le plus bas en la densité de diffuseurs n_d , on aboutit au même libre parcours moyen $l(k)$ que précédemment :

$$\frac{1}{\ell(k)} = n_d \sigma(k) \quad (4.40)$$

Notons que le fait que le libre parcours moyen ne dépende pas de la direction de propagation est une conséquence du caractère isotrope de la polarisabilité des diffuseurs utilisés (le dipôle induit étant proportionnel au dipôle incident indépendamment de la direction de celui-ci). Ceci entraîne que le libre parcours moyen de transport ℓ_t est égal au libre parcours moyen de diffusion ℓ (voir équation (4.18))

La fonction de Green moyenne s'écrit donc (pour $kr \gg 1$) :

$$\langle G(\mathbf{r}; k) \rangle = \frac{-1}{4\pi r} \exp(im(k)kr) \exp\left(-\frac{r}{2\ell(k)}\right) \Delta_{\mathbf{r}} \quad (4.41)$$

4.5.3 Réciprocité et facteur d'augmentation dans les différents canaux de polarisation

Expérimentalement, l'augmentation de rétrodiffusion observée est très différente suivant le canal de polarisation utilisé. Dans chacun des canaux parallèles ($lin \parallel lin$ et $h \parallel h$), on observe un cône très similaire au cône prévu pour les ondes scalaires. Par contre, dans chacun des canaux perpendiculaires ($lin \perp lin$ et $h \perp h$), on n'observe qu'une très faible augmentation à rétrodiffusion (le calcul théorique exact [80] prévoit un facteur d'augmentation de ~ 1.12 en $lin \perp lin$ et de 1.25 en $h \perp h$). Ces résultats peuvent se comprendre simplement à partir de la réciprocité.

La relation de réciprocité (équation (4.23) pour les ondes scalaires) tient maintenant compte de la polarisation, et s'écrit pour un chemin direct donné :

$$t_{\text{dir}}(\mathbf{k}_{in}\boldsymbol{\epsilon}_{in}, \mathbf{k}_{out}\boldsymbol{\epsilon}_{out}) = t_{\text{rev}}(-\mathbf{k}_{out}\boldsymbol{\epsilon}_{out}^*, -\mathbf{k}_{in}\boldsymbol{\epsilon}_{in}^*) \quad (4.42)$$

où t_{rev} est l'amplitude du chemin inverse correspondant, qui passe par les mêmes diffuseurs, mais dans l'ordre inverse. Comme dans le cas scalaire, cette propriété de symétrie peut être utilisée afin d'obtenir l'égalité des amplitudes entre le chemin

direct et le chemin inverse qui interfèrent pour la rétrodiffusion cohérente, qui ont comme amplitude à rétrodiffusion

$$t_{\text{dir}}(\mathbf{k}_{in}\boldsymbol{\epsilon}_{in}, -\mathbf{k}_{in}\boldsymbol{\epsilon}_{out}) \quad \text{et} \quad t_{\text{rev}}(\mathbf{k}_{in}\boldsymbol{\epsilon}_{in}, -\mathbf{k}_{in}\boldsymbol{\epsilon}_{out}) \quad (4.43)$$

Il faut pour cela, comme dans le cas scalaire, $\mathbf{k}_{out} = -\mathbf{k}_{in}$, c'est-à-dire se placer à rétrodiffusion, mais il faut de plus $\boldsymbol{\epsilon}_{out}^* = \boldsymbol{\epsilon}_{in}$. La relation de réciprocité s'écrit alors :

$$t_{\text{dir}}(\mathbf{k}_{in}\boldsymbol{\epsilon}_{in}, -\mathbf{k}_{in}\boldsymbol{\epsilon}_{in}^*) = t_{\text{rev}}(\mathbf{k}_{in}\boldsymbol{\epsilon}_{in}, -\mathbf{k}_{in}\boldsymbol{\epsilon}_{in}^*) \quad (4.44)$$

qui établit bien l'égalité entre les deux amplitudes qui interfèrent pour contribuer à la rétrodiffusion cohérente.

La condition $\boldsymbol{\epsilon}_{out} = \boldsymbol{\epsilon}_{in}^*$ est réalisée dans deux canaux de polarisation : $lin \parallel lin$ et $h \parallel h$ (la polarisation sortante est le conjugué de la polarisation entrante en $h \parallel h$, car dans une base fixe, pour conserver l'hélicité quand la direction de propagation est inversée, il faut changer le sens de rotation de la polarisation - voir tableau 4.1). Ceci signifie que, pour ces deux canaux, la réciprocité assure l'égalité des amplitudes pour chaque paire de chemins associés, et entraîne donc une augmentation d'un facteur 2 pour l'intensité de chaque paire de chemins à rétrodiffusion. On s'attend donc à observer, dans ces deux canaux, un cône de rétrodiffusion important, avec un facteur d'augmentation proche de 2. La déviation par rapport à un facteur d'augmentation valant exactement 2 est due, comme dans le cas scalaire, à la diffusion simple. L'importance de celle-ci dépend du canal utilisé : en $lin \parallel lin$, elle contribue de manière importante (menant à un facteur d'augmentation de 1,75 pour un slab semi-infini [80]) ; par contre, en $h \parallel h$, la diffusion simple est nulle à rétrodiffusion (le sens de rotation de la polarisation de la lumière diffusée étant le même que celui de la lumière incidente, l'hélicité est inversée pour la rétrodiffusion à cause de l'inversion de la direction) ce qui signifie qu'un facteur d'augmentation rigoureusement égal à 2 est observable (comme le montre la figure 4.4 qui a été obtenue dans ce canal). Remarquons que ceci est une conséquence de l'isotropie de la polarisabilité des diffuseurs que l'on considère. En pratique, la diffusion simple sera présente à rétrodiffusion en $h \parallel h$ si l'on utilise des diffuseurs non sphériques par exemple.

La situation est très différente dans les canaux perpendiculaires ($lin \perp lin$ et $h \perp h$). Pour ces canaux, la condition $\boldsymbol{\epsilon}_{out} = \boldsymbol{\epsilon}_{in}^*$ n'est pas satisfaite, ce qui signifie que la propriété de réciprocité (4.42) ne peut pas être utilisée pour obtenir l'égalité à rétrodiffusion des amplitudes t_{dir} et t_{rev} des chemins qui interfèrent. Ces amplitudes n'ont donc pas de raison d'être égales, et ne le sont pas en général. Cela signifie que l'interférence entre deux chemins associés sera plus ou moins constructive - ou destructive - suivant la configuration géométrique de la paire de chemins considérée. On s'attend donc à ce que les effets d'interférence disparaissent en moyenne, et donc à l'absence d'augmentation cohérente à rétrodiffusion. Il y a toutefois une exception : pour les chemins de diffusion double, on a toujours

$t_{\text{dir}} = t_{\text{rev}}$, quel que soit le canal de polarisation. En effet, si l'on considère un trajet de diffusion double, passant par les atomes 1 et 2, la partie liée aux polarisations dans l'amplitude du chemin est, pour le chemin direct :

$$(\boldsymbol{\epsilon}_{\text{out}}^* \cdot \Delta_{\mathbf{r}_{12}} \cdot \boldsymbol{\epsilon}_{\text{in}}) \quad (4.45)$$

et pour le chemin inverse :

$$(\boldsymbol{\epsilon}_{\text{out}}^* \cdot \Delta_{\mathbf{r}_{21}} \cdot \boldsymbol{\epsilon}_{\text{in}}) \quad (4.46)$$

où $\boldsymbol{\epsilon}_{\text{in}}$ et $\boldsymbol{\epsilon}_{\text{out}}$ sont les polarisations incidente et détectée, et où $\Delta_{\mathbf{r}_{12}}$ (respectivement $\Delta_{\mathbf{r}_{21}}$) est le projecteur sur le plan perpendiculaire à \mathbf{r}_{12} (resp. \mathbf{r}_{21}), qui provient de la fonction de Green (équation (4.41)). Puisque $\Delta_{\mathbf{r}_{12}} = \Delta_{\mathbf{r}_{21}}$, on voit que les termes liés aux polarisations sont égaux pour le chemin direct et le chemin inverse, indépendamment de $\boldsymbol{\epsilon}_{\text{in}}$ et $\boldsymbol{\epsilon}_{\text{out}}$, et donc $t_{\text{dir}} = t_{\text{rev}}$ pour la diffusion double, quel que soit le canal de polarisation. Cette propriété n'est plus vraie dès que l'on considère la diffusion triple, pour laquelle apparaît le produit des deux projecteurs (pour \mathbf{r}_{12} et \mathbf{r}_{23}) qui ne commutent pas. Ceci signifie que la diffusion double entraîne toujours une augmentation cohérente de la rétrodiffusion. Pour les canaux perpendiculaires, on s'attend donc à observer une courbe d'augmentation cohérente de rétrodiffusion avec un facteur d'augmentation faible (puisque c'est essentiellement la diffusion double qui y contribue), plus large que dans les canaux parallèles (puisque les ordres de diffusion élevés, qui apportent une contribution étroite dans les canaux parallèles, ne contribuent pas ici à l'augmentation), et bien sûr non-pointue (même raison). Expérimentalement, un facteur d'augmentation de 1,12 a été obtenu dans le canal $\text{lin} \perp \text{lin}$ pour un slab pratiquement semi-infini [88]. Notons que la contribution de la diffusion simple à la rétrodiffusion est également nulle dans le canal $\text{lin} \perp \text{lin}$.

Les degrés de liberté supplémentaires apportés par la polarisation jouent donc un rôle important dans la rétrodiffusion cohérente. Pour obtenir un facteur d'augmentation élevé (c'est-à-dire proche de 2), il faut nécessairement utiliser les canaux de polarisation parallèles, pour lesquels la réciprocité est utilisable. De plus, il est possible de supprimer la contribution de la diffusion simple à rétrodiffusion par le choix du canal ($h \parallel h$ ou $\text{lin} \perp \text{lin}$).

4.5.4 Formules explicites : diffusion simple et diffusion double

Les formules explicites pour la diffusion simple et la diffusion double écrites dans le cas scalaires (voir section 4.4.5) se généralisent aisément au cas vectoriel. Le coefficient bistatique dépend maintenant explicitement des polarisations $\boldsymbol{\epsilon}_{\text{in}}$ et $\boldsymbol{\epsilon}_{\text{out}}$.

Pour la diffusion simple, on a :

$$\gamma^{(1)}(\theta) = \frac{n_d |t|^2}{4\pi A} |\boldsymbol{\epsilon}_{\text{out}}^* \cdot \boldsymbol{\epsilon}_{\text{in}}|^2 \int_{\text{slab}} d\mathbf{r} e^{-z/\ell} e^{-z/\mu\ell} \quad (4.47)$$

qui donne, en utilisant $|t|^2/(6\pi) = \sigma$ et $n_d\sigma l = 1$, et pour $\theta \ll 1$:

$$\gamma^{(1)} = \frac{3}{4} |\boldsymbol{\epsilon}_{out}^* \cdot \boldsymbol{\epsilon}_{in}|^2 \quad (\theta \ll 1) \quad (4.48)$$

Les polarisations apparaissent simplement dans le produit $|\boldsymbol{\epsilon}_{out}^* \cdot \boldsymbol{\epsilon}_{in}|^2$. On voit que l'intensité de diffusion simple est nulle à rétrodiffusion pour le canal $lin \perp lin$ ($\boldsymbol{\epsilon}_{out}^* = \boldsymbol{\epsilon}_{out} \perp \boldsymbol{\epsilon}_{in}$) et pour le canal $h \parallel h$ ($\boldsymbol{\epsilon}_{in} = \boldsymbol{\epsilon}_+$, $\boldsymbol{\epsilon}_{out} = \boldsymbol{\epsilon}_+$, $\Rightarrow \boldsymbol{\epsilon}_{out}^* \cdot \boldsymbol{\epsilon}_{in} = \boldsymbol{\epsilon}_+ \cdot \boldsymbol{\epsilon}_+ = 0$).

Pour la diffusion double, on a :

$$\gamma_L^{(2)}(\theta) = \frac{n^2|t|^4}{4\pi A} \iint_{\text{slab}} d\mathbf{r}_1 d\mathbf{r}_2 e^{-z_1/\ell} e^{-z_2/\mu\ell} \frac{e^{-r_{12}/\ell}}{(4\pi)^2 r_{12}^2} |\boldsymbol{\epsilon}_{out}^* \cdot \Delta_{12} \cdot \boldsymbol{\epsilon}_{in}|^2 \quad (4.49)$$

$$\gamma_C^{(2)}(\theta) = \frac{n^2|t|^4}{4\pi A} \iint_{\text{slab}} d\mathbf{r}_1 d\mathbf{r}_2 e^{-\frac{z_1+z_2}{2\ell} (1+1/\mu)} \frac{e^{-r_{12}/\ell}}{(4\pi)^2 r_{12}^2} |\boldsymbol{\epsilon}_{out}^* \cdot \Delta_{12} \cdot \boldsymbol{\epsilon}_{in}|^2 \cos((\mathbf{k}_{in} + \mathbf{k}_{out}) \cdot \mathbf{r}_{12}) \quad (4.50)$$

avec $\Delta_{12} = \Delta_{\mathbf{r}_{12}}$ (c'est-à-dire le projecteur sur le plan perpendiculaire à \mathbf{r}_{12}). Les intégrales se font comme pour les diffuseurs scalaires. On aboutit, pour $\theta \ll 1$, à :

$$\gamma_L^{(2)} = \frac{9}{16\pi} \frac{1}{2} \int_0^{2\pi} d\phi_{12} \int_{-1}^1 d(\cos \theta_{12}) \frac{|\boldsymbol{\epsilon}_{out}^* \cdot \Delta_{12} \cdot \boldsymbol{\epsilon}_{in}|^2}{1 + |\cos \theta_{12}|} \quad (4.51)$$

$$\gamma_C^{(2)}(\theta) = \frac{9}{16\pi} \frac{1}{2} \int_0^{2\pi} d\phi_{12} \int_{-1}^1 d(\cos \theta_{12}) \frac{(1 + |\cos \theta_{12}|) |\boldsymbol{\epsilon}_{out}^* \cdot \Delta_{12} \cdot \boldsymbol{\epsilon}_{in}|^2}{(1 + |\cos \theta_{12}|)^2 + (k\ell\theta)^2 \cos(\phi_{12})^2 (1 - \cos(\theta_{12})^2)} \quad (4.52)$$

Ces expressions permettent de calculer l'intensité reçue dans les différents canaux de polarisation. Notons qu'il est possible de calculer ces intégrales analytiquement, et que le résultat - qui est assez lourd à écrire - contient comme ingrédient essentiel la fonction $F(\beta)$ définie dans le cas des diffuseurs scalaires (équation (4.34)) [86]. On voit que, pour $\theta = 0$, on a $\gamma_L^{(2)} = \gamma_C^{(2)}(0)$ dans tous les canaux de polarisation, ce qui est spécifique à la diffusion double (à partir de la diffusion triple, cette égalité n'est vraie que dans les canaux parallèles où elle est assurée par la réciprocité). Notons enfin que pour les canaux de polarisation parallèles, $\gamma_C^{(2)}(\theta)$ dépend en plus de la direction de $(\mathbf{k}_{in} + \mathbf{k}_{out})$ dans le plan transverse : on a choisi ici $(\mathbf{k}_{in} + \mathbf{k}_{out})$ suivant l'axe x , ce qui apparaît dans le $\cos(\phi_{12})^2$ au dénominateur (le choix de l'axe y par exemple donnerait à la place $\sin(\phi_{12})^2$). A cause du terme contenant les polarisations, le résultat dépend de ce choix dans les canaux linéaires. En choisissant la polarisation incidente suivant l'axe x , on parle de $scan \parallel$ pour $(\mathbf{k}_{in} + \mathbf{k}_{out})$ suivant x et de $scan \perp$ pour $(\mathbf{k}_{in} + \mathbf{k}_{out})$ suivant y .

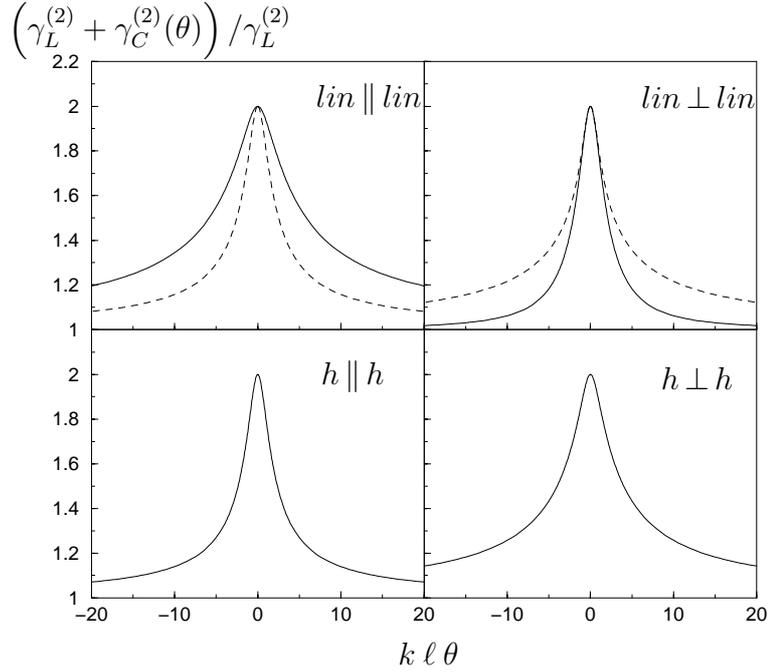


FIG. 4.10 – Courbes représentant l'intensité de diffusion double $(1 + \gamma_C^{(2)}(\theta))/\gamma_L^{(2)}$, voir formules (4.51) et (4.52) pour des diffuseurs ponctuels dipolaires dans les quatre canaux de polarisation, en fonction de la variable réduite $kl\theta$. Les courbes en tireté dans les canaux linéaires correspondent à des choix différents de la direction de $(\mathbf{k}_{in} + \mathbf{k}_{out})$ par rapport à ϵ_{in} (perpendiculaire à ϵ_{in} en $lin \parallel lin$; à $\pi/4$ en $lin \perp lin$). Le fait d'observer un facteur d'augmentation égal à 2 dans tous les canaux de polarisation est spécifique à la diffusion double.

La figure (4.10) montre les courbes obtenues à partir des formules (4.51) et (4.52) dans les quatre canaux de polarisation, en fonction de la variable réduite $kl\theta$. On a normalisé l'intensité incohérente à 1 dans tous les canaux. Les valeurs non normalisées sont les suivantes :

$lin \parallel lin : \gamma_L^{(2)} = 0,393$	$lin \perp lin : \gamma_L^{(2)} = 0,059$	(4.53)
$h \parallel h : \gamma_L^{(2)} = 0,117$	$h \perp h : \gamma_L^{(2)} = 0,344$	

On voit que l'intensité incohérente est faible dans les canaux $lin \perp lin$ et $h \parallel h$, ce qui signifie que la diffusion double sur des diffuseurs dipolaires dépolarise peu l'onde incidente. La largeur de la courbe obtenue varie entre $\Delta\theta \simeq 5(kl)^{-1}$ et $\Delta\theta \simeq 10(kl)^{-1}$. Les courbes en tireté dans les canaux linéaires correspondent à des *scans* autres que parallèle : en $lin \parallel lin$, $(\mathbf{k}_{in} + \mathbf{k}_{out})$ suivant l'axe y (avec ϵ_{in} suivant l'axe x); en $lin \perp lin$, $(\mathbf{k}_{in} + \mathbf{k}_{out})$ à $\pi/4$ entre les axes x et y (les axes x et y donnant le même résultat). On voit que la largeur des courbes obtenues varie notablement quand la direction de $(\mathbf{k}_{in} + \mathbf{k}_{out})$ varie dans le plan (x, y) .

Chapitre 5

Calcul perturbatif de l'intensité diffusée par des atomes

5.1 Introduction

Ce chapitre est consacré au calcul perturbatif de l'intensité diffusée par des atomes. Le but est d'obtenir des expressions explicites pour l'intensité de diffusion simple sur un atome, et de diffusion double sur deux atomes. Ces expressions seront utilisées dans le chapitre suivant afin de calculer l'intensité rétrodiffusée par des atomes dans un *slab*, en se limitant à la diffusion simple et double. Le formalisme utilisé est celui de la matrice S . Les degrés de liberté internes des atomes, ainsi que le champ électromagnétique, sont traités quantiquement. Le calcul est perturbatif, car il est limité au premier ordre en l'intensité incidente, ce qui revient à se limiter à la diffusion d'un photon du faisceau incident par les atomes. Ceci signifie que l'on néglige tous les effets de saturation de la transition atomique, ainsi que les effets éventuels du pompage optique. Comme expliqué dans la section 3.7.3, il est expérimentalement simple de se placer dans un régime où cette approximation est valide, en utilisant une intensité incidente suffisamment faible.

Le plan de ce chapitre est le suivant. Nous calculons tout d'abord l'intensité de diffusion simple sur un atome, ce qui nous permet d'introduire le hamiltonien du système et les méthodes utilisées. Les résultats du calcul de l'intensité nous permettent ensuite d'obtenir la section efficace de diffusion, et de comparer le cas d'un atome à celui d'un diffuseur ponctuel dipolaire. On calcule ensuite de la même manière l'intensité de diffusion double sur deux atomes, comprenant une contribution incohérente et une contribution due à l'interférence entre les chemins de diffusion associés.

5.2 Diffusion simple sur un atome

Nous considérons tout d'abord la diffusion de la lumière par un seul atome. Ceci nous permet de détailler les hypothèses et la technique de calcul utilisée. La généralisation au cas de la diffusion double se fera ensuite simplement.

Nous allons faire le calcul dans le cadre de la théorie de la diffusion [13, 73], en utilisant la matrice S , et en nous limitant au premier ordre non-nul du développement perturbatif en terme de l'intensité incidente - c'est-à-dire à la diffusion d'un seul photon du faisceau incident.

Nous considérons donc un atome immobile au point \mathbf{r} , soumis à un laser de fréquence ω_L (vecteur d'onde \mathbf{k}_L , polarisation $\boldsymbol{\epsilon}_L$) qui est quasi-résonant avec la transition atomique fermée de fréquence ω_0 ($\omega_L = \omega_0 + \delta$, $\delta \ll \omega_0$) entre un état fondamental de moment angulaire¹ J et un état excité de moment angulaire J_e . Puisque le système n'est soumis à aucun champ magnétique extérieur, les sous-niveaux Zeeman $|J, m\rangle$ (avec $-J \leq m \leq J$) de l'état fondamental sont dégénérés, de même que les sous-niveaux $|J_e, m_e\rangle$ de l'état excité. Dans la suite, nous noterons souvent les sous-niveaux de l'état fondamental $|J, m\rangle$ sous la forme $|m\rangle$.

La théorie de la diffusion permet de calculer la matrice S qui relie le vecteur d'état du système atome-champ après la diffusion $|\psi_{out}\rangle$ au vecteur d'état initial $|\psi_{in}\rangle$ avant la diffusion :

$$|\psi_{out}\rangle = S |\psi_{in}\rangle \quad (5.1)$$

Le vecteur d'état initial $|\psi_{in}\rangle$ représente l'atome dans son état fondamental (dans le sous niveau m_i) et le champ incident (noté $|\phi_i\rangle$) avant leur interaction :

$$|\psi_{in}\rangle = |\phi_i\rangle \otimes |m_i\rangle \quad (5.2)$$

Le vecteur d'état final $|\psi_{out}\rangle$ représente l'atome dans son état fondamental (avec en général plusieurs possibilités pour les sous-niveaux finals m_f), et l'ensemble du champ diffusé alors que l'atome et le champ ont cessé d'interagir :

$$|\psi_{out}\rangle = \sum_f c_f |\phi_f\rangle \otimes |m_f\rangle \quad (5.3)$$

Puisque la relation entre le vecteur d'onde final et le vecteur d'onde initial est linéaire, on peut s'intéresser au cas où le champ incident est simplement une onde plane :

$$|\phi_i\rangle = |N\mathbf{k}_L\boldsymbol{\epsilon}_L\rangle \quad (5.4)$$

avec N photons dans le mode du champ de vecteur d'onde \mathbf{k}_L (fréquence $\omega_L = \omega_0 + \delta$) et de polarisation $\boldsymbol{\epsilon}_L$. Une fois le résultat connu pour une onde plane, il est possible de construire pour l'état du champ incident un paquet d'onde, ce qui permet de rendre compte de l'incertitude pour la phase et l'intensité du laser

¹Par simplicité, on note le moment angulaire de l'état fondamental J plutôt que J_g .

incident. Cette démarche est *a priori* nécessaire pour le calcul des quantités physiques (intensité diffusée, fonctions de corrélation, ...). Par simplicité, plutôt que de construire des paquets d'ondes, nous utiliserons ici la méthode du "branchement adiabatique" du potentiel [89, 73]. Celle-ci permet d'obtenir les résultats en se limitant au calcul pour une onde plane, ce qui simplifie les expressions. Le principe consiste à simuler le passage du paquet d'onde incident pendant un temps T_{int} fini (correspondant à la taille finie du paquet d'onde incident) par le branchement adiabatique du potentiel d'interaction entre le champ et l'atome sur un intervalle de temps de l'ordre de T_{int} .

5.2.1 Hamiltonien du système

Le hamiltonien H du système atome-champ peut se séparer en une partie H_0 comprenant l'atome libre et le champ libre, et l'interaction V entre l'atome et le champ [73] :

$$H = H_0 + V \quad (5.5)$$

avec

$$H_0 = \hbar\omega_0 \sum_{m_e} |J_e, m_e\rangle \langle J_e, m_e| + \sum_{\mathbf{k}\epsilon} \hbar\omega a_{\mathbf{k}\epsilon}^+ a_{\mathbf{k}\epsilon} \quad (5.6)$$

où la somme sur $\mathbf{k}\epsilon$ porte sur tous les modes du champ, $a_{\mathbf{k}\epsilon}^+$ et $a_{\mathbf{k}\epsilon}$ étant les opérateurs usuels de création et annihilation du champ, et

$$V = -\mathbf{d} \cdot \mathbf{E}(\mathbf{r}) \quad (5.7)$$

où \mathbf{d} est l'opérateur dipôle reliant les sous-espaces associés à l'état fondamental (J) et à l'état excité (J_e). Le champ électrique \mathbf{E} est considéré à la position \mathbf{r} de l'atome, et a pour expression :

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}) = i \sum_{\mathbf{k}\epsilon} g_\omega (\epsilon a_{\mathbf{k}\epsilon} e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} - \epsilon^* a_{\mathbf{k}\epsilon}^+ e^{-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}}) \quad (5.8)$$

avec $\omega = |\mathbf{k}|/c$, et où g_ω donne la force du champ : $g_\omega = \sqrt{\hbar\omega/2\epsilon_0 L^3}$, L^3 étant le volume de quantification (un intermédiaire de calcul, devant disparaître dans l'expression des quantités physiques).

5.2.2 Composantes sphériques et action du dipôle

Nous serons amenés à utiliser les composantes sphériques de l'opérateur dipôle \mathbf{d} , qui permettent d'exprimer simplement son action sur un état $|J, m\rangle$ ou $|J_e, m_e\rangle$. La base sphérique est définie à partir des vecteurs unitaires suivants :

$$\begin{cases} \mathbf{e}_0 &= \mathbf{e}_z \\ \mathbf{e}_{+1} &= \frac{-1}{\sqrt{2}} (\mathbf{e}_x + i \mathbf{e}_y) \\ \mathbf{e}_{-1} &= \frac{1}{\sqrt{2}} (\mathbf{e}_x - i \mathbf{e}_y) \end{cases} \quad (5.9)$$

Un vecteur quelconque \mathbf{a} se décompose sur la base sphérique :

$$\mathbf{a} = \sum_{q=0,\pm 1} a_q \mathbf{e}_q \quad (5.10)$$

avec $a_q = \mathbf{e}_q^* \cdot \mathbf{a}$. Le produit scalaire entre deux vecteurs, par exemple $\mathbf{d} \cdot \boldsymbol{\epsilon}$, s'exprime en fonction des composantes sphériques :

$$\mathbf{d} \cdot \boldsymbol{\epsilon} = \sum_q (-1)^q d_q \epsilon_{-q} = d_0 \epsilon_0 - d_{+1} \epsilon_{-1} - d_{-1} \epsilon_{+1} \quad (5.11)$$

Pour exprimer l'action de \mathbf{d} , notons tout d'abord que, puisque \mathbf{d} est un opérateur vectoriel dont on considère les éléments de matrice entre deux sous-espaces de moment angulaire fixé (J et J_e), il est intéressant d'introduire l'élément de matrice réduit $d = \langle J_e || \mathbf{d} || J \rangle$. D'après le théorème de Wigner-Eckhardt [90], les éléments de matrice de \mathbf{d} s'expriment alors simplement en fonction des coefficients de Clebsch-Gordan (du type $\langle J_e, m_e + q | J, 1; m, q \rangle$) multipliés par d . L'opérateur \mathbf{d} se décompose en deux parties :

$$\mathbf{d} = \mathbf{d}^+ + \mathbf{d}^- \quad (5.12)$$

\mathbf{d}^+ étant l'opérateur qui fait passer du sous-espace $|J, m\rangle$ au sous-espace $|J_e, m_e\rangle$ (“+” car il fait monter l'atome dans son état excité), et \mathbf{d}^- l'opérateur qui fait passer du sous-espace $|J_e, m_e\rangle$ au sous-espace $|J, m\rangle$ (“-” car il fait descendre l'atome dans son état fondamental). On a les relations suivantes :

$$d_q |J, m\rangle = d_q^+ |J, m\rangle = d \langle J_e, m + q | J, 1; m, q \rangle |J_e, m + q\rangle \quad (5.13)$$

$$d_q |J_e, m_e\rangle = d_q^- |J_e, m_e\rangle = d (-1)^q \langle J_e, m_e | J, 1; m_e + q, -q \rangle |J, m_e + q\rangle \quad (5.14)$$

où $\langle J_e, m + q | J, 1; m, q \rangle$ est un coefficient de Clebsch-Gordan². Puisque tous les coefficients de Clebsch-Gordan résultant de l'action de \mathbf{d} rendent compte du changement de base entre la base du moment cinétique couplé J_e et celle des moments découplés J et 1 (moment angulaire du photon), nous utiliserons la notation compacte :

$$\langle J_e, m + q | J, 1; m, q \rangle = C(m, m + q) \quad (5.15)$$

le premier argument de $C(m_1, m_2)$ étant toujours le nombre quantique magnétique de l'état fondamental, et le deuxième argument celui de l'état excité. L'action de \mathbf{d} s'écrit alors :

$$d_q |J, m\rangle = d C(m, m + q) |J_e, m + q\rangle \quad (5.16)$$

$$d_q |J_e, m_e\rangle = d (-1)^q C(m_e + q, m_e) |J, m_e + q\rangle \quad (5.17)$$

Dans la suite, nous utiliserons également l'opérateur réduit $\mathbf{d}' = \mathbf{d}/d$.

²Pour la relation (5.14), on a exprimé $\langle J, m_e + q | J_e, 1; m_e, q \rangle$ en fonction de $\langle J_e, m_e | J, 1; m_e + q, -q \rangle$, et $\langle J || \mathbf{d} || J_e \rangle$ en fonction de $\langle J_e || \mathbf{d} || J \rangle = d$.

5.2.3 Calcul perturbatif de la matrice S

L'élément de matrice S_{fi} entre un état initial “ i ” et un état final “ f ” a pour expression [73] :

$$S_{fi} = -2i\pi \delta^{(T)}(E_f - E_i) T_{fi}(E_i + i\hbar\eta) \quad (5.18)$$

où E_f (E_i) est l'énergie de l'état final (initial), et η une fréquence petite devant toutes les fréquences caractéristiques du système, qui s'interprète comme l'incertitude en énergie liée au temps de branchement du potentiel : $\eta \sim \hbar/T_{\text{int}}$. La fonction $\delta^{(T)}(z)$ est également liée à la durée de l'interaction : c'est une fonction de l'énergie de largeur $\sim \hbar/T_{\text{int}}$ et d'intégrale 1, identique à la fonction $\delta(z)$ quand $T_{\text{int}} \rightarrow \infty$. La matrice T peut s'exprimer sous la forme d'une série en puissances de l'interaction V :

$$T(E_i + i\hbar\eta) = V + VG_0(E_i + i\hbar\eta)V + \dots \quad (5.19)$$

où G_0 est la résolvante pour le hamiltonien sans interaction H_0 :

$$G_0(z) = \frac{1}{z - H_0} \quad (5.20)$$

En pratique, le niveau excité (J_e) a une durée de vie finie, à cause de l'interaction avec les modes vides du champ et de la possibilité de se désexciter vers le niveau fondamental (J) (émission spontanée). On rend compte de cette durée de vie en attribuant une largeur Γ à ce niveau, donnée par :

$$\Gamma = \frac{d^2\omega_0^3}{3\pi\epsilon_0 c^3} \quad (5.21)$$

Ceci revient à resommer dans la série de perturbation tous les processus d'interaction entre le niveau excité et les modes vides du champ. Notons aussi que l'interaction avec les modes vides du champ entraîne les déplacements radiatifs du niveau excité et du niveau fondamental, que nous considérons inclus dans la fréquence de transition ω_0 .

Le processus de diffusion d'ordre le plus bas en V correspond à l'absorption par l'atome d'un photon incident et à l'émission d'un photon dans un mode vide du champ, et s'obtient en considérant l'ordre 2 en V . Le vecteur d'onde à cet ordre s'écrit :

$$|\psi_f\rangle = \sum_{\mathbf{k}\epsilon, m_f} S_{\mathbf{k}\epsilon, m_f}^{(1)} |(N-1)\mathbf{k}_L\epsilon_L; \mathbf{k}\epsilon\rangle \otimes |m_f\rangle \quad (5.22)$$

avec

$$S_{\mathbf{k}\epsilon, m_f}^{(1)} = -2i\pi\delta^{(T)}(\hbar\omega - \hbar\omega_L) \langle (N-1)\mathbf{k}_L\epsilon_L; \mathbf{k}\epsilon | \otimes \langle m_f | (VG_0V) | N\mathbf{k}\epsilon \rangle \otimes |m_i\rangle \quad (5.23)$$

Puisque le champ incident est quasi-résonant avec la transition atomique ($\delta = \omega - \omega_L \ll \omega_L$), nous considérons uniquement le processus résonant où c'est l'absorption

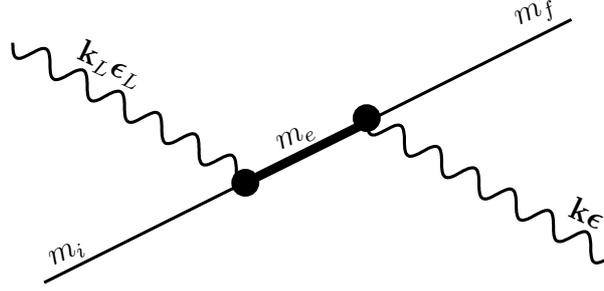


FIG. 5.1 – Diagramme de Feynmann pour la diffusion simple d'un photon par un atome. L'atome absorbe le photon incident ($\mathbf{k}_L \epsilon_L$) et passe dans l'état excité $|J_e, m_e\rangle$. Il émet ensuite le photon diffusé ($\mathbf{k} \epsilon$) et aboutit dans l'état $|m_f\rangle$.

du photon qui amène l'atome dans son état excité. L'élément de matrice de (5.23) se représente alors au moyen du diagramme de la figure 5.1. La valeur du diagramme s'obtient en sommant sur l'état intermédiaire m_e de l'atome, et fait intervenir les quantités suivantes :

- Absorption d'un photon incident (premier vertex) :

$$i g_{\omega_L} e^{i\mathbf{k}_L \cdot \mathbf{r}} \langle (N-1) \mathbf{k}_L \epsilon_L | a_{\mathbf{k}_L \epsilon_L} | N \mathbf{k}_L \epsilon_L \rangle \langle J_e, m_e | (-\mathbf{d} \cdot \epsilon_L) | m_i \rangle \quad (5.24)$$

- Propagateur libre (ligne épaisse) :

$$\frac{1}{\hbar} \left(N\omega_L - ((N-1)\omega_L + \omega_0 - i\frac{\Gamma}{2}) \right)^{-1} = \frac{1}{\hbar} \left(\delta + i\frac{\Gamma}{2} \right)^{-1} \quad (5.25)$$

- Emission du photon $\mathbf{k} \epsilon$ (deuxième vertex) :

$$-i g_{\omega} e^{-i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}} \langle (N-1) \mathbf{k}_L \epsilon_L; \mathbf{k} \epsilon | a_{\mathbf{k} \epsilon}^+ | (N-1) \mathbf{k}_L \epsilon_L \rangle \langle m_f | (-\mathbf{d} \cdot \epsilon^*) | J_e, m_e \rangle \quad (5.26)$$

L'élément de matrice de $a_{\mathbf{k} \epsilon}^+$ donne simplement 1, alors que celui de $a_{\mathbf{k}_L \epsilon_L}$ donne \sqrt{N} à cause des N photons incidents. Le diagramme a donc pour expression :

$$e^{i(\mathbf{k}_L - \mathbf{k}) \cdot \mathbf{r}} \frac{\sqrt{N} g_{\omega_L}}{\hbar(\delta + i\Gamma/2)} g_{\omega} \sum_{m_e} \langle m_f | \mathbf{d} \cdot \epsilon^* | J_e, m_e \rangle \langle J_e, m_e | \mathbf{d} \cdot \epsilon_L | m_i \rangle \quad (5.27)$$

Puisque l'opérateur \mathbf{d} ne relie l'état fondamental qu'à l'état excité, la somme sur m_e apparaît comme une relation de fermeture, et on a finalement, en faisant apparaître l'opérateur réduit $\mathbf{d}' = \mathbf{d}/d$:

$$S_{\mathbf{k} \epsilon, m_f}^{(1)} = -2i\pi \delta^{(T)}(\hbar\omega - \hbar\omega_L) e^{i(\mathbf{k}_L - \mathbf{k}) \cdot \mathbf{r}} \frac{\sqrt{N} g_{\omega_L} d}{\hbar(\delta + i\Gamma/2)} g_{\omega} d \langle m_f | (\mathbf{d}' \cdot \epsilon^*) (\mathbf{d}' \cdot \epsilon_L) | m_i \rangle \quad (5.28)$$

5.2.4 Calcul de l'intensité diffusée

L'expression obtenue ci-dessus pour l'onde diffusée nous permet de calculer l'intensité rayonnée par l'atome à l'ordre le plus bas. Nous ferons le calcul sous les hypothèses suivantes. Nous considérons un détecteur au point \mathbf{R} , suffisamment éloigné de l'atome pour que l'intensité diffusée ne l'atteigne que lorsque l'atome et le champ incident ont fini d'interagir, c'est-à-dire :

$$\frac{|\mathbf{R} - \mathbf{r}|}{c} > T_{\text{int}} \quad (5.29)$$

où T_{int} est la durée de l'interaction entre l'atome et le champ. Nous supposons que l'interaction entre l'atome et le champ est temporellement centrée autour de $t = 0$, entre $t \simeq -T_{\text{int}}/2$ et $t \simeq T_{\text{int}}/2$, et nous nous intéresserons à l'intensité reçue par le détecteur pour $t \simeq |\mathbf{R} - \mathbf{r}|/c$ (correspondant à l'intensité émise par l'atome pour $t \simeq 0$).

Avec ces hypothèses, l'intensité reçue à l'instant t par le diffuseur se calcule simplement en faisant agir l'opérateur champ électrique en représentation de Heisenberg sur le vecteur d'état de l'onde diffusée. L'expression de l'intensité reçue à l'instant t avec la polarisation $\boldsymbol{\epsilon}_{\text{ref}}$ est [73] :

$$I(\boldsymbol{\epsilon}_{\text{ref}}, \mathbf{R}, t) = \epsilon_0 c \left\| \boldsymbol{\epsilon}_{\text{ref}}^* \cdot \mathbf{E}^+(\mathbf{R}, t) |\psi_f\rangle \right\|^2 \quad (5.30)$$

où $\mathbf{E}^+(\mathbf{R}, t)$ est la partie de fréquence positive du champ électrique en représentation de Heisenberg :

$$\mathbf{E}^+(\mathbf{R}, t) = i \sum_{\mathbf{k}' \boldsymbol{\epsilon}'} g_{\omega'} \boldsymbol{\epsilon}' a_{\mathbf{k}' \boldsymbol{\epsilon}'} e^{i(\mathbf{k}' \cdot \mathbf{R} - \omega' t)} \quad (5.31)$$

Nous considérons que le détecteur placé en \mathbf{R} se trouve en dehors du parcours du faisceau laser incident (qui a en pratique une extension finie). Ceci nous permet de supprimer le mode $\mathbf{k}_L \boldsymbol{\epsilon}_L$ dans la somme sur les modes donnant \mathbf{E}^+ . Dans l'expression (5.30), l'opérateur $a_{\mathbf{k}' \boldsymbol{\epsilon}'}$ de \mathbf{E}^+ agit donc nécessairement sur le photon diffusé $\mathbf{k}\boldsymbol{\epsilon}$. L'intensité s'écrit donc :

$$I(\boldsymbol{\epsilon}_{\text{ref}}, \mathbf{R}, t) = \epsilon_0 c (2\pi)^2 \frac{N g_{\omega_L}^2 d^2}{\hbar^2 (\delta^2 + \Gamma^2/4)} \left\| \sum_{m_f} \sum_{\mathbf{k}\boldsymbol{\epsilon}} \delta(\hbar\omega - \hbar\omega_L) d g_{\omega}^2 e^{i(\mathbf{k} \cdot \mathbf{R} - \omega t)} e^{-i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}} \right. \\ \left. (\boldsymbol{\epsilon}_{\text{ref}}^* \cdot \boldsymbol{\epsilon}) \langle m_f | (\mathbf{d}' \cdot \boldsymbol{\epsilon}^*) (\mathbf{d}' \cdot \boldsymbol{\epsilon}_L) | m_i \rangle \otimes |(N-1)\mathbf{k}_L \boldsymbol{\epsilon}_L \rangle \otimes |m_f\rangle \right\|^2 \quad (5.32)$$

Sans détailler l'ensemble du calcul de l'élément dont on prend le module carré, quelques points particuliers méritent des éclaircissements :

- Le passage d'une somme discrète sur \mathbf{k} à une intégrale continue amène le facteur $(L/2\pi)^3$, et le L^3 se simplifie avec le $1/L^3$ de g_{ω}^2 , comme il se doit.
- La somme sur les polarisations $\boldsymbol{\epsilon} \perp \mathbf{k}$ se fait simplement. On a :

$$\sum_{\boldsymbol{\epsilon} \perp \mathbf{k}} (\boldsymbol{\epsilon}_{\text{ref}}^* \cdot \boldsymbol{\epsilon}) (\mathbf{d}' \cdot \boldsymbol{\epsilon}^*) = (\boldsymbol{\epsilon}_{\text{ref}}^* \cdot \mathbf{d}') - \left(\boldsymbol{\epsilon}_{\text{ref}}^* \cdot \frac{\mathbf{k}}{k} \right) \left(\mathbf{d}' \cdot \frac{\mathbf{k}}{k} \right) \quad (5.33)$$

On montre sans difficulté que, lorsque l'on prend l'intégrale angulaire sur \mathbf{k} , le deuxième terme de cette expression donne un terme qui est au moins à un ordre plus élevé en $(\omega_L |\mathbf{R} - \mathbf{r}|/c)^{-1} \ll 1$ que le premier. On peut donc se limiter au premier terme, et l'élément de matrice pour \mathbf{d}' devient :

$$\langle m_f | (\mathbf{d}' \cdot \boldsymbol{\epsilon}_{\text{ref}}^*) (\mathbf{d}' \cdot \boldsymbol{\epsilon}_L) | m_i \rangle \quad (5.34)$$

– L'intégrale angulaire sur \mathbf{k} donne :

$$\int d^2 \Omega_{\mathbf{k}} e^{i\mathbf{k} \cdot (\mathbf{R} - \mathbf{r})} e^{-i\omega t} = 2\pi \frac{e^{-i\omega(t - |\mathbf{R} - \mathbf{r}|/c)} - e^{-i\omega(t + |\mathbf{R} - \mathbf{r}|/c)}}{\omega |\mathbf{R} - \mathbf{r}|/c} \quad (5.35)$$

On prend ensuite l'intégrale sur ω de cette quantité multipliée par $\delta^{(T)}(\omega - \omega_L)$ (et une puissance de ω). Comme $|\mathbf{R} - \mathbf{r}|/c > T_{\text{int}}$, et comme on s'intéresse aux temps $t \simeq |\mathbf{R} - \mathbf{r}|/c$, la deuxième exponentielle (en $t + |\mathbf{R} - \mathbf{r}|/c$) est une fonction qui oscille très rapidement en ω à l'échelle de la fonction $\delta^{(T)}(\omega - \omega_L)$, qui a une largeur $\sim 1/T_{\text{int}}$ en ω . Ce terme fournit donc un résultat négligeable. Par contre, comme $t - |\mathbf{R} - \mathbf{r}|/c \ll T_{\text{int}}$, la première exponentielle varie très lentement à l'échelle de $\delta^{(T)}(\omega - \omega_L)$, qui agit alors comme une vraie fonction $\delta(\omega - \omega_L)$.

– On introduit enfin la fréquence de Rabi Ω_r , qui caractérise l'intensité du couplage entre l'atome et le champ. Elle est donnée par :

$$\frac{\hbar \Omega_r}{2} = \sqrt{N} g_{\omega_L} d \quad (5.36)$$

On définit alors le paramètre de saturation s , qui est le petit paramètre de notre développement en série :

$$s = \frac{\Omega_r^2/2}{\delta^2 + \Gamma^2/4} \quad (5.37)$$

Tous calculs faits, on obtient une intensité indépendante du temps (valable pour les temps t proches de $|\mathbf{R} - \mathbf{r}|/c$) donnée par (on a utilisé $\hbar \Gamma = (d^2 \omega_0^3)/(3\pi \epsilon_0 c^3) \simeq (d^2 \omega_L^3)/(3\pi \epsilon_0 c^3)$) :

$$I(\boldsymbol{\epsilon}_{\text{ref}}, \mathbf{R}) = \frac{3}{32\pi} \Gamma s \frac{\hbar \omega_L}{|\mathbf{R} - \mathbf{r}|^2} \sum_{m_f} \left\| \langle m_f | (\mathbf{d}' \cdot \boldsymbol{\epsilon}_{\text{ref}}^*) (\mathbf{d}' \cdot \boldsymbol{\epsilon}_L) | m_i \rangle \right\|^2 \quad (5.38)$$

On voit que l'intensité contient une contribution pour chaque état final m_f accessible à l'atome. En explicitant le module carré, la partie purement atomique s'écrit (avec $\mathbf{d}'^\dagger = \mathbf{d}'$) :

$$\sum_{m_f} \langle m_i | (\mathbf{d}' \cdot \boldsymbol{\epsilon}_L^*) (\mathbf{d}' \cdot \boldsymbol{\epsilon}_{\text{ref}}) | m_f \rangle \langle m_f | (\mathbf{d}' \cdot \boldsymbol{\epsilon}_{\text{ref}}^*) (\mathbf{d}' \cdot \boldsymbol{\epsilon}_L) | m_i \rangle \quad (5.39)$$

La somme sur m_f apparaît à nouveau comme une relation de fermeture, et l'intensité peut s'écrire :

$$I(\boldsymbol{\epsilon}_{\text{ref}}, \mathbf{R}) = \frac{3}{32\pi} \Gamma s \frac{\hbar\omega_L}{|\mathbf{R} - \mathbf{r}|^2} \langle m_i | (\mathbf{d}' \cdot \boldsymbol{\epsilon}_L^*) (\mathbf{d}' \cdot \boldsymbol{\epsilon}_{\text{ref}}) (\mathbf{d}' \cdot \boldsymbol{\epsilon}_{\text{ref}}^*) (\mathbf{d}' \cdot \boldsymbol{\epsilon}_L) | m_i \rangle \quad (5.40)$$

5.2.5 Section efficace

L'expression obtenue pour l'intensité nous permet de calculer la section efficace de diffusion de l'atome (au premier ordre en s). Considérons tout d'abord la section efficace par unité d'angle solide, et dans une polarisation donnée, $d\sigma/d\Omega(\boldsymbol{\epsilon}_{\text{ref}})$. Pour $|\mathbf{R} - \mathbf{r}|$ assez grand, le détecteur en \mathbf{R} définit une direction d'observation. La section efficace dans cette direction s'exprime alors par :

$$\frac{d\sigma}{d\Omega}(\boldsymbol{\epsilon}_{\text{ref}}) = \frac{I(\boldsymbol{\epsilon}_{\text{ref}}, \mathbf{R})}{I_{\text{inc}}} |\mathbf{R} - \mathbf{r}|^2 \quad (5.41)$$

où I_{inc} est l'intensité incidente. Celle-ci se calcule simplement à partir du vecteur d'état initial du champ $|N\mathbf{k}_L\boldsymbol{\epsilon}_L\rangle$, et vaut :

$$I_{\text{inc}} = \epsilon_0 c \frac{(\hbar\Omega_r)^2}{4d^2} \quad (5.42)$$

En utilisant à nouveau $\hbar\Gamma \simeq (d^2\omega_L^3)/(3\pi\epsilon_0 c^3)$, et en introduisant la longueur d'onde λ_L du champ incident ($\lambda_L = 2\pi c/\omega_L$), on obtient :

$$\frac{d\sigma}{d\Omega}(\boldsymbol{\epsilon}_{\text{ref}}) = \frac{9}{16\pi^2} \lambda_L^2 \frac{\Gamma^2/4}{\delta^2 + \Gamma^2/4} \langle m_i | (\mathbf{d}' \cdot \boldsymbol{\epsilon}_L^*) (\mathbf{d}' \cdot \boldsymbol{\epsilon}_{\text{ref}}) (\mathbf{d}' \cdot \boldsymbol{\epsilon}_{\text{ref}}^*) (\mathbf{d}' \cdot \boldsymbol{\epsilon}_L) | m_i \rangle \quad (5.43)$$

On peut ensuite calculer la section efficace totale rayonnée par l'atome :

$$\sigma_{\text{tot}} = \int d^2\Omega_{\mathbf{k}} \sum_{\boldsymbol{\epsilon}_{\text{ref}} \perp \mathbf{k}} \left(\frac{d\sigma}{d\Omega}(\boldsymbol{\epsilon}_{\text{ref}}) \right) \quad (5.44)$$

Le seul terme dépendant de $\boldsymbol{\epsilon}_{\text{ref}}$ se trouve dans l'élément de matrice. On a :

$$\int d^2\Omega_{\mathbf{k}} \sum_{\boldsymbol{\epsilon}_{\text{ref}} \perp \mathbf{k}} (\mathbf{d}' \cdot \boldsymbol{\epsilon}_{\text{ref}}) (\mathbf{d}' \cdot \boldsymbol{\epsilon}_{\text{ref}}^*) = \int d^2\Omega_{\mathbf{k}} \left((\mathbf{d}' \cdot \mathbf{d}') - (\mathbf{d}' \cdot \frac{\mathbf{k}}{k}) (\mathbf{d}' \cdot \frac{\mathbf{k}}{k}) \right) \quad (5.45)$$

Le premier terme donne $4\pi(\mathbf{d}' \cdot \mathbf{d}')$, et le deuxième $(-1)(4\pi/3)(\mathbf{d}' \cdot \mathbf{d}')$, et la section efficace totale s'écrit donc :

$$\sigma_{\text{tot}} = \frac{3\lambda_L^2}{2\pi} \frac{\Gamma^2/4}{\delta^2 + \Gamma^2/4} \langle m_i | (\mathbf{d}' \cdot \boldsymbol{\epsilon}_L^*) (\mathbf{d}' \cdot \mathbf{d}') (\mathbf{d}' \cdot \boldsymbol{\epsilon}_L) | m_i \rangle \quad (5.46)$$

Cette expression peut encore se simplifier. En effet, l'opérateur $(\mathbf{d}' \cdot \mathbf{d}')$ n'est autre que l'identité. En décomposant le produit scalaire sur les composantes sphériques, on a :

$$\begin{aligned} (\mathbf{d}' \cdot \mathbf{d}')|J_e, m\rangle &= (\mathbf{d}'_0 \mathbf{d}'_0 - \mathbf{d}'_{+1} \mathbf{d}'_{-1} - \mathbf{d}'_{-1} \mathbf{d}'_{+1})|J_e, m\rangle \\ &= ((C(m, m))^2 + (C(m-1, m))^2 + (C(m+1, m))^2) |J_e, m\rangle \end{aligned} \quad (5.47)$$

Rappelons que $C(m+q, m)$ est une notation pour le coefficient de Clebsch-Gordan $\langle J_e, m | J, 1; m+q, -q \rangle$ (relation (5.15)). Or, la somme des coefficients au carré apparaissant ici vaut 1 :

$$(C(m, m))^2 + (C(m-1, m))^2 + (C(m+1, m))^2 = 1 \quad (5.48)$$

Cette égalité exprime simplement que la somme des carrés des coefficients du développement du vecteur $|J_e, m\rangle$ de la base couplée sur les vecteurs de la base découplée $|J, 1; m+q, -q\rangle$ vaut 1. La section efficace totale s'écrit donc finalement :

$$\sigma_{\text{tot}} = \frac{3\lambda_L^2}{2\pi} \frac{\Gamma^2/4}{\delta^2 + \Gamma^2/4} \langle m_i | (\mathbf{d}' \cdot \boldsymbol{\epsilon}_L^*) (\mathbf{d}' \cdot \boldsymbol{\epsilon}_L) | m_i \rangle \quad (5.49)$$

Remarquons enfin que cette expression peut s'obtenir très simplement à partir du théorème optique. Celui-ci exprime l'égalité entre l'intensité diffusée dans toute les directions et la diminution de l'intensité du faisceau incident (diffusion vers l'avant). Il s'écrit dans notre cas :

$$\sigma_{\text{tot}} = \frac{-k_L}{\epsilon_0 N g_{\omega_L}^2} \text{Im} (T_{\mathbf{k}_L \boldsymbol{\epsilon}_L, m_i}) \quad (5.50)$$

A partir de l'équation (5.28) (qu'il faut diviser par $(-2i\pi)\delta^{(T)}$ pour obtenir la matrice T , et multiplier par \sqrt{N} car la diffusion du photon se fait dans le mode incident ($\mathbf{k}_L \boldsymbol{\epsilon}_L$)), le membre de droite de (5.50) s'écrit :

$$\begin{aligned} \frac{-k_L}{\epsilon_0 N g_{\omega_L}^2} \text{Im} \left(\frac{N g_{\omega_L}^2 d^2}{\hbar(\delta + i\Gamma/2)} \langle m_i | (\mathbf{d}' \cdot \boldsymbol{\epsilon}_L^*) (\mathbf{d}' \cdot \boldsymbol{\epsilon}_L) | m_i \rangle \right) \\ = \frac{3\lambda_L^2}{2\pi} \frac{\Gamma^2/4}{\delta^2 + \Gamma^2/4} \langle m_i | (\mathbf{d}' \cdot \boldsymbol{\epsilon}_L^*) (\mathbf{d}' \cdot \boldsymbol{\epsilon}_L) | m_i \rangle \end{aligned} \quad (5.51)$$

et on retrouve bien la section efficace donnée par (5.49).

5.2.6 Comparaison avec un diffuseur ponctuel dipolaire

Pour mieux cerner le rôle de la structure interne de l'atome, il est intéressant de comparer les expressions que nous avons obtenues à celles décrivant un diffuseur dipolaire ponctuel classique.

Pour un diffuseur ponctuel, la matrice $t(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; k)$ a été définie précédemment (équations (4.36) et (4.37)). Elle permet d'exprimer la fonction de Green du système avec diffuseur ($G(\omega)$) en fonction de celle du système sans diffuseur ($G_0(\omega)$). On a ici :

$$G(\omega; \mathbf{r}, \mathbf{r}') = G_0(\omega; \mathbf{r}, \mathbf{r}') + G_0(\omega; \mathbf{r}, \mathbf{r}_0) t(k) G_0(\omega; \mathbf{r}_0, \mathbf{r}') \quad (5.52)$$

avec $k = \omega/c$, et où G et G_0 sont des matrices qui agissent dans l'espace des polarisations³. Rappelons que la fonction de Green libre G_0 s'exprime, pour $k|\mathbf{r} - \mathbf{r}'| \gg 1$:

$$G_0(\omega; \mathbf{r}, \mathbf{r}') \simeq -e^{ik|\mathbf{r}-\mathbf{r}'|} \frac{\Delta_{\mathbf{r}-\mathbf{r}'}}{4\pi|\mathbf{r}-\mathbf{r}'|} \quad (5.53)$$

où $\Delta_{\mathbf{r}-\mathbf{r}'}$ est le projecteur sur le plan perpendiculaire à $\mathbf{r} - \mathbf{r}'$.

L'expression de la fonction de Green pour le système avec le diffuseur nous permet de calculer la section efficace de diffusion par angle solide dans une direction et une polarisation données (l'équivalent de la relation (5.43)). En prenant \mathbf{R} comme direction d'observation, on a :

$$\frac{d\sigma}{d\Omega}(\boldsymbol{\epsilon}_{\text{ref}}) = \left\| t\left(\frac{\omega}{c}\right) \right\|^2 \frac{\|\boldsymbol{\epsilon}_{\text{ref}}^* \cdot \Delta_{\mathbf{R}} \cdot \boldsymbol{\epsilon}_L\|^2}{(4\pi)^2} \quad (5.54)$$

Le terme contenant les polarisations donne :

$$\left\| \boldsymbol{\epsilon}_{\text{ref}}^* \cdot \boldsymbol{\epsilon}_L - \left(\boldsymbol{\epsilon}_{\text{ref}}^* \cdot \frac{\mathbf{R}}{R} \right) \left(\boldsymbol{\epsilon}_L \cdot \frac{\mathbf{R}}{R} \right) \right\|^2 = \|\boldsymbol{\epsilon}_{\text{ref}}^* \cdot \boldsymbol{\epsilon}_L\|^2 \quad (5.55)$$

puisque $\boldsymbol{\epsilon}_{\text{ref}} \perp \mathbf{R}$. On trouve finalement, près de la résonance :

$$\frac{d\sigma}{d\Omega}(\boldsymbol{\epsilon}_{\text{ref}}) = \frac{9}{16\pi^2} \lambda_L^2 \frac{\Gamma^2/4}{\delta^2 + \Gamma^2/4} \|\boldsymbol{\epsilon}_{\text{ref}}^* \cdot \boldsymbol{\epsilon}_L\|^2 \quad (5.56)$$

Cette expression est tout à fait similaire à la relation (5.43). L'élément de matrice atomique est ici remplacé par $\|\boldsymbol{\epsilon}_{\text{ref}}^* \cdot \boldsymbol{\epsilon}_L\|^2$, caractéristique de l'émission d'un dipôle orienté suivant $\boldsymbol{\epsilon}_L$. L'atome que nous considérons est donc similaire à un diffuseur dipolaire ponctuel, excepté que le simple rayonnement dipolaire du diffuseur ponctuel est remplacé par un rayonnement plus complexe dépendant de l'état interne de l'atome et de la transition atomique considérée (via l'élément de matrice atomique).

Il existe même une transition atomique particulière pour laquelle l'atome est strictement équivalent à un diffuseur dipolaire. Si l'on considère un état fondamental de moment angulaire $J = 0$ ($m = 0$) et un état excité de moment angulaire $J_e = 1$ ($m_e = 0, \pm 1$), alors les trois coefficients de Clebsch-Gordan reliant l'état

³Cette équation est l'équivalent pour les ondes électromagnétiques de l'équation (1.74) du chapitre 1 écrite pour l'équation de Schrödinger.

$|J, m = 0\rangle$ aux états $|J_e, m_e = 0, \pm 1\rangle$ sont tous égaux à 1. On voit alors que, dans l'élément de matrice apparaissant dans la relation (5.43) :

$$\langle 0 | (\mathbf{d}' \cdot \boldsymbol{\epsilon}_L^*) (\mathbf{d}' \cdot \boldsymbol{\epsilon}_{\text{ref}}) (\mathbf{d}' \cdot \boldsymbol{\epsilon}_{\text{ref}}^*) (\mathbf{d}' \cdot \boldsymbol{\epsilon}_L) | 0 \rangle = \| (\mathbf{d}' \cdot \boldsymbol{\epsilon}_{\text{ref}}^*) (\mathbf{d}' \cdot \boldsymbol{\epsilon}_L) | 0 \rangle \|^2 \quad (5.57)$$

la composante sphérique q du premier opérateur \mathbf{d}' doit nécessairement être combinée à la composante $-q$ du deuxième opérateur \mathbf{d}' (pour aboutir dans l'état $|0\rangle$, le seul existant), et on trouve simplement la produit scalaire entre les deux polarisations. Pour une transition atomique $J = 0 \rightarrow J_e = 1$, l'équation (5.43) se réduit donc à :

$$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}(\boldsymbol{\epsilon}_{\text{ref}}) \right)_{0 \rightarrow 1} = \frac{9}{16\pi^2} \lambda_L^2 \frac{\Gamma^2/4}{\delta^2 + \Gamma^2/4} \| \boldsymbol{\epsilon}_{\text{ref}}^* \cdot \boldsymbol{\epsilon}_L \|^2 \quad (5.58)$$

Cette expression est bien identique à celle pour un diffuseur dipolaire, ce qui montre qu'un atome pour lequel on considère une transition de $J = 0$ vers $J_e = 1$ est totalement équivalent à un tel diffuseur (pour un calcul au premier ordre en intensité). Cette équivalence nous fournira dans toute la suite un outil de vérification et de comparaison : tous les résultats que nous obtiendrons pour les atomes devront se réduire, dans le cas d'une transition $J = 0 \rightarrow J_e = 1$, à ceux pour des diffuseurs dipolaires, qui sont les résultats classiques bien connus.

5.3 Diffusion double sur deux atomes

Ayant calculé la diffusion sur un seul atome, nous pouvons maintenant considérer le processus le plus simple contribuant à la rétrodiffusion cohérente : la diffusion successive par deux atomes (diffusion double).

La connaissance de l'intensité de diffusion double par deux atomes nous permettra, dans le chapitre suivant, de calculer sa contribution à l'augmentation de la rétrodiffusion pour un ensemble d'atomes, et donc d'étudier l'impact de la structure interne sur la rétrodiffusion cohérente. Comme pour la diffusion sur un seul atome, nous nous limitons à l'ordre le plus bas en intensité incidente, c'est-à-dire à l'ordre 1 en s .

Nous considérons donc deux atomes identiques, l'atome 1 placé en \mathbf{r}_1 étant dans le sous-niveau m_1 et l'atome 2 placé en \mathbf{r}_2 étant dans le sous-niveau m_2 , interagissant avec l'intensité laser incidente. Nous supposons que la distance entre les deux atomes est grande devant la longueur d'onde du rayonnement incident ($k_L |\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2| \gg 1$). Le vecteur d'état atomique est noté $|m_1\rangle \otimes |m_2\rangle = |m_1, m_2\rangle$. En se limitant à nouveau aux processus résonants (pour lesquels un atome est excité quand il absorbe un photon, et se désexcite quand il émet un photon), les deux diagrammes de Feynmann à prendre en compte sont celui montré sur la figure 5.2 (que nous allons calculer explicitement) et le diagramme correspondant où les rôles de l'atome 1 et de l'atome 2 sont inversés (le photon incident étant diffusé par l'atome 2 puis par l'atome 1).

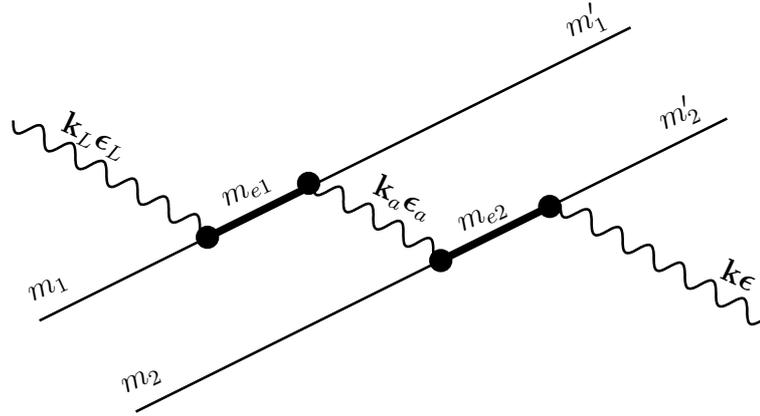


FIG. 5.2 – Diagramme de Feynmann pour le calcul de la diffusion double d'un photon sur deux atomes. Le photon incident est ici d'abord diffusé par l'atome 1, puis par l'atome 2.

Les états intermédiaires sur lesquels il faut sommer sont ici : m_{e1} (état excité de l'atome 1), le mode du photon intermédiaire (noté $\mathbf{k}_a \epsilon_a$), et m_{e2} (état excité de l'atome 2). Le diagramme a donc pour expression :

$$S_{\mathbf{k}\epsilon, m'_1, m'_2}^{(1)} = \sum_{\mathbf{k}_a \epsilon_a} (-2i\pi) \delta^{(T)}(\hbar\omega_L - \hbar\omega) e^{i\mathbf{k}_L \cdot \mathbf{r}_1} e^{-i\mathbf{k}_a \cdot \mathbf{r}_1} e^{i\mathbf{k}_a \cdot \mathbf{r}_2} e^{-i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_2} \frac{1}{\hbar(\delta + i\Gamma/2)} \frac{1}{\hbar(\omega_L - \omega_a + i\eta)} \frac{1}{\hbar(\delta + i\Gamma/2)} \sqrt{N} g_{\omega_L} (g_{\omega_a})^2 g_{\omega} \sum_{m_{e1}, m_{e2}} \left[\langle m'_2 | \mathbf{d}_2 \cdot \boldsymbol{\epsilon}^* | J_e, m_{e2} \rangle \langle J_e, m_{e2} | \mathbf{d}_2 \cdot \boldsymbol{\epsilon}_a | m_2 \rangle \langle m'_1 | \mathbf{d}_1 \cdot \boldsymbol{\epsilon}_a^* | J_e, m_{e1} \rangle \langle J_e, m_{e1} | \mathbf{d}_1 \cdot \boldsymbol{\epsilon}_L | m_1 \rangle \right] \quad (5.59)$$

Rappelons que le $i\eta$ est lié à la durée de l'interaction ($\eta \sim 1/T_{\text{int}}$). Les sommes sur les états excités apparaissent chacune comme une relation de fermeture dans le sous-espace correspondant. L'élément nouveau dans le calcul par rapport au cas à un atome est l'intégration sur le photon intermédiaire ($\mathbf{k}_a \epsilon_a$). En posant $\mathbf{r}_{12} = \mathbf{r}_2 - \mathbf{r}_1$ et $\hat{\mathbf{r}}_{12} = \mathbf{r}_{12}/r_{12}$ on a :

$$\sum_{\mathbf{k}_a \epsilon_a} \frac{(g_{\omega_a})^2}{\hbar(\omega_L - \omega_a + i\eta)} e^{i\mathbf{k}_a \cdot \mathbf{r}_{12}} (\mathbf{d}_2 \cdot \boldsymbol{\epsilon}_a) (\mathbf{d}_1 \cdot \boldsymbol{\epsilon}_a^*) = \left(\frac{L}{2\pi} \right)^3 \int d\mathbf{k}_a \frac{\hbar\omega_a}{2\epsilon_0 L^3} \frac{1}{\hbar(\omega_L - \omega_a + i\eta)} e^{i\mathbf{k}_a \cdot \mathbf{r}_{12}} \sum_{\epsilon_a \perp \mathbf{k}_a} (\mathbf{d}_2 \cdot \boldsymbol{\epsilon}_a) (\mathbf{d}_1 \cdot \boldsymbol{\epsilon}_a^*) \quad (5.60)$$

La somme sur les polarisations donne $(\mathbf{d}_2 \cdot \mathbf{d}_1) - (\mathbf{d}_2 \cdot \hat{\mathbf{k}}_a)(\mathbf{d}_1 \cdot \hat{\mathbf{k}}_a)$ (avec $\hat{\mathbf{k}}_a = \mathbf{k}_a/k_a$). En faisant l'intégrale angulaire, ce terme devient, à l'ordre dominant en

$1/(\omega_L r_{12}/c)$:

$$(\mathbf{d}_2 \cdot \mathbf{d}_1) - (\mathbf{d}_2 \cdot \hat{\mathbf{r}}_{12})(\mathbf{d}_1 \cdot \hat{\mathbf{r}}_{12}) \quad (5.61)$$

que l'on peut encore écrire $\mathbf{d}_2 \cdot \mathbf{\Delta}_{12} \cdot \mathbf{d}_1$, où $(\mathbf{\Delta}_{12})_{ij} = \delta_{ij} - (\hat{\mathbf{r}}_{12})_i (\hat{\mathbf{r}}_{12})_j$ ($i, j = x, y, z$) est le projecteur sur le plan perpendiculaire à \mathbf{r}_{12} . Une fois l'intégrale angulaire faite, il reste l'intégration sur ω_a :

$$\frac{1}{(2\pi)^3} \frac{1}{2\epsilon_0 c^3} \int_0^\infty d\omega_a \frac{\omega_a^3}{\omega_L - \omega_a + i\eta} (2\pi) \frac{e^{i\omega_a r_{12}/c} - e^{-i\omega_a r_{12}/c}}{i\omega_a r_{12}/c} \quad (5.62)$$

On peut étendre l'intégration jusque $\omega_a = -\infty$ sans modifier le résultat⁴ à l'ordre dominant en $1/(\omega_L r_{12}/c)$. L'intégration est alors simple à effectuer dans le plan complexe : on ferme le contour par un demi cercle dans le demi plan supérieur pour le terme $e^{i\omega_a r_{12}/c}$, et par un demi cercle dans le demi plan inférieur pour le terme $e^{-i\omega_a r_{12}/c}$. Comme l'intégrand n'a qu'un pôle en dans le demi plan supérieur (en $\omega_a = \omega_L + i\eta$), seule l'exponentielle positive donne un résultat non-nul. La valeur de l'intégrale (5.62) est donc :

$$\frac{(-1)}{2\pi} \frac{\omega_L^3}{2\epsilon_0 c^3} \frac{e^{i\omega_L r_{12}/c}}{\omega_L r_{12}/c} = \left(\frac{-3}{4}\right) \frac{\hbar\Gamma}{d^2} \frac{e^{i\omega_L r_{12}/c}}{\omega_L r_{12}/c} \quad (5.63)$$

Ceci conduit à l'expression suivante pour le diagramme :

$$S_{\mathbf{k}\epsilon, m'_1 m'_2}^{(1)} = (-2i\pi) \delta^{(T)}(\hbar\omega_L - \hbar\omega) e^{i\mathbf{k}_L \cdot \mathbf{r}_1} e^{-i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_2} \frac{\sqrt{N} g_{\omega_L} d^2}{\hbar(\delta + i\Gamma/2)} g_\omega$$

$$\left(\frac{-3}{4}\right) \frac{\Gamma}{\delta + i\Gamma/2} \frac{e^{i\omega_L r_{12}/c}}{\omega_L r_{12}/c} \langle m'_1, m'_2 | (\mathbf{d}'_2 \cdot \boldsymbol{\epsilon}^*) (\mathbf{d}'_2 \cdot \mathbf{\Delta}_{12} \cdot \mathbf{d}'_1) (\mathbf{d}'_1 \cdot \boldsymbol{\epsilon}_L) | m_1, m_2 \rangle \quad (5.64)$$

5.4 Calcul de l'intensité pour la diffusion double

En ne considérant ici que la diffusion double, le vecteur d'état final s'écrit :

$$|\psi_f\rangle = \sum_{\mathbf{k}\epsilon} \sum_{m'_1 m'_2} \left(S_{\mathbf{k}\epsilon, m'_1 m'_2}^{(1)} + S_{\mathbf{k}\epsilon, m'_1 m'_2}^{(1)(\text{rev})} \right) |(N-1)\mathbf{k}_L \boldsymbol{\epsilon}_L, \mathbf{k}\epsilon\rangle \otimes |m'_1, m'_2\rangle \quad (5.65)$$

où $S_{\mathbf{k}\epsilon, m'_1 m'_2}^{(1)}$ est l'amplitude calculée ci-dessus, et $S_{\mathbf{k}\epsilon, m'_1 m'_2}^{(1)(\text{rev})}$ l'amplitude pour le processus où les rôles des atomes 1 et 2 sont inversés (qui s'obtient à partir de l'équation (5.64) en permutant d'une part \mathbf{r}_1 et \mathbf{r}_2 et d'autre part \mathbf{d}'_1 et \mathbf{d}'_2).

Le calcul de l'intensité se fait sous les mêmes hypothèses que pour la diffusion simple :

$$I(\boldsymbol{\epsilon}_{\text{ref}}, \mathbf{R}, t) = \epsilon_0 c \left\| \boldsymbol{\epsilon}_{\text{ref}}^* \cdot \mathbf{E}^+(\mathbf{R}, t) |\psi_f\rangle \right\|^2 \quad (5.66)$$

⁴On peut même montrer que l'intégrale de $-\infty$ à 0 que l'on ajoute ici est exactement compensée par un diagramme non-résonant.

Le vecteur d'état final peut encore s'écrire, en séparant les deux amplitudes $S_{\mathbf{k}\epsilon, m'_1 m'_2}^{(1)}$ et $S_{\mathbf{k}\epsilon, m'_1 m'_2}^{(1)(\text{rev})}$:

$$|\psi_f\rangle = |\psi_f^{12}\rangle + |\psi_f^{21}\rangle \quad (5.67)$$

Cette séparation amène deux contributions différentes pour l'intensité. Tout d'abord, l'intensité incohérente, qui contient la contribution de chaque terme pris séparément :

$$I_{\text{inc}}(\epsilon_{\text{ref}}, \mathbf{R}, t) = \epsilon_0 c \left(\|\epsilon_{\text{ref}}^* \cdot \mathbf{E}^+(\mathbf{R}, t) |\psi_f^{12}\rangle\|^2 + \|\epsilon_{\text{ref}}^* \cdot \mathbf{E}^+(\mathbf{R}, t) |\psi_f^{21}\rangle\|^2 \right) \quad (5.68)$$

Ensuite, l'intensité provenant de l'interférence entre les deux processus :

$$I_{\text{interf}}(\epsilon_{\text{ref}}, \mathbf{R}, t) = \epsilon_0 c \left(\langle \psi_f^{21} | (\epsilon_{\text{ref}} \cdot \mathbf{E}^-(\mathbf{R}, t)) (\epsilon_{\text{ref}}^* \cdot \mathbf{E}^+(\mathbf{R}, t)) | \psi_f^{12} \rangle + \text{c.c.} \right) \quad (5.69)$$

C'est précisément cette contribution due à l'interférence qui conduit à l'augmentation de rétrodiffusion. Nous allons calculer successivement les deux contributions à l'intensité. L'intensité totale est la somme de ces deux contributions :

$$I(\epsilon_{\text{ref}}, \mathbf{R}, t) = I_{\text{inc}}(\epsilon_{\text{ref}}, \mathbf{R}, t) + I_{\text{interf}}(\epsilon_{\text{ref}}, \mathbf{R}, t) \quad (5.70)$$

5.4.1 Intensité incohérente

Calculons l'intensité due à $|\psi_f^{12}\rangle$ (celle due à $|\psi_f^{21}\rangle$ s'en déduit immédiatement). L'expression de $|\psi_f^{12}\rangle$ s'obtient à partir de l'équation (5.64). Le calcul de l'intensité est tout à fait similaire au cas de la diffusion sur un seul atome. On obtient une somme sur tous les états finals m'_1, m'_2 des deux atomes, qui apparaît comme une relation de fermeture, et on trouve finalement :

$$I_{\text{inc}}^{12}(\epsilon_{\text{ref}}, \mathbf{R}) = \frac{9}{4} \frac{\Gamma^2/4}{\delta^2 + \Gamma^2/4} \frac{1}{(\omega_L r_{12}/c)^2} \frac{3}{32\pi} \Gamma_S \frac{\hbar\omega_L}{|\mathbf{R} - \mathbf{r}_2|^2} \langle m_1, m_2 | (\epsilon_L^* \cdot \mathbf{d}'_1) (\mathbf{d}'_2 \cdot \Delta_{12} \cdot \mathbf{d}'_1) (\epsilon_{\text{ref}} \cdot \mathbf{d}'_2) (\epsilon_{\text{ref}}^* \cdot \mathbf{d}'_2) (\mathbf{d}'_2 \cdot \Delta_{12} \cdot \mathbf{d}'_1) (\epsilon_L \cdot \mathbf{d}'_1) | m_1 m_2 \rangle \quad (5.71)$$

Un choix naturel pour l'origine des coordonnées est de la placer proche de \mathbf{r}_1 et de \mathbf{r}_2 . Dans ce cas, on a $|\mathbf{R}| \gg |\mathbf{r}_1|, |\mathbf{r}_2|$, et on peut remplacer $|\mathbf{R} - \mathbf{r}_2|^{-2}$ par R^{-2} . Par rapport à l'intensité de diffusion sur un seul atome, il y a d'une part le terme supplémentaire

$$\frac{9}{4} \frac{\Gamma^2/4}{\delta^2 + \Gamma^2/4} \frac{1}{(\omega_L r_{12}/c)^2} \quad (5.72)$$

qui rend compte de la présence du photon intermédiaire dans le processus de diffusion, et d'autre part l'élément de matrice atomique est plus compliqué. Pour obtenir

l'intensité pour $|\psi_f^{21}\rangle$, il suffit de permuter les rôles de \mathbf{d}'_1 et \mathbf{d}'_2 dans l'élément de matrice atomique. L'intensité incohérente s'écrit donc :

$$I_{\text{inc}}(\boldsymbol{\epsilon}_{\text{ref}}, \mathbf{R}) = \frac{9}{4} \frac{\Gamma^2/4}{\delta^2 + \Gamma^2/4} \frac{1}{(\omega_L r_{12}/c)^2} \frac{3}{32\pi} \Gamma_S \frac{\hbar\omega_L}{|\mathbf{R}|^2} \left\{ \langle m_1, m_2 | (\boldsymbol{\epsilon}_L^* \cdot \mathbf{d}'_1)(\mathbf{d}'_2 \cdot \boldsymbol{\Delta}_{12} \cdot \mathbf{d}'_1)(\boldsymbol{\epsilon}_{\text{ref}} \cdot \mathbf{d}'_2)(\boldsymbol{\epsilon}_{\text{ref}}^* \cdot \mathbf{d}'_2)(\mathbf{d}'_2 \cdot \boldsymbol{\Delta}_{12} \cdot \mathbf{d}'_1)(\boldsymbol{\epsilon}_L \cdot \mathbf{d}'_1) | m_1, m_2 \rangle + \langle m_1, m_2 | (\boldsymbol{\epsilon}_L^* \cdot \mathbf{d}'_2)(\mathbf{d}'_1 \cdot \boldsymbol{\Delta}_{12} \cdot \mathbf{d}'_2)(\boldsymbol{\epsilon}_{\text{ref}} \cdot \mathbf{d}'_1)(\boldsymbol{\epsilon}_{\text{ref}}^* \cdot \mathbf{d}'_1)(\mathbf{d}'_1 \cdot \boldsymbol{\Delta}_{12} \cdot \mathbf{d}'_2)(\boldsymbol{\epsilon}_L \cdot \mathbf{d}'_2) | m_1, m_2 \rangle \right\} \quad (5.73)$$

5.4.2 Intensité cohérente due à l'interférence

Pour calculer l'intensité due à l'interférence, il faut multiplier le terme

$$\boldsymbol{\epsilon}_{\text{ref}}^* \cdot \mathbf{E}^+(\mathbf{R}, t) |\psi_f^{12}\rangle \quad (5.74)$$

par le conjugué du terme

$$\boldsymbol{\epsilon}_{\text{ref}}^* \cdot \mathbf{E}^+(\mathbf{R}, t) |\psi_f^{21}\rangle \quad (5.75)$$

Ces deux termes sont identiques, à deux éléments près. D'une part l'élément de matrice atomique (où les rôles de \mathbf{d}_1 et \mathbf{d}_2 sont inversés d'un terme à l'autre), et d'autre part les phases. Le premier terme a une phase :

$$e^{i\mathbf{k}_L \cdot \mathbf{r}_1} e^{i\omega_L(|\mathbf{R}-\mathbf{r}_2|/c-t)} \quad (5.76)$$

alors que le deuxième a une phase :

$$e^{i\mathbf{k}_L \cdot \mathbf{r}_2} e^{i\omega_L(|\mathbf{R}-\mathbf{r}_1|/c-t)} \quad (5.77)$$

Puisque $|\mathbf{R}| \gg |\mathbf{r}_1|, |\mathbf{r}_2|$, on peut écrire (ici avec \mathbf{r}_2) :

$$i\omega_L|\mathbf{R} - \mathbf{r}_2| \simeq i\omega_L R - i\omega_L \mathbf{r}_2 \cdot \frac{\mathbf{R}}{R} \simeq i\omega_L R - i\mathbf{k}_f \cdot \mathbf{r}_2 \quad (5.78)$$

en posant $\mathbf{k}_f = \omega_L \mathbf{R}/R$ (qui correspond au vecteur d'onde dans la direction d'observation) . Les phases des deux termes sont donc (en oubliant la dépendance temporelle commune aux deux termes) :

$$e^{i\mathbf{k}_L \cdot \mathbf{r}_1} e^{-i\mathbf{k}_f \cdot \mathbf{r}_2} \quad \text{et} \quad e^{i\mathbf{k}_L \cdot \mathbf{r}_2} e^{-i\mathbf{k}_f \cdot \mathbf{r}_1} \quad (5.79)$$

En prenant le produit du premier terme par le conjugué du deuxième, on obtient la phase :

$$e^{i(\mathbf{k}_L + \mathbf{k}_f) \cdot (\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2)} \quad (5.80)$$

Cette phase est bien celle menant à l'augmentation cohérente de la rétrodiffusion : elle est nulle pour $\mathbf{k}_f = -\mathbf{k}_L$, ce qui signifie qu'à la rétrodiffusion, l'interférence

entre les deux chemins de diffusion est totalement constructive. On peut donc écrire l'intensité due à l'interférence :

$$I_{\text{interf}}(\boldsymbol{\epsilon}_{\text{ref}}, \mathbf{R}) = \frac{9}{4} \frac{\Gamma^2/4}{\delta^2 + \Gamma^2/4} \frac{1}{(\omega_L r_{12}/c)^2} \frac{3}{32\pi} \Gamma_s \frac{\hbar\omega_L}{R^2} \left\{ e^{i(\mathbf{k}_L + \mathbf{k}_f) \cdot (\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2)} \langle m_1, m_2 | (\boldsymbol{\epsilon}_L^* \cdot \mathbf{d}'_2)(\mathbf{d}'_1 \cdot \boldsymbol{\Delta}_{12} \cdot \mathbf{d}'_2)(\boldsymbol{\epsilon}_{\text{ref}} \cdot \mathbf{d}'_1) \right. \\ (\boldsymbol{\epsilon}_{\text{ref}}^* \cdot \mathbf{d}'_2)(\mathbf{d}'_2 \cdot \boldsymbol{\Delta}_{12} \cdot \mathbf{d}'_1)(\boldsymbol{\epsilon}_L \cdot \mathbf{d}'_1) | m_1, m_2 \rangle + \\ e^{-i(\mathbf{k}_L + \mathbf{k}_f) \cdot (\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2)} \langle m_1, m_2 | (\boldsymbol{\epsilon}_L^* \cdot \mathbf{d}'_1)(\mathbf{d}'_2 \cdot \boldsymbol{\Delta}_{12} \cdot \mathbf{d}'_1)(\boldsymbol{\epsilon}_{\text{ref}} \cdot \mathbf{d}'_2) \\ \left. (\boldsymbol{\epsilon}_{\text{ref}}^* \cdot \mathbf{d}'_1)(\mathbf{d}'_1 \cdot \boldsymbol{\Delta}_{12} \cdot \mathbf{d}'_2)(\boldsymbol{\epsilon}_L \cdot \mathbf{d}'_2) | m_1, m_2 \rangle \right\} \quad (5.81)$$

Par rapport à l'intensité incohérente, ce terme comporte la phase en $(\mathbf{k}_L + \mathbf{k}_f) \cdot (\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2)$, caractéristique de l'augmentation de rétrodiffusion, et l'élément de matrice atomique est différent, ce qui montre que, même à la rétrodiffusion ($\mathbf{k}_f = -\mathbf{k}_L$), l'intensité due à l'interférence ne sera pas *a priori* égale à l'intensité incohérente (voir chapitre 6).

5.4.3 Comparaison avec des diffuseurs dipolaires ponctuels

Comme dans le cas de la diffusion simple, il est intéressant de comparer ces expressions à celles obtenues avec des diffuseurs dipolaires ponctuels. Pour la section efficace dans une polarisation donnée, on obtient des expressions similaires aux équation (5.73) et (5.81), où tous les éléments de matrice atomiques (aussi bien pour l'intensité incohérente que pour l'intensité due à l'interférence) sont remplacés par l'expression :

$$|\boldsymbol{\epsilon}_{\text{ref}}^* \cdot \boldsymbol{\Delta}_{12} \cdot \boldsymbol{\epsilon}_L|^2 \quad (5.82)$$

Puisque la seule différence entre l'intensité due à l'interférence et l'intensité incohérente est ici la phase géométrique $\sim (\mathbf{k}_l + \mathbf{k}_f) \cdot (\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2)$, on retrouve le résultat bien connu que, pour des diffuseurs dipolaires ponctuels, l'intensité due à l'interférence est égale à l'intensité incohérente à la rétrodiffusion ($\mathbf{k}_f = -\mathbf{k}_L$). Il y a donc une augmentation d'un facteur 2 de la diffusion double à la rétrodiffusion. Notons que le fait que ceci soit vrai pour tout $\boldsymbol{\epsilon}_{\text{ref}}$, indépendamment de $\boldsymbol{\epsilon}_L$, est spécifique à la diffusion double. Notons enfin que l'on retrouve exactement les expressions pour les diffuseurs dipolaires en considérant des atomes avec une transition $J = 0 \rightarrow J_e = 1$ (voir section 5.2.6).

5.4.4 Ordres de diffusion supérieurs

A partir des résultats obtenus pour la diffusion double, on peut facilement écrire les résultats pour les ordres de diffusion supérieurs (diffusion triple, quadruple,

etc.). La présence d'un atome supplémentaire (par exemple, l'atome 3 après l'atome 2) dans le chemin de diffusion amène d'une part le facteur supplémentaire :

$$\frac{9}{4} \frac{\Gamma^2/4}{\delta^2 + \Gamma^2/4} \frac{1}{(\omega_L r_{23}/c)} \quad (5.83)$$

(où r_{23} est la distance entre les atomes 2 et 3). D'autre part, l'élément de matrice atomique comporte maintenant les opérateurs dipôles rendant compte de l'absorption et de l'émission par l'atome supplémentaire. A titre d'exemple, les expressions équivalentes aux équations (5.73) et (5.81) dans le cas de la diffusion triple s'écrivent :

$$\begin{aligned} I_{\text{inc}}(\boldsymbol{\epsilon}_{\text{ref}}, \mathbf{R}) = & \left(\frac{9}{4} \frac{\Gamma^2/4}{\delta^2 + \Gamma^2/4} \right)^2 \frac{1}{(\omega_L r_{12}/c)^2} \frac{1}{(\omega_L r_{23}/c)^2} \frac{3}{32\pi} \Gamma_S \frac{\hbar\omega_L}{|\mathbf{R}|^2} \\ & \left\{ \langle m_1, m_2, m_3 | (\boldsymbol{\epsilon}_L^* \cdot \mathbf{d}'_1) (\mathbf{d}'_2 \cdot \boldsymbol{\Delta}_{12} \cdot \mathbf{d}'_1) (\mathbf{d}'_3 \cdot \boldsymbol{\Delta}_{23} \cdot \mathbf{d}'_2) (\boldsymbol{\epsilon}_{\text{ref}} \cdot \mathbf{d}'_3) (\boldsymbol{\epsilon}_{\text{ref}}^* \cdot \mathbf{d}'_3) \right. \\ & \quad (\mathbf{d}'_3 \cdot \boldsymbol{\Delta}_{23} \cdot \mathbf{d}'_2) (\mathbf{d}'_2 \cdot \boldsymbol{\Delta}_{12} \cdot \mathbf{d}'_1) (\boldsymbol{\epsilon}_L \cdot \mathbf{d}'_1) | m_1, m_2, m_3 \rangle + \\ & \quad \langle m_1, m_2, m_3 | (\boldsymbol{\epsilon}_L^* \cdot \mathbf{d}'_3) (\mathbf{d}'_3 \cdot \boldsymbol{\Delta}_{23} \cdot \mathbf{d}'_2) (\mathbf{d}'_1 \cdot \boldsymbol{\Delta}_{12} \cdot \mathbf{d}'_2) (\boldsymbol{\epsilon}_{\text{ref}} \cdot \mathbf{d}'_1) (\boldsymbol{\epsilon}_{\text{ref}}^* \cdot \mathbf{d}'_1) \\ & \quad \left. (\mathbf{d}'_1 \cdot \boldsymbol{\Delta}_{12} \cdot \mathbf{d}'_2) (\mathbf{d}'_3 \cdot \boldsymbol{\Delta}_{23} \cdot \mathbf{d}'_2) (\boldsymbol{\epsilon}_L \cdot \mathbf{d}'_3) | m_1, m_2, m_3 \rangle \right\} \quad (5.84) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} I_{\text{interf}}(\boldsymbol{\epsilon}_{\text{ref}}, \mathbf{R}) = & \left(\frac{9}{4} \frac{\Gamma^2/4}{\delta^2 + \Gamma^2/4} \right)^2 \frac{1}{(\omega_L r_{12}/c)^2} \frac{1}{(\omega_L r_{23}/c)^2} \frac{3}{32\pi} \Gamma_S \frac{\hbar\omega_L}{|\mathbf{R}|^2} \\ & \left\{ e^{i(\mathbf{k}_L + \mathbf{k}_f) \cdot (\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_3)} \langle m_1, m_2, m_3 | (\boldsymbol{\epsilon}_L^* \cdot \mathbf{d}'_3) (\mathbf{d}'_3 \cdot \boldsymbol{\Delta}_{23} \cdot \mathbf{d}'_2) (\mathbf{d}'_1 \cdot \boldsymbol{\Delta}_{12} \cdot \mathbf{d}'_2) (\boldsymbol{\epsilon}_{\text{ref}} \cdot \mathbf{d}'_1) (\boldsymbol{\epsilon}_{\text{ref}}^* \cdot \mathbf{d}'_3) \right. \\ & \quad (\mathbf{d}'_3 \cdot \boldsymbol{\Delta}_{23} \cdot \mathbf{d}'_2) (\mathbf{d}'_2 \cdot \boldsymbol{\Delta}_{12} \cdot \mathbf{d}'_1) (\boldsymbol{\epsilon}_L \cdot \mathbf{d}'_1) | m_1, m_2, m_3 \rangle + \\ & \quad e^{-i(\mathbf{k}_L + \mathbf{k}_f) \cdot (\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_3)} \langle m_1, m_2, m_3 | (\boldsymbol{\epsilon}_L^* \cdot \mathbf{d}'_1) (\mathbf{d}'_2 \cdot \boldsymbol{\Delta}_{12} \cdot \mathbf{d}'_1) (\mathbf{d}'_3 \cdot \boldsymbol{\Delta}_{23} \cdot \mathbf{d}'_2) (\boldsymbol{\epsilon}_{\text{ref}} \cdot \mathbf{d}'_3) (\boldsymbol{\epsilon}_{\text{ref}}^* \cdot \mathbf{d}'_1) \\ & \quad \left. (\mathbf{d}'_1 \cdot \boldsymbol{\Delta}_{12} \cdot \mathbf{d}'_2) (\mathbf{d}'_3 \cdot \boldsymbol{\Delta}_{23} \cdot \mathbf{d}'_2) (\boldsymbol{\epsilon}_L \cdot \mathbf{d}'_3) | m_1, m_2, m_3 \rangle \right\} \quad (5.85) \end{aligned}$$

Dans le cas d'une transition de type $0 \rightarrow 1$, les éléments de matrice se réduisent à :

$$(I_{\text{inc}}(\boldsymbol{\epsilon}_{\text{ref}}, \mathbf{R}))_{0 \rightarrow 1} \sim |\boldsymbol{\epsilon}_{\text{ref}}^* \cdot \boldsymbol{\Delta}_{23} \cdot \boldsymbol{\Delta}_{12} \cdot \boldsymbol{\epsilon}_L|^2 + |\boldsymbol{\epsilon}_{\text{ref}}^* \cdot \boldsymbol{\Delta}_{12} \cdot \boldsymbol{\Delta}_{23} \cdot \boldsymbol{\epsilon}_L|^2 \quad (5.86)$$

$$\begin{aligned} (I_{\text{interf}}(\boldsymbol{\epsilon}_{\text{ref}}, \mathbf{R}))_{0 \rightarrow 1} \sim & e^{i(\mathbf{k}_L + \mathbf{k}_f) \cdot (\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_3)} (\boldsymbol{\epsilon}_L^* \cdot \boldsymbol{\Delta}_{23} \cdot \boldsymbol{\Delta}_{12} \cdot \boldsymbol{\epsilon}_{\text{ref}}) (\boldsymbol{\epsilon}_L \cdot \boldsymbol{\Delta}_{12} \cdot \boldsymbol{\Delta}_{23} \cdot \boldsymbol{\epsilon}_{\text{ref}}^*) \\ & + \text{c.c.} \quad (5.87) \end{aligned}$$

On a bien sûr les mêmes expressions pour des diffuseurs dipolaires ponctuels. Remarquons que, puisque les deux opérateurs de projection $\boldsymbol{\Delta}_{12}$ et $\boldsymbol{\Delta}_{23}$ ne commutent

pas, I_{interf} est en général inférieure à I_{inc} à rétrodiffusion, à moins d'avoir $\epsilon_{\text{ref}} = \epsilon_L^*$. Ceci montre que, même pour des diffuseurs dipolaires, l'intensité rétrodiffusée due à l'interférence n'est pas égale à l'intensité incohérente pour la diffusion triple (et pour les ordres supérieurs), sauf dans les canaux parallèles ($lin \parallel lin$ et $h \parallel h$), pour lesquels on a $\epsilon_{\text{ref}} = \epsilon_L^*$.

Chapitre 6

Rétrodiffusion cohérente sur des atomes

6.1 Introduction

Les résultats des chapitres précédents nous permettent maintenant d'envisager l'étude de la rétrodiffusion cohérente par des atomes dans un milieu semi-infini, en se limitant à la diffusion simple et à la diffusion double. En effet, nous avons d'une part introduit, dans le chapitre 4, les méthodes de calcul des coefficients bistatiques de diffusion simple et de diffusion double pour des diffuseurs dipolaires. Et nous avons d'autre part obtenu, dans le chapitre 5, l'intensité de diffusion simple par un atome et l'intensité de diffusion double par deux atomes, et nous avons vu que ces expressions sont très similaires à celles pour des diffuseurs dipolaires, la différence provenant des éléments de matrice atomique qui généralisent les termes de polarisation des diffuseurs dipolaires. La combinaison de ces deux résultats nous permet simplement de calculer les coefficients bistatiques de diffusion simple et double pour des atomes, et donc d'obtenir les courbes de rétrodiffusion pour les atomes montrant l'effet de la structure interne atomique.

D'un point de vue plus fondamental, les résultats des chapitres précédents nous permettent également de comprendre le rôle joué par la structure interne atomique dans la rétrodiffusion cohérente. La différence entre les atomes et les diffuseurs dipolaires étant uniquement dans les éléments de matrice atomique, il suffit de considérer ces éléments de matrice. Nous allons voir qu'ils peuvent s'exprimer en termes d'amplitudes de diffusion, qui généralisent les amplitudes classiques, et que la réciprocité ne permet pas d'établir l'égalité entre les amplitudes qui interfèrent, à cause de la structure interne atomique. Ceci entraîne que les facteurs d'augmentation pour la rétrodiffusion sur les atomes sont bien inférieurs à 2. Nous verrons également qu'il est possible d'associer un tenseur de diffusion à une transition atomique donnée, et que la diminution du facteur d'augmentation pour les atomes est une conséquence directe de l'antisymétrie du tenseur de diffusion.

Le plan de ce chapitre est le suivant. La section 6.2 montre les résultats expérimentaux obtenus par l'expérience de Nice [63, 64]. La section 6.3 expose le principe du calcul effectué dans la suite de ce chapitre. La section 6.4 définit les amplitudes de diffusion pour la diffusion sur les atomes. La section 6.5 donne la relation de réciprocité pour la diffusion sur les atomes, et montre qu'elle ne peut pas être utilisée pour obtenir l'égalité des amplitudes qui interfèrent. La section 6.6 donne un exemple simple montrant l'inégalité des amplitudes qui interfèrent pour les atomes. La section 6.7 développe le calcul de l'intensité de diffusion simple et de diffusion double diffusée par des atomes dans un *slab* semi-infini, et compare les résultats pour la transition atomique $J = 3 \rightarrow J_e = 4$ aux résultats expérimentaux. La section 6.8 expose l'interprétation en termes du tenseur de diffusion associé à une transition atomique. La section 6.9 montre que la diffusion Raman contribue notablement à l'augmentation de rétrodiffusion. Enfin, la section 6.10 aborde les méthodes permettant le calcul des ordres de diffusion supérieurs à la diffusion double.

6.2 Résultats expérimentaux

L'augmentation cohérente de la rétrodiffusion par un gaz d'atomes froids a été observée pour la première fois dans une expérience récente menée à Nice [63, 64]. Ces résultats sont montrés sur la figure 6.1, dans les quatre canaux de polarisation. Sur cette figure, l'intensité diffusée en dehors du cône de rétrodiffusion (c'est-à-dire l'intensité incohérente) a été normalisée à 1 dans les quatre canaux, afin de mettre clairement en évidence le facteur d'augmentation pour chaque canal.

Par rapport au cas des diffuseurs classiques (voir chapitre 4), ces résultats sont surprenants à plus d'un titre. Tout d'abord, les facteurs d'augmentation observés sont bien inférieurs à 2 dans les quatre canaux de polarisation (au maximum 1,2), alors qu'avec des diffuseurs classiques on peut observer un facteur d'augmentation égal à 2 ou très proche de 2. Ensuite, la distinction faite pour les diffuseurs classiques entre les canaux parallèles ($lin \parallel lin$ et $h \parallel h$), pour lesquels on a un facteur d'augmentation élevé (proche de 2 ou égal à 2), et les canaux perpendiculaires ($lin \perp lin$ et $h \perp h$), pour lesquels on a un facteur d'augmentation beaucoup plus faible, n'est ici plus valable. En effet, le facteur d'augmentation le plus faible (1,06) est paradoxalement obtenu ici pour le canal $h \parallel h$, alors que le plus élevé (1,20) est obtenu pour le canal $h \perp h$!

On voit donc que les résultats obtenus pour l'augmentation de rétrodiffusion sur des atomes sont très différents de ceux obtenus sur des diffuseurs classiques. Comme nous allons le voir dans la suite de ce chapitre, la prise en compte de la structure interne atomique permet de rendre compte de l'essentiel des particularités observées ici, même en utilisant un calcul limité à la diffusion double.

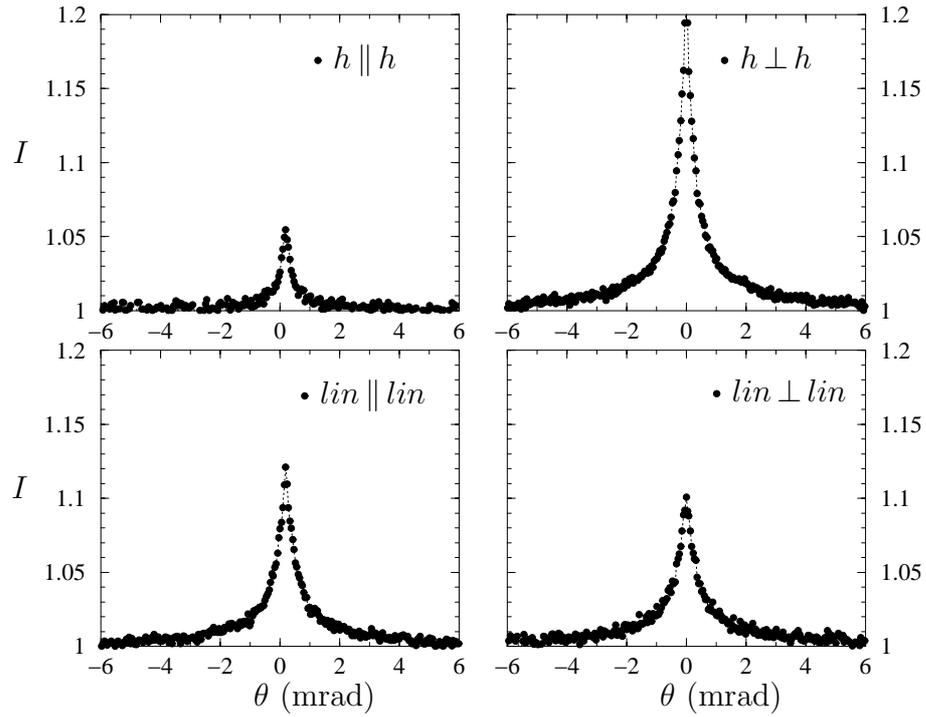


FIG. 6.1 – Courbes expérimentales montrant l'intensité I diffusée autour de la rétrodiffusion ($\theta = 0$) par un gaz d'atomes de rubidium refroidis, dans les quatre canaux de polarisation (ces courbes ont été obtenues sur l'expérience menée à Nice [63, 64]). L'intensité a été normalisée à 1 loin de la rétrodiffusion, dans les quatre canaux. Il apparaît que l'augmentation de rétrodiffusion observée est nettement inférieure à 2 dans les quatre canaux, et que la valeur observée varie fortement suivant le canal de polarisation. (Merci à C. Müller et G. Labeyrie pour m'avoir communiqué cette figure.)

6.3 Principe du calcul

Avant de rentrer dans les détails du calcul, il est utile d'en préciser le principe, et de clarifier quelques points. L'augmentation cohérente de rétrodiffusion provient de l'interférence entre des paires de chemins, les deux chemins d'une paire donnée passant par les mêmes diffuseurs mais en sens inverse. Comme le montre la section suivante, dans le cas des atomes, un chemin de diffusion est spécifié non seulement par la succession d'atomes qui le composent, mais également par les transitions atomiques effectuées par les atomes le long du chemin. D'après les principes fondamentaux de la mécanique quantique, seuls peuvent interférer les processus qui, partant d'un état initial donné pour le système, aboutissent au même état final. Dans notre cas, ceci signifie que les chemins de diffusion qui interfèrent sont ceux pour lesquels l'état final des atomes est le même pour les différents chemins. Une paire de chemins contribuant à l'augmentation cohérente de rétrodiffusion est donc constituée de deux chemins passant par les mêmes diffuseurs en sens inverse, les atomes effectuant les mêmes transitions dans les deux chemins. Comme nous le verrons dans la suite, la particularité essentielle lorsque des atomes sont utilisés est la non-égalité à rétrodiffusion des amplitudes des deux chemins d'une paire, à cause de la structure interne atomique, et ce quel que soit le canal de polarisation utilisé. Cette non-égalité des amplitudes entraîne que le facteur d'augmentation observé à rétrodiffusion est inférieur à 2.

Il convient de noter que la contribution d'une paire de chemins pour lesquels un atome (ou plusieurs) effectue une transition Raman dégénérée (c'est-à-dire avec changement d'état interne) n'est pas fondamentalement différente de la contribution d'une paire de chemins pour lesquels tous les atomes effectuent une transition Rayleigh (càd. sans changement d'état interne). Ceci peut sembler surprenant à première vue, si l'on se fonde sur le fait suivant : la lumière diffusée par un atome effectuant une transition Raman ne peut pas interférer avec la lumière incidente. De ceci, on pourrait en effet déduire que la lumière résultant d'une transition Raman est "incohérente", et ne peut donc pas participer à un processus d'interférence. Toutefois, ceci n'est pas vrai dans le cas qui nous occupe. Si la lumière diffusée dans une transition Raman ne peut pas interférer avec la lumière incidente, c'est simplement parce que l'état final de l'atome est différent dans les deux cas. Dans un cas (diffusion avec transition Raman), l'atome a changé d'état interne, alors que dans l'autre cas (lumière incidente - pas de diffusion), l'atome n'a pas changé d'état interne. Mais quand on considère deux chemins d'une paire, pour lesquels les atomes effectuent les mêmes transitions (avec ou sans transition Raman), les états finals sont identiques pour les deux chemins et donc les chemins interfèrent. Dans le calcul, les transitions Rayleigh et les transitions Raman doivent donc être traitées de manière équivalente. Nous verrons explicitement dans la suite que les interférences entre les chemins contenant des transitions Raman contribuent notablement à l'augmentation de rétrodiffusion.

6.4 Amplitudes de diffusion pour les atomes

Les expressions données dans le chapitre 5 pour l'intensité de diffusion double sur des atomes sont écrites sous la forme la plus pratique pour un calcul explicite, avec un seul élément de matrice où n'apparaît que l'état initial des atomes $|m_1, m_2\rangle$. Pour une compréhension plus fondamentale du rôle de la structure interne, il est utile de ré-écrire ces éléments de matrice (les accolades des équations (5.73) et (5.81)) en faisant apparaître explicitement des amplitudes de diffusion. En posant :

$$\mathcal{T}_{\text{dir}}(m_1, m_2 \rightarrow m'_1, m'_2) = e^{i(\mathbf{k}_L \cdot \mathbf{r}_1 - \mathbf{k}_f \cdot \mathbf{r}_2)} \langle m'_1, m'_2 | (\boldsymbol{\epsilon}_{\text{ref}}^* \cdot \mathbf{d}'_2)(\mathbf{d}'_2 \cdot \Delta_{12} \cdot \mathbf{d}'_1)(\boldsymbol{\epsilon}_L \cdot \mathbf{d}'_1) | m_1, m_2 \rangle \quad (6.1)$$

$$\mathcal{T}_{\text{rev}}(m_1, m_2 \rightarrow m'_1, m'_2) = e^{i(\mathbf{k}_L \cdot \mathbf{r}_2 - \mathbf{k}_f \cdot \mathbf{r}_1)} \langle m'_1, m'_2 | (\boldsymbol{\epsilon}_{\text{ref}}^* \cdot \mathbf{d}'_1)(\mathbf{d}'_1 \cdot \Delta_{12} \cdot \mathbf{d}'_2)(\boldsymbol{\epsilon}_L \cdot \mathbf{d}'_2) | m_1, m_2 \rangle \quad (6.2)$$

les éléments de matrice apparaissant dans l'intensité incohérente s'écrivent :

$$\sum_{m'_1 m'_2} \left\{ \|\mathcal{T}_{\text{dir}}(m_1, m_2 \rightarrow m'_1, m'_2)\|^2 + \|\mathcal{T}_{\text{rev}}(m_1, m_2 \rightarrow m'_1, m'_2)\|^2 \right\} \quad (6.3)$$

et ceux pour l'intensité due à l'interférence s'écrivent :

$$\sum_{m'_1 m'_2} \left\{ \mathcal{T}_{\text{rev}}^*(m_1, m_2 \rightarrow m'_1, m'_2) \mathcal{T}_{\text{dir}}(m_1, m_2 \rightarrow m'_1, m'_2) + \mathcal{T}_{\text{dir}}^*(m_1, m_2 \rightarrow m'_1, m'_2) \mathcal{T}_{\text{rev}}(m_1, m_2 \rightarrow m'_1, m'_2) \right\} \quad (6.4)$$

Les amplitudes (6.1) et (6.2) sont donc les quantités fondamentales pour la diffusion multiple sur les atomes, et généralisent les amplitudes t_{dir} et t_{rev} écrites dans le cas des diffuseurs dipolaires (chapitre 4). On voit qu'à cause de la structure interne, un chemin de diffusion est caractérisé non seulement par les vecteurs d'onde et polarisations entrants et sortants ($\mathbf{k}_L, \mathbf{k}_f; \boldsymbol{\epsilon}_L, \boldsymbol{\epsilon}_{\text{ref}}$), mais en plus par les états internes initiaux et finals des atomes le long du chemin. A nouveau, l'augmentation due à l'interférence ne sera maximale (et égale à l'intensité incohérente) qu'à condition d'avoir $\mathcal{T}_{\text{dir}} = \mathcal{T}_{\text{rev}}$ pour chaque chemin. Nous allons voir qu'en général, ce n'est pas le cas, quel que soit le canal de polarisation utilisé. Dans la suite de ce chapitre, nous revenons aux notations $\mathbf{k}_{in}\boldsymbol{\epsilon}_{in}$ (remplaçant $\mathbf{k}_L\boldsymbol{\epsilon}_L$) et $\mathbf{k}_{out}\boldsymbol{\epsilon}_{out}$ (remplaçant $\mathbf{k}_f\boldsymbol{\epsilon}_{\text{ref}}$) du chapitre 4.

6.5 Réciprocité pour la diffusion sur les atomes

La propriété de réciprocité reste valable lorsque les diffuseurs considérés sont des atomes, à condition de considérer les degrés de liberté internes des atomes

comme des variables du système. En plus des vecteurs d'onde initial et final (\mathbf{k}_{in} et \mathbf{k}_{out}), et des polarisations initiale et finale ($\boldsymbol{\epsilon}_{in}$ et $\boldsymbol{\epsilon}_{out}$), la réciprocité fait maintenant intervenir les états internes initiaux et finals des atomes ((m_1, m_2, \dots) et (m'_1, m'_2, \dots)). Si l'on considère un chemin de diffusion arbitraire d'ordre N , que nous appelons chemin direct, d'amplitude \mathcal{T}_{dir}^1 , la relation de réciprocité s'écrit[91] :

$$\mathcal{T}_{dir}(\mathbf{k}_{in}\boldsymbol{\epsilon}_{in}, \{m\} \rightarrow \mathbf{k}_{out}\boldsymbol{\epsilon}_{out}, \{m'\}) = (-1)^{\sum_i (m'_i - m_i)} \mathcal{T}_{rev}(-\mathbf{k}_{out}\boldsymbol{\epsilon}_{out}^*, -\{m'\} \rightarrow -\mathbf{k}_{in}\boldsymbol{\epsilon}_{in}^*, -\{m\}) \quad (6.5)$$

où $\{m\} = (m_1, m_2, \dots, m_N)$ est l'état interne initial des N atomes formant le chemin, $\{m'\} = (m'_1, m'_2, \dots, m'_N)$ l'état interne final des N atomes, et \mathcal{T}_{rev} l'amplitude du chemin inverse correspondant, qui passe par les mêmes atomes mais en ordre inverse. Le point essentiel pour ce qui nous occupe est que, dans l'amplitude \mathcal{T}_{rev} du chemin inverse, les signes des états internes atomiques sont inversés : le chemin inverse relié par la réciprocité au chemin direct dans lequel les atomes effectuent les transitions $(m_1 \rightarrow m'_1, m_2 \rightarrow m'_2, \dots)$ est celui où les atomes effectuent les transitions $(-m'_1 \rightarrow -m_1, -m'_2 \rightarrow -m_2, \dots)$. Pour les états internes atomiques, il y a donc, en plus de l'inversion initial \leftrightarrow final, un changement de signe. C'est parce que la réciprocité est une conséquence de l'invariance de la dynamique microscopique par renversement du temps qu'apparaît ce changement de signe, puisqu'un électron dans un état m donné devient par renversement du temps un électron dans l'état $-m$. La relation (6.5) est illustrée sur la figure 6.2.

Ceci signifie que la réciprocité ne peut pas en général être utilisée pour obtenir l'égalité entre les amplitudes qui interfèrent à rétrodiffusion, même en choisissant un canal de polarisation parallèle ($lin \parallel lin$ ou $h \parallel h$), dans lequel la réciprocité prédit l'égalité des amplitudes qui interfèrent pour des diffuseurs dipolaires. En effet, les deux amplitudes qui interfèrent à rétrodiffusion, dans les canaux parallèles ($\boldsymbol{\epsilon}_{out} = \boldsymbol{\epsilon}_{in}^*$), sont d'une part

$$\mathcal{T}_{dir}(\mathbf{k}_{in}\boldsymbol{\epsilon}_{in}, \{m\} \rightarrow -\mathbf{k}_{in}\boldsymbol{\epsilon}_{in}^*, \{m'\}) \quad (6.6)$$

et d'autre part

$$\mathcal{T}_{rev}(\mathbf{k}_{in}\boldsymbol{\epsilon}_{in}, \{m\} \rightarrow -\mathbf{k}_{in}\boldsymbol{\epsilon}_{in}^*, \{m'\}) \quad (6.7)$$

On voit que pour que ces deux amplitudes soient celles qui apparaissent dans la relation de réciprocité (6.5), il faut prendre dans celle-ci $\mathbf{k}_{out} = -\mathbf{k}_{in}$ et $\boldsymbol{\epsilon}_{out} = \boldsymbol{\epsilon}_{in}^*$ (comme pour les diffuseurs dipolaires), mais en plus satisfaire la condition $-\{m'\} = \{m\}$. Cette condition sur les transitions atomiques n'est réalisée que pour quelques chemins particuliers, et donc en général la réciprocité ne nous apprend rien sur les amplitudes qui interfèrent. Ces amplitudes n'ont donc pas de raison fondamentale

¹On écrit maintenant explicitement la dépendance de \mathcal{T}_{dir} en \mathbf{k}_{in} \mathbf{k}_{out} et $\boldsymbol{\epsilon}_{in}$ $\boldsymbol{\epsilon}_{out}$, qu'on avait omise dans les équations précédentes.

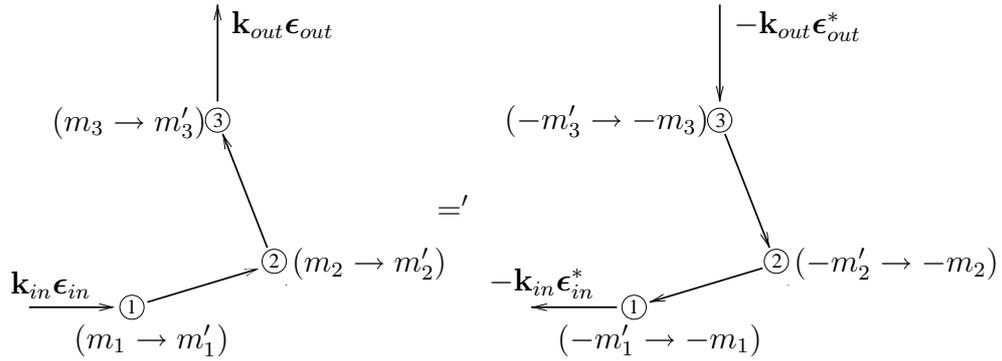


FIG. 6.2 – Illustration de la relation de réciprocité (6.5). Pour un chemin donné caractérisé par les transitions atomiques $(m_i \rightarrow m'_i)$ (à gauche), le chemin réciproque associé est caractérisé par les transitions $(-m'_i \rightarrow -m_i)$. Ceci empêche d'utiliser la réciprocité pour déduire l'égalité des amplitudes qui interfèrent à rétrodiffusion ($\mathbf{k}_{out} = -\mathbf{k}_{in}$), même dans les canaux de polarisation parallèles ($\epsilon_{out} = \epsilon_{in}^*$). Le signe $='$ signifie qu'il y a éventuellement un facteur (-1) , voir équation (6.5).

d'être égales, et ne le sont pas en général, comme le montre l'exemple de la section suivante. La situation décrite ici est très similaire au cas de la diffusion sur des diffuseurs dipolaires dans les canaux de polarisation perpendiculaires ($lin \perp lin$ et $h \perp h$), dans lesquels la réciprocité ne peut pas être utilisée pour obtenir l'égalité des amplitudes qui interfèrent à cause du choix des polarisations. Ici, c'est la structure interne atomique qui empêche l'utilisation de la réciprocité, dans tous les canaux de polarisation. Notons que puisque les états (et les transitions) atomiques ne sont pas des variables externes contrôlables expérimentalement² (comme l'est par exemple la polarisation), il est impossible de se restreindre aux chemins particuliers pour lesquels la propriété de réciprocité est applicable.

Il y a toutefois un cas particulier important pour lequel la condition $-\{m'\} = \{m\}$ est toujours satisfaite. Si la transition atomique utilisée est entre un niveau fondamental de moment angulaire $J = 0$ et un niveau excité de moment angulaire $J_e = 1$ (transition $0 \rightarrow 1$), alors il n'y a qu'un seul m possible pour le niveau fondamental de chaque atome ($m = 0$), et on a donc trivialement $-m' = m = 0$ pour chaque atome. Dans ce cas, on retrouve le fait que la réciprocité est utilisable dans les canaux parallèles. Ceci n'est pas une surprise : comme expliqué précédemment, un atome avec une transition $0 \rightarrow 1$ est totalement équivalent à un diffuseur dipolaire, et il est donc normal de retrouver les résultats connus.

²A moins de considérer un milieu que l'on aurait préparé par pompage optique, mais ceci est difficile à réaliser pour un milieu optiquement épais.

6.6 Un exemple simple montrant $\mathcal{T}_{\text{dir}} \neq \mathcal{T}_{\text{rev}}$

Afin de se convaincre que la structure interne entraîne l'inégalité des amplitudes directe et inverse même dans les canaux de polarisation parallèles, voici un exemple simple le montrant clairement. On considère un chemin de diffusion double sur deux atomes, avec une transition atomique $J = 1/2 \rightarrow J_e = 1/2$. L'état interne initial de l'atome 1 est $m_1 = -1/2$, celui de l'atome 2 est $m_2 = +1/2$, et on s'intéresse au chemin qui laisse inchangé les états internes ($m'_1 = -1/2$, $m'_2 = +1/2$). On envoie de la lumière d'hélicité positive, et on détecte la lumière diffusée avec la même hélicité (canal $h \parallel h$). Les deux chemins direct et inverse sont illustrés sur la figure 6.3. Pour le chemin direct (photon diffusé par l'atome 1 puis l'atome 2), l'atome 1 peut absorber le photon incident (et passer dans l'état excité $|J_e = 1/2, m = +1/2\rangle$), se désexciter en revenant dans l'état $m = -1/2$, et l'atome 2 peut absorber le photon émis et émettre un photon ayant l'hélicité requise en revenant dans son état initial (via l'état excité $|J_e = 1/2, m = -1/2\rangle$). L'amplitude du chemin direct est donc non-nulle :

$$\mathcal{T}_{\text{dir}} \left(\mathbf{k}_{in} \boldsymbol{\epsilon}_+, \left(m_1 = -\frac{1}{2}, m_2 = \frac{1}{2} \right) \rightarrow -\mathbf{k}_{in} \boldsymbol{\epsilon}_+^* \left(m_1 = -\frac{1}{2}, m_2 = \frac{1}{2} \right) \right) \neq 0 \quad (6.8)$$

Par contre, pour le chemin inverse, il est impossible pour l'atome 2 d'absorber le photon incident, et l'amplitude de ce chemin est donc nulle :

$$\mathcal{T}_{\text{rev}} \left(\mathbf{k}_{in} \boldsymbol{\epsilon}_+, \left(m_1 = -\frac{1}{2}, m_2 = \frac{1}{2} \right) \rightarrow -\mathbf{k}_{in} \boldsymbol{\epsilon}_+^* \left(m_1 = -\frac{1}{2}, m_2 = \frac{1}{2} \right) \right) = 0 \quad (6.9)$$

On a donc clairement $\mathcal{T}_{\text{dir}} \neq \mathcal{T}_{\text{rev}}$!

6.7 Calcul de l'intensité diffusée par des atomes dans un *slab*

6.7.1 Introduction

Cette section est consacré au calcul explicite de l'intensité diffusée par des atomes dans un *slab* semi-infini³, en se limitant à la diffusion simple et à la diffusion double. Le section précédente nous a montré que l'intensité due à l'interférence est inférieure à l'intensité incohérente, à cause de la structure interne atomique. Le calcul explicite de la diffusion double pour des atomes dans un *slab* nous permettra de déterminer quantitativement l'effet de la structure interne sur l'augmentation de la rétrodiffusion dans les différents canaux de polarisation. Le calcul de la diffusion simple nous permettra de plus d'obtenir, pour chaque canal de polarisation, la contribution relative de la diffusion simple, qui réduit fortement l'augmentation de rétrodiffusion observée.

³Considérer un *slab* d'épaisseur L finie ne poserait pas de problèmes importants.

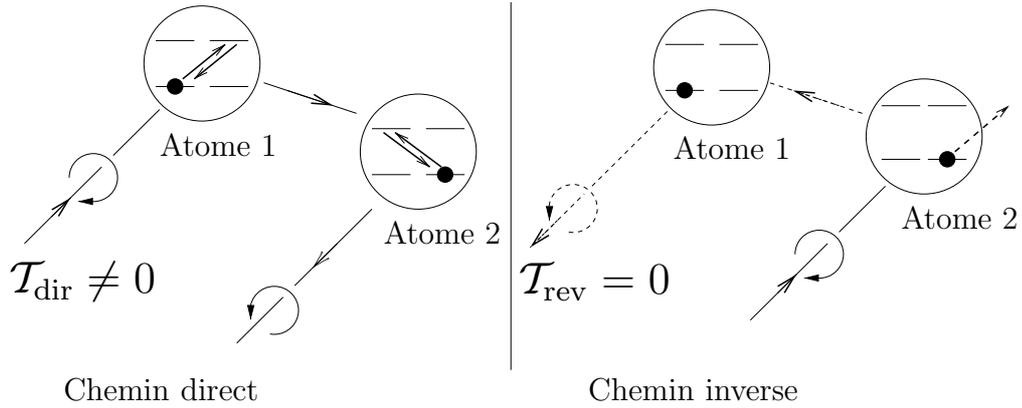


FIG. 6.3 – Exemple montrant un chemin direct et un chemin inverse ayant des amplitudes différentes, dans le canal $h \parallel h$. La transition atomique est $J = 1/2 \rightarrow J_e = 1/2$, l'état initial et final de l'atome 1 est $m_1 = -1/2$, l'état initial et final de l'atome 2 est $m_2 = +1/2$. A gauche le chemin direct, qui a une amplitude non-nulle. A droite le chemin inverse, qui a une amplitude nulle : l'atome 2 ne peut pas diffuser le photon incident.

6.7.2 Hypothèse d'un milieu non-polarisé

Nous ferons ici, et dans la suite, une hypothèse importante concernant l'état interne des atomes. Nous supposons qu'en moyenne, les atomes sont non-polarisés, c'est-à-dire que la probabilité $p(m)$ pour un atome d'être dans le sous-niveau $|m\rangle$ est uniforme. Ceci revient à prendre une matrice densité scalaire dans le sous-espace fondamental J . Un atome dans un état $|m\rangle$ donné diffuse plus ou moins fortement la lumière incidente suivant la direction et la polarisation de celle-ci. Ce n'est qu'en moyennant de manière uniforme sur m que l'on obtient une section efficace totale indépendante de la direction incidente et de la polarisation. Cette moyenne sur une distribution uniforme permet d'obtenir un libre parcours moyen ℓ indépendant de la direction de propagation et de la polarisation, et donc assure que la fonction de Green moyenne dans le milieu $\langle G(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2; k) \rangle$ est identique à celle pour des diffuseurs dipolaires (équation (4.41), avec $\ell = 1/(n_d \langle \sigma \rangle_m)$, où $\langle \sigma \rangle_m$ est la section efficace totale d'un atome moyennée sur l'état interne de celui-ci donnée par l'équation (6.13)). Notons aussi que cette hypothèse entraîne également que le libre parcours moyen de transport, ℓ_t (équation (4.18)) est égal au libre parcours moyen de diffusion ℓ . Dans le cas d'un milieu atomique polarisé (distribution non uniforme sur l'état interne m pour chaque atome), la fonction de Green moyenne est nettement plus complexe, avec un libre parcours moyen tensoriel dépendant de la direction de propagation et de la polarisation.

Cette hypothèse permet donc de simplifier les expressions pour l'intensité (qui restent similaires à celles pour les diffuseurs dipolaires), et est raisonnable d'un point de vue expérimental. Dans l'expérience faite à Nice, les atomes sont piégés

dans un piège magnéto-optique (MOT) avant d'être éclairés par la lumière dont on mesure la diffusion. On peut supposer que les atomes préparés dans le piège n'ont pas, en moyenne, de polarisation très marquée. De plus, lorsque l'expérience de rétrodiffusion est effectuée, le piège est éteint et il y a sans doute un faible champ magnétique résiduel non corrélé à la direction incidente du faisceau lumineux, qui dépolarise le milieu. Les collisions entre atomes dépolarisent également, mais celles-ci sont sans doute trop rares à l'échelle de temps de l'expérience pour avoir un rôle significatif. Enfin, les éventuels effets de pompage optique par le faisceau incident sont sans doute peu importants, car le milieu atomique est un milieu multiplement diffusant difficile à pomper optiquement, et l'intensité du laser incident sur le milieu est faible (paramètre de saturation $s \ll 1$). Expérimentalement, ceci est confirmé par des mesures en champ magnétiques, qui montrent que le milieu est nécessairement peu polarisé [92]. Comme théoriquement, on ne s'attend pas à ce que les résultats obtenus varient très rapidement avec la polarisation du milieu tant que celle-ci reste faible (ceci pourra se vérifier *a posteriori* à partir des résultats obtenus), il est donc raisonnable de considérer théoriquement un milieu non-polarisé.

6.7.3 Calcul de la diffusion simple

Rappelons l'expression de la diffusion simple pour des diffuseurs dipolaires (équation (4.47)) :

$$\gamma^{(1)}(\theta) = \frac{n_d |t|^2}{4\pi A} |\boldsymbol{\epsilon}_{out}^* \cdot \boldsymbol{\epsilon}_{in}|^2 \int_{\text{slab}} d\mathbf{r} e^{-z/\ell} e^{-z/\mu\ell} \quad (6.10)$$

(avec $\mu = \cos(\theta)$) qui mène au résultat $(3/4)|\boldsymbol{\epsilon}_{out}^* \cdot \boldsymbol{\epsilon}_{in}|^2$ pour $\theta \ll 1$. Dans le cas des atomes, le facteur $|t|^2 |\boldsymbol{\epsilon}_{out}^* \cdot \boldsymbol{\epsilon}_{in}|^2$ doit être remplacé par l'intensité de diffusion simple calculée précédemment. A partir de la définition du coefficient bistatique (éq. (4.1)), on voit qu'il faut faire la substitution :

$$|t|^2 |\boldsymbol{\epsilon}_{out}^* \cdot \boldsymbol{\epsilon}_{in}|^2 \rightarrow (4\pi)^2 \left\langle \frac{d\sigma}{d\Omega}(\boldsymbol{\epsilon}_{out}, \boldsymbol{\epsilon}_{in}) \right\rangle_m \quad (6.11)$$

où $\langle d\sigma/d\Omega(\boldsymbol{\epsilon}_{out}, \boldsymbol{\epsilon}_{in}) \rangle_m$ est la section efficace de diffusion simple par un atome, moyennée sur l'état interne de celui-ci, avec l'expression (cf. équation (5.43)) :

$$\left\langle \frac{d\sigma}{d\Omega}(\boldsymbol{\epsilon}_{out}, \boldsymbol{\epsilon}_{in}) \right\rangle_m = \frac{9}{16\pi^2} \lambda_L^2 \frac{\Gamma^2/4}{\delta^2 + \Gamma^2/4} \frac{1}{2J+1} \sum_{m=-J}^J \langle m | (\mathbf{d}' \cdot \boldsymbol{\epsilon}_{in}^*) (\mathbf{d}' \cdot \boldsymbol{\epsilon}_{out}) (\mathbf{d}' \cdot \boldsymbol{\epsilon}_{out}^*) (\mathbf{d}' \cdot \boldsymbol{\epsilon}_{in}) | m \rangle \quad (6.12)$$

L'intégrale de (6.10) est identique à celle pour des diffuseurs ponctuels scalaires, et donne $Al/2$ pour $\theta \ll 1$. $\gamma^{(1)}$ s'exprime simplement en introduisant la section

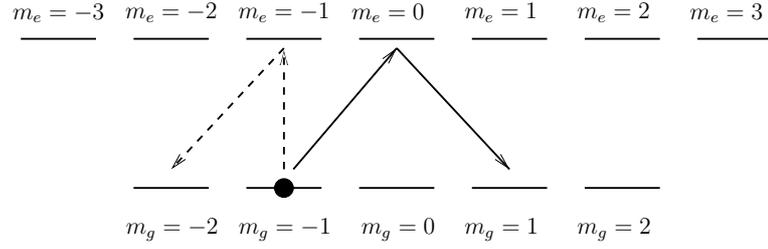


FIG. 6.4 – Exemples de transitions atomiques contribuant à l'intensité de diffusion simple à rétrodiffusion dans les canaux $lin \perp lin$ (en pointillé, $|\Delta m| = 1$), et $h \parallel h$ (en trait plein, $|\Delta m| = 2$).

efficace totale moyennée sur l'état interne (voir équation (5.49)) :

$$\begin{aligned} \langle \sigma \rangle_m &= \frac{1}{2J+1} \sum_{m=-J}^J \frac{3\lambda_L^2}{2\pi} \frac{\Gamma^2/4}{\delta^2 + \Gamma^2/4} \langle m | (\mathbf{d} \cdot \boldsymbol{\epsilon}_{in}^*) (\mathbf{d} \cdot \boldsymbol{\epsilon}_{in}) | m \rangle \\ &= \frac{3\lambda_L^2}{2\pi} \frac{\Gamma^2/4}{\delta^2 + \Gamma^2/4} \frac{F(J)}{2J+1} \end{aligned} \quad (6.13)$$

où $F(J)$ est la somme sur m de l'élément de matrice. On montre, à partir de l'expression des coefficients de Clebsch-Gordan $C(m, m) = \langle J, 1; m, 0 | J_e, m \rangle$ que l'on a :

$$F(J) = \frac{2J_e + 1}{3} \quad (6.14)$$

où J_e vaut J , $J-1$ ou $J+1$ suivant la transition atomique considérée. En utilisant $n_d \langle \sigma \rangle_m \ell = 1$, le coefficient bistatique pour la diffusion simple s'écrit finalement, pour $\theta \ll 1$:

$$\gamma^{(1)} = \frac{3}{4} \frac{1}{F(J)} \sum_{m=-J}^J \langle m | (\mathbf{d}' \cdot \boldsymbol{\epsilon}_{in}^*) (\mathbf{d}' \cdot \boldsymbol{\epsilon}_{out}) (\mathbf{d}' \cdot \boldsymbol{\epsilon}_{out}^*) (\mathbf{d}' \cdot \boldsymbol{\epsilon}_{in}) | m \rangle \quad (6.15)$$

Dans le cas d'une transition $J = 0 \rightarrow J_e = 1$, on a $F(J) = 1$, l'élément de matrice donne $|\boldsymbol{\epsilon}_{out}^* \cdot \boldsymbol{\epsilon}_{in}|^2$, et on retrouve bien le résultat obtenu pour les diffuseurs dipolaires.

Dans le cas général ($J \neq 0$), cette expression présente une différence essentielle avec le cas des diffuseurs dipolaires : à rétrodiffusion, l'intensité de diffusion simple est non-nulle dans tous les canaux de polarisation, alors qu'elle est nulle pour des diffuseurs dipolaires dans les canaux $lin \perp lin$ et $h \parallel h$. L'atome peut émettre à rétrodiffusion dans les canaux $lin \perp lin$ et $h \parallel h$ en changeant d'état interne : l'intensité émise dans le canal $lin \perp lin$ à rétrodiffusion s'accompagne d'un changement $|\Delta m| = 1$, et celle dans le canal $h \parallel h$ d'un changement $|\Delta m| = 2$ (voir figure 6.4).

Résultats pour la transition $J = 3 \rightarrow J_e = 4$

La transition atomique utilisée dans l'expérience de Nice est la transition $J = 3 \rightarrow J_e = 4$ (dans l'expérience, c'est une transition entre niveaux hyperfins). Il est donc intéressant de calculer les valeurs pour cette transition. A partir de l'expression (6.15), le résultat s'obtient en spécifiant les polarisations ϵ_{in} et ϵ_{out} (c'est-à-dire le canal de polarisation), et en faisant agir les opérateurs \mathbf{d}' , ce qui conduit à une expression en termes de coefficients de Clebsch-Gordan. Les résultats sont :

$lin \parallel lin : \gamma^{(1)} = \frac{1}{4} \frac{78}{56} \simeq 0,348$	$lin \perp lin : \gamma^{(1)} = \frac{1}{4} \frac{45}{56} \simeq 0,200$	(6.16)
$h \parallel h : \gamma^{(1)} = \frac{1}{4} \frac{9}{56} \simeq 0,040$	$h \perp h : \gamma^{(1)} = \frac{1}{4} \frac{114}{56} \simeq 0,509$	

Rappelons que pour les diffuseurs dipolaires (et également pour une transition $J = 0 \rightarrow J_e = 1$), on a le résultat $\gamma^{(1)} = 3/4$ en $lin \parallel lin$ et $h \perp h$, et $\gamma^{(1)} = 0$ en $lin \perp lin$ et $h \parallel h$. Comme annoncé, la structure interne permet donc d'obtenir un signal de diffusion simple à rétrodiffusion dans les canaux où celui-ci est nul pour des diffuseurs dipolaires.

Notons également que ces valeurs obéissent à une règle de somme, qui s'écrit :

$$(\gamma^{(1)})_{lin \parallel lin} + (\gamma^{(1)})_{lin \perp lin} = (\gamma^{(1)})_{h \parallel h} + (\gamma^{(1)})_{h \perp h} \quad (6.17)$$

Cette égalité exprime simplement que l'intensité non-polarisée de diffusion simple à rétrodiffusion est indépendante de la polarisation incidente (ici, linéaire ou circulaire). Elle découle du fait que l'on a supposé que les atomes sont non polarisés : un atome non polarisé a la même section efficace totale quelle que soit la polarisation incidente. Il existe une telle règle de somme pour l'intensité incohérente à chaque ordre de diffusion.

6.7.4 Calcul de la diffusion double

Comme pour la diffusion simple, le coefficient bistatique pour l'intensité de diffusion double s'obtient à partir de formules similaires à celles pour les diffuseurs ponctuels dipolaires, en introduisant la section efficace de diffusion double par deux atomes moyennée sur l'état interne de ceux-ci. Pour l'intensité incohérente, on a (avec $\mu = \cos \theta \simeq 1$) :

$$\gamma_L^{(2)} = \frac{4\pi}{A} n_d^2 \frac{1}{2} \iint d\mathbf{r}_1 d\mathbf{r}_2 e^{-z_1/\ell} e^{-z_2/\ell} \left\langle \frac{d\sigma}{d\Omega} \right\rangle_m e^{-r_{12}/\ell} \quad (6.18)$$

La section efficace se déduit directement de l'expression de l'intensité donnée par l'équation (5.73). Elle s'exprime simplement en terme de $\langle \sigma \rangle_m$, la section efficace

totale moyenne rayonnée par un atome (éq. (6.13)). On a l'expression :

$$\begin{aligned} \left\langle \frac{d\sigma}{d\Omega} \right\rangle_m &= \frac{1}{r_{12}^2} \left(\frac{3}{8\pi} \right)^2 (\langle \sigma \rangle_m)^2 \frac{1}{F(J)^2} \sum_{m_1=-J}^J \sum_{m_2=-J}^J \\ &\left\{ \langle m_1, m_2 | (\boldsymbol{\epsilon}_{in}^* \cdot \mathbf{d}'_1) (\mathbf{d}'_2 \cdot \boldsymbol{\Delta}_{12} \cdot \mathbf{d}'_1) (\boldsymbol{\epsilon}_{out} \cdot \mathbf{d}'_2) (\boldsymbol{\epsilon}_{out}^* \cdot \mathbf{d}'_2) (\mathbf{d}'_2 \cdot \boldsymbol{\Delta}_{12} \cdot \mathbf{d}'_1) (\boldsymbol{\epsilon}_{in} \cdot \mathbf{d}'_1) | m_1, m_2 \rangle + \right. \\ &\left. \langle m_1, m_2 | (\boldsymbol{\epsilon}_{in}^* \cdot \mathbf{d}'_2) (\mathbf{d}'_1 \cdot \boldsymbol{\Delta}_{12} \cdot \mathbf{d}'_2) (\boldsymbol{\epsilon}_{out} \cdot \mathbf{d}'_1) (\boldsymbol{\epsilon}_{out}^* \cdot \mathbf{d}'_1) (\mathbf{d}'_1 \cdot \boldsymbol{\Delta}_{12} \cdot \mathbf{d}'_2) (\boldsymbol{\epsilon}_{in} \cdot \mathbf{d}'_2) | m_1, m_2 \rangle \right\} \end{aligned} \quad (6.19)$$

Le facteur (1/2) apparaissant dans l'équation (6.18) permet d'éviter un double comptage des configurations. On peut s'en débarrasser ici en ne conservant qu'un seul élément de matrice de (6.19) (les deux éléments étant égaux quand on prend la moyenne sur (m_1, m_2)). L'intégrale se fait comme pour les diffuseurs ponctuels scalaires ou dipolaires, et on aboutit à :

$$\begin{aligned} \gamma_L^{(2)} &= \frac{9}{16\pi} \frac{1}{F(J)^2} \frac{1}{2} \int_0^{2\pi} d\phi_{12} \int_{-1}^1 d(\cos \theta_{12}) \frac{1}{1 + |\cos \theta_{12}|} \sum_{m_1=-J}^J \sum_{m_2=-J}^J \\ &\langle m_1, m_2 | (\boldsymbol{\epsilon}_{in}^* \cdot \mathbf{d}'_1) (\mathbf{d}'_2 \cdot \boldsymbol{\Delta}_{12} \cdot \mathbf{d}'_1) (\boldsymbol{\epsilon}_{out} \cdot \mathbf{d}'_2) (\boldsymbol{\epsilon}_{out}^* \cdot \mathbf{d}'_2) (\mathbf{d}'_2 \cdot \boldsymbol{\Delta}_{12} \cdot \mathbf{d}'_1) (\boldsymbol{\epsilon}_{in} \cdot \mathbf{d}'_1) | m_1, m_2 \rangle \end{aligned} \quad (6.20)$$

La procédure pour obtenir le coefficient bistatique pour l'intensité due à l'interférence, $\gamma_C^{(2)}$, est similaire. La formule donnant $\gamma_C^{(2)}$ est la même que l'équation (6.18), dans laquelle la section efficace s'obtient maintenant à partir de l'intensité de diffusion double pour deux atomes due à l'interférence (éq. (5.81)). Elle a pour expression :

$$\begin{aligned} \left\langle \frac{d\sigma}{d\Omega} \right\rangle_m &= \frac{1}{r_{12}^2} \left(\frac{3}{8\pi} \right)^2 (\langle \sigma \rangle_m)^2 \frac{1}{F(J)^2} \sum_{m_1=-J}^J \sum_{m_2=-J}^J \\ &\left\{ e^{i(\mathbf{k}_{in} + \mathbf{k}_{out}) \cdot (\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2)} \langle m_1, m_2 | (\boldsymbol{\epsilon}_{in}^* \cdot \mathbf{d}'_2) (\mathbf{d}'_1 \cdot \boldsymbol{\Delta}_{12} \cdot \mathbf{d}'_2) (\boldsymbol{\epsilon}_{out} \cdot \mathbf{d}'_1) \right. \\ &\quad (\boldsymbol{\epsilon}_{out}^* \cdot \mathbf{d}'_2) (\mathbf{d}'_2 \cdot \boldsymbol{\Delta}_{12} \cdot \mathbf{d}'_1) (\boldsymbol{\epsilon}_{in} \cdot \mathbf{d}'_1) | m_1, m_2 \rangle + \\ &\quad e^{-i(\mathbf{k}_{in} + \mathbf{k}_{out}) \cdot (\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2)} \langle m_1, m_2 | (\boldsymbol{\epsilon}_{in}^* \cdot \mathbf{d}'_1) (\mathbf{d}'_2 \cdot \boldsymbol{\Delta}_{12} \cdot \mathbf{d}'_1) (\boldsymbol{\epsilon}_{out} \cdot \mathbf{d}'_2) \\ &\quad \left. (\boldsymbol{\epsilon}_{out}^* \cdot \mathbf{d}'_1) (\mathbf{d}'_1 \cdot \boldsymbol{\Delta}_{12} \cdot \mathbf{d}'_2) (\boldsymbol{\epsilon}_{in} \cdot \mathbf{d}'_2) | m_1, m_2 \rangle \right\} \end{aligned} \quad (6.21)$$

Quand on somme sur (m_1, m_2) , les deux éléments de matrice sont égaux et réels. Les phases donnent donc le terme $\cos((\mathbf{k}_{in} + \mathbf{k}_{out}) \cdot (\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2))$, comme pour les diffuseurs ponctuels scalaires ou dipolaires. On aboutit ainsi à l'expression (pour

$\theta \ll 1$) :

$$\gamma_C^{(2)}(\theta) = \frac{9}{16\pi} \frac{1}{F(J)^2} \frac{1}{2} \int_0^{2\pi} d\phi_{12} \int_{-1}^1 d(\cos \theta_{12}) \left[\frac{1 + |\cos \theta_{12}|}{(1 + |\cos \theta_{12}|)^2 + (k\ell\theta)^2 \cos(\phi_{12})^2 (1 - \cos(\theta_{12}))^2} \sum_{m_1=-J}^J \sum_{m_2=-J}^J \langle m_1, m_2 | (\boldsymbol{\epsilon}_{in}^* \cdot \mathbf{d}'_2) (\mathbf{d}'_1 \cdot \boldsymbol{\Delta}_{12} \cdot \mathbf{d}'_2) (\boldsymbol{\epsilon}_{out} \cdot \mathbf{d}'_1) (\boldsymbol{\epsilon}_{out}^* \cdot \mathbf{d}'_2) (\mathbf{d}'_2 \cdot \boldsymbol{\Delta}_{12} \cdot \mathbf{d}'_1) (\boldsymbol{\epsilon}_{in} \cdot \mathbf{d}'_1) | m_1, m_2 \rangle \right] \quad (6.22)$$

Comme pour les diffuseurs dipolaires, $\gamma_C^{(2)}(\theta)$ dépend de la direction de $(\mathbf{k}_{in} + \mathbf{k}_{out})$ dans le plan transverse pour les canaux de polarisation linéaires.

En prenant une transition $J = 0 \rightarrow J_e = 1$ ($F(J) = 1$), les éléments de matrice de (6.20) et (6.22) se réduisent à $|\boldsymbol{\epsilon}_{out}^* \cdot \boldsymbol{\Delta}_{12} \cdot \boldsymbol{\epsilon}_{in}|^2$, et on retrouve les expressions (4.51) et (4.52) concernant les diffuseurs ponctuels dipolaires. Dans le cas général ($J \neq 0$), les résultats s'obtiennent en évaluant la somme des éléments de matrice et en intégrant. La somme sur (m_1, m_2) de l'élément de matrice de (6.20) ou (6.22) s'exprime en fonction de coefficients de Clebsch-Gordan (qui résultent de l'action de \mathbf{d}'_1 et \mathbf{d}'_2), et de $\hat{\mathbf{r}}_{12}$ (donc de ϕ_{12} et θ_{12}).

Résultats pour la transition $J = 3 \rightarrow J_e = 4$

Nous nous intéressons à nouveau à la transition $J = 3 \rightarrow J_e = 4$, qui est celle utilisée expérimentalement. Le résultat du calcul explicite de $\gamma_L^{(2)}$ et $\gamma_C^{(2)}(\theta)$ est montré sur la figure 6.5 pour les quatre canaux de polarisation (cette figure est l'équivalent pour la transition $J = 3 \rightarrow J_e = 4$ de la figure 4.10 qui concernait des diffuseurs dipolaires (ou encore la transition $0 \rightarrow 1$)). Comme dans la figure 4.10, l'intensité incohérente $\gamma_L^{(2)}$ a été normalisée à 1 dans chaque canal. Les valeurs non normalisées sont :

$lin \parallel lin : \gamma_L^{(2)} = 0,179$	$lin \perp lin : \gamma_L^{(2)} = 0,167$	(6.23)
$h \parallel h : \gamma_L^{(2)} = 0,131$	$h \perp h : \gamma_L^{(2)} = 0,215$	

On voit sur ces valeurs que la structure interne atomique tend à égaliser l'intensité incohérente de diffusion double dans les différents canaux de polarisation, par rapport au cas des diffuseurs dipolaires (où l'on avait une intensité très faible en $lin \perp lin$ par exemple). Le milieu atomique dépolarise donc plus efficacement que des diffuseurs dipolaires. On note également que l'on a, à nouveau, une règle de somme, équivalente à la relation (6.17) :

$$\left(\gamma_L^{(2)}\right)_{lin \parallel lin} + \left(\gamma_L^{(2)}\right)_{lin \perp lin} = \left(\gamma_L^{(2)}\right)_{h \parallel h} + \left(\gamma_L^{(2)}\right)_{h \perp h} \quad (6.24)$$

Le point essentiel apparaissant sur la figure 6.5 est, pour chaque courbe, le facteur d'augmentation. On voit qu'il est inférieur à 2 dans chaque canal. Les valeurs précises des facteurs d'augmentation sont les suivantes :

$lin \parallel lin : 1,599$	$lin \perp lin : 1,449$
$h \parallel h : 1,217$	$h \perp h : 1,715$

(6.25)

Cette baisse du facteur d'augmentation par rapport au cas des diffuseurs dipolaires (c'est-à-dire d'une transition $J = 0 \rightarrow J_e = 1$) est entièrement due à la non égalité des amplitudes \mathcal{T}_{dir} et \mathcal{T}_{rev} des paires de chemins qui interfèrent, à cause de la structure interne atomique. On voit donc que l'effet de celle-ci est très important, le facteur d'augmentation pouvant être aussi faible que 1,22 dans le canal $h \parallel h$.

Notons que, comme le montrent les valeurs des facteurs d'augmentation, la moyenne sur l'état interne des atomes (c'est-à-dire tous les couples (m_1, m_2)) ne peut pas mener à l'égalité $\gamma_C^{(2)}(0) = \gamma_L^{(2)}$, et donc à un facteur d'augmentation égal à 2. En effet, si prendre la moyenne permet éventuellement de faire contribuer certains chemins pour lesquels les amplitudes \mathcal{T}_{dir} et \mathcal{T}_{rev} sont égales, et pour lesquels on a donc un facteur d'augmentation optimal (égal à 2), ceci ne peut pas compenser la contribution de tous les autres chemins pour lesquels les amplitudes \mathcal{T}_{dir} et \mathcal{T}_{rev} ne sont pas égales. La seule manière d'obtenir un facteur d'augmentation égal à 2 en moyenne est d'avoir l'égalité des amplitudes qui interfèrent pour **tous** les chemins qui contribuent, ce qui, comme nous l'avons vu, n'est pas le cas.

Concernant l'allure des courbes, on voit que celles-ci sont très similaires au cas des diffuseurs dipolaires (figure 4.10). A nouveau, les courbes tiretées dans les canaux linéaires représentent des *scans* non parallèles (*scan* \perp en $lin \parallel lin$; *scan* à $\pi/4$ en $lin \perp lin$).

Facteurs d'augmentation pour d'autres transitions - Coefficients de Clebsch-Gordan

A partir des expressions données plus haut, il est bien sûr possible de calculer les facteurs d'augmentation de diffusion double pour n'importe quelle transition atomique $J \rightarrow J_e$. Les résultats obtenus sont très différents suivant le type de transition considérée : $J \rightarrow J + 1$, $J \rightarrow J$ ou $J \rightarrow J - 1$. A titre d'exemple, les facteurs d'augmentation pour la transition $J = 3 \rightarrow J_e = 3$ sont :

$lin \parallel lin : 1,900$	$lin \perp lin : 1,189$
$h \parallel h : 1,857$	$h \perp h : 1,327$

(6.26)

L'ordre des facteurs d'augmentation dans les différents canaux est très différent de celui pour la transition $3 \rightarrow 4$: on a ici une augmentation élevée dans les canaux $lin \parallel lin$ et $h \parallel h$, et une augmentation faible en $lin \perp lin$ et $h \perp h$.

Les éléments de matrice de $\gamma_L^{(2)}$ et $\gamma_C^{(2)}(\theta)$ s'exprimant en termes de coefficients de Clebsch-Gordan, les résultats pour les différents types de transition s'expliquent

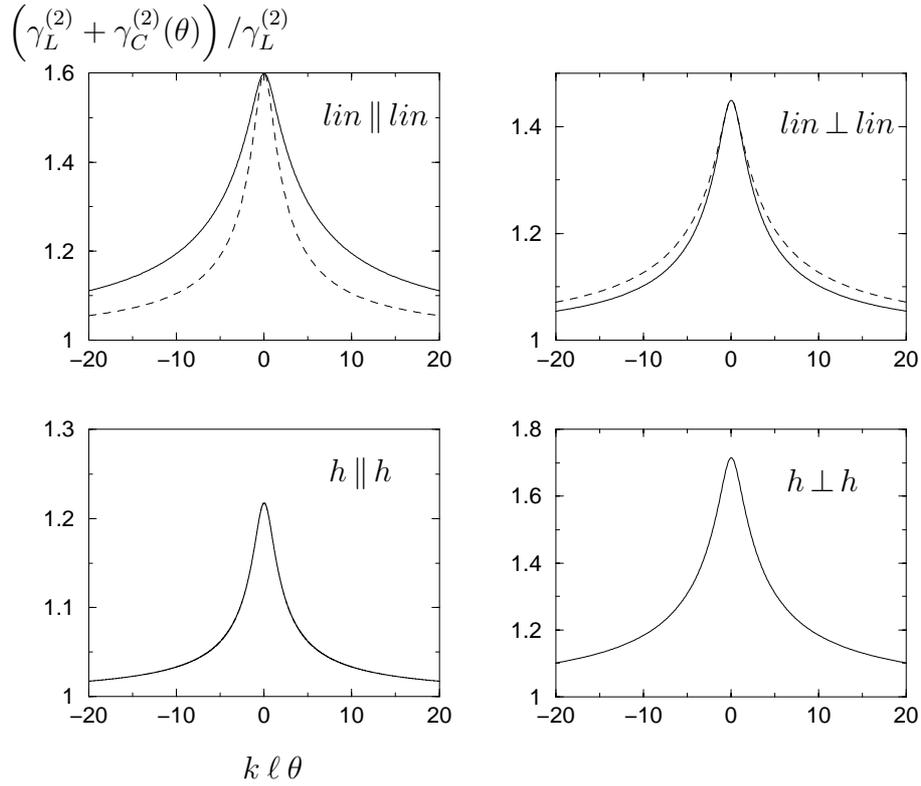


FIG. 6.5 – Courbes représentant l'intensité de diffusion double $(1 + \gamma_C^{(2)}(\theta)/\gamma_L^{(2)})$ (cf. formules (6.20) et (6.22)) sur des atomes, avec une transition $J = 3 \rightarrow J_e = 4$, en fonction de la variable réduite $k l \theta$. Les courbes en tireté dans les canaux linéaires correspondent à des choix différents de la direction de $(\mathbf{k}_{in} + \mathbf{k}_{out})$ par rapport à ϵ_{in} (perpendiculaire à ϵ_{in} en $lin \parallel lin$; à $\pi/4$ en $lin \perp lin$). Par rapport au cas des diffuseurs dipolaires (figure 4.10), on observe une diminution du facteur d'augmentation, qui est différent dans chaque canal. Cette diminution est entièrement due à la structure interne atomique.

à partir de l'allure différente des coefficients de Clebsch-Gordan pour ces transitions. Pour une transition $J \rightarrow J + 1$, le coefficient $\langle J, 1; m, +1 | J_e, m + 1 \rangle = C(m, m + 1)$ est strictement croissant avec m , le coefficient $C(m, m - 1)$ est strictement décroissant avec m , et le coefficient $C(m, m)$ est maximum pour $m = 0$ et décroît quand $|m|$ croît (on considère ici les coefficients en valeur absolue). Par contre, pour une transition $J \rightarrow J$, la dépendance en m est inversée : $C(m, m)$ est nul en $m = 0$ et croît quand $|m|$ croît, alors que $C(m, m + 1)$ est maximum en $m = 0$ et $m = 1$, et décroît quand $|m|$ augmente (et $C(m, m - 1)$ a un comportement similaire, puisqu'on a $C(m, m - 1) = C(m - 1, m)$). Les valeurs des différents coefficients de Clebsch-Gordan pour la transition $J = 3 \rightarrow J_e = 4$ et pour la transition $J = 3 \rightarrow J_e = 3$ sont montrées sur la figure 6.6.

A partir de l'allure des coefficients de Clebsch-Gordan, on peut comprendre qualitativement l'ordre observé des facteurs d'augmentation pour les différents canaux. On peut par exemple voir facilement pourquoi, pour la transition $J = 3 \rightarrow J_e = 4$, le facteur d'augmentation est faible en $h \parallel h$. Considérons pour fixer les idées que la lumière incidente a une hélicité positive. Le premier atome d'un chemin de diffusion double absorbe donc un photon en effectuant la transition $|J, m\rangle \rightarrow |J_e, m + 1\rangle$. Pour recevoir un signal dans le canal $h \parallel h$ à rétrodiffusion, le deuxième atome doit nécessairement émettre un photon via une transition $|J_e, m'\rangle \rightarrow |J, m' + 1\rangle$ (voir figure 6.7). Tous les chemins contribuant à l'intensité en $h \parallel h$ font donc intervenir les coefficients $C(m_1, m_1 + 1)$ et $C(\tilde{m}_2, \tilde{m}_2 - 1)$, où m_1 est l'état initial de l'atome 1 le long du chemin, et \tilde{m}_2 est l'état final de l'atome 2 (qui est proche de m_2 , l'état initial de l'atome 2). Comme le coefficient $C(m, m + 1)$ croît avec m , et le coefficient $C(m, m - 1)$ décroît avec m , les contributions importantes à l'intensité incohérente en $h \parallel h$ proviennent des chemins avec m_1 grand (proche de $+J$) et m_2 petit (proche de $-J$). Mais ces chemins fournissent une augmentation très faible : le chemin inverse correspondant (pour lequel les rôles des deux atomes sont inversés) a m_1 petit (proche de $-J$) et m_2 grand (proche de $+J$) et a donc une amplitude très faible. Comme le chemin direct a une amplitude importante, et le chemine inverse une amplitude faible, le contraste est faible et on a donc une augmentation faible pour ces deux chemins. Les chemins contribuant de manière importante à l'intensité incohérente fournissant une faible augmentation, on obtient donc globalement une augmentation faible dans le canal $h \parallel h$ pour la transition $J = 3 \rightarrow J_e = 4$.

Ceci est illustré sur la figure 6.8, qui montre la contribution de chaque configuration (m_1, m_2) à $\gamma_L^{(2)}$ et $\gamma_C^{(2)}(0)$. Il apparaît clairement sur cette figure que les configurations (m_1, m_2) qui contribuent le plus à l'intensité incohérente sont aussi celles qui fournissent une augmentation cohérente de rétrodiffusion très faible (on a ainsi $\gamma_C^{(2)}(0)/\gamma_L^{(2)} = 0,0044$ pour $(m_1, m_2) = (3, -3)$). Ceci explique donc le faible facteur d'augmentation observé dans ce canal pour cette transition⁴. La situation

⁴Notons que, dans les calculs donnant cette figure, l'atome 1 et l'atome 2 jouent un rôle symétrique, ce qui explique que $\gamma_L^{(2)}$ soit maximum pour m_1 grand- m_2 petit et aussi pour m_1

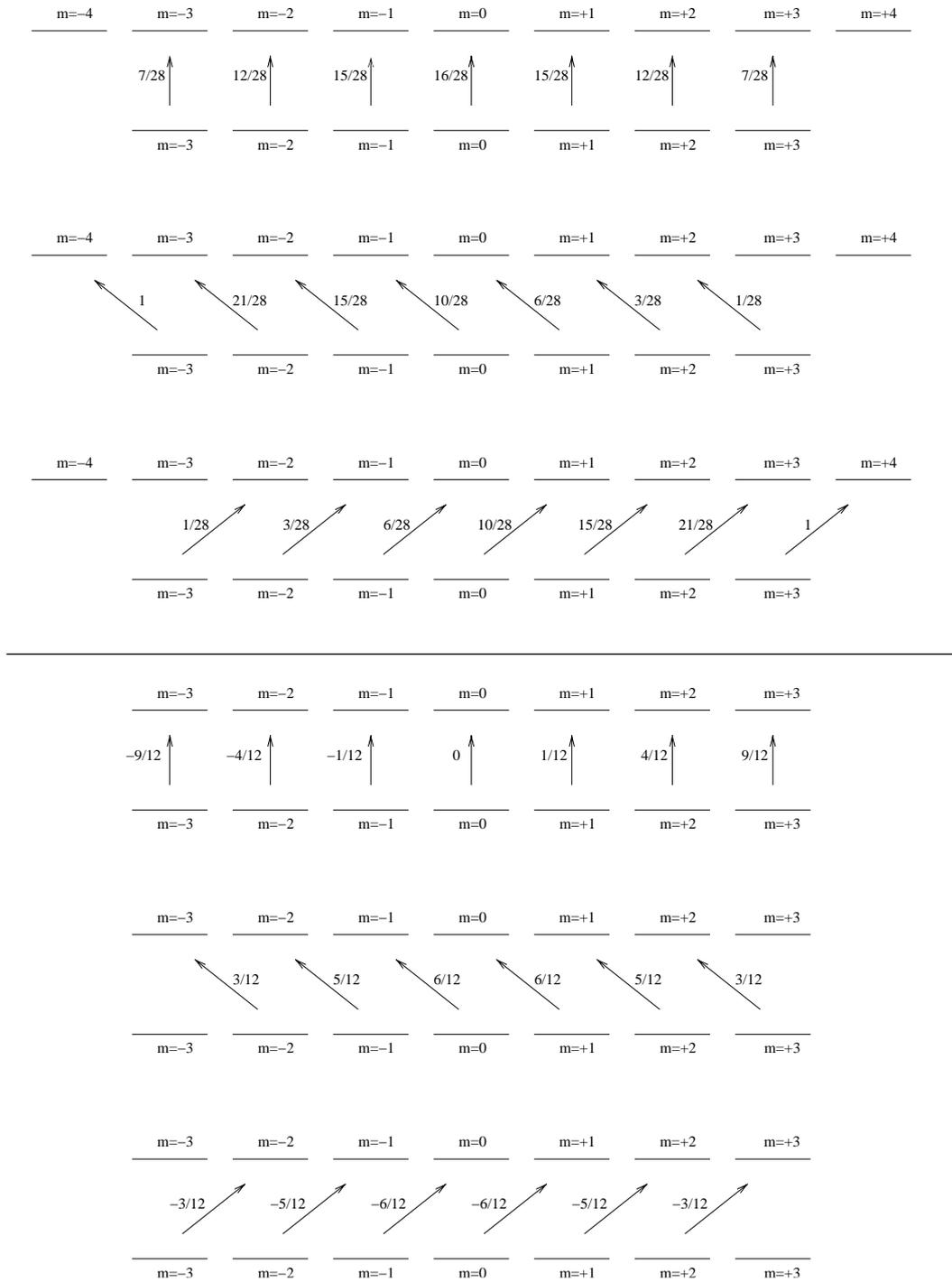


FIG. 6.6 – Carrés des coefficients de Clebsch-Gordan (le signe étant celui du coefficient lui-même) pour la transition $J = 3 \rightarrow J_e = 4$ (en haut) et pour la transition $J = 3 \rightarrow J_e = 3$ (en bas).

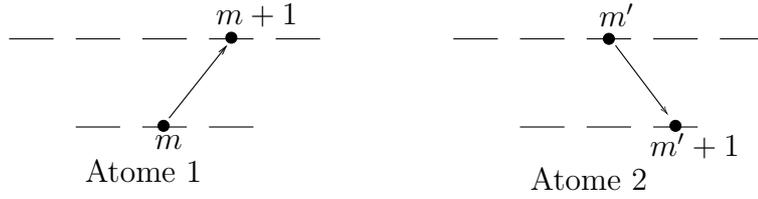


FIG. 6.7 – *Transitions communes à tous les chemins de diffusion double contribuant à l'intensité en $h \parallel h$ à rétrodiffusion. Le premier atome doit absorber un photon incident d'hélicité positive, et donc effectuer la transition $|J, m\rangle \rightarrow |J_e, m+1\rangle$. Le deuxième atome doit émettre un photon ayant l'hélicité requise à rétrodiffusion, et donc effectuer la transition $|J_e, m'\rangle \rightarrow |J, m'+1\rangle$.*

de ce canal ($h \parallel h$) est différente dans le cas de la transition $J = 3 \rightarrow J_e = 3$, ou le facteur d'augmentation obtenu est élevé (1,857). Ceci est illustré sur la figure 6.9, qui montre la contribution de chaque configuration (m_1, m_2) à $\gamma_L^{(2)}$ et $\gamma_C^{(2)}(0)$ pour cette transition atomique. On voit sur cette figure que les configurations qui contribuent le plus à l'intensité incohérente (m_1 et m_2 proches de 0) sont également celles qui fournissent la plus forte augmentation cohérente de rétrodiffusion (avec $\gamma_C^{(2)}(0)/\gamma_L^{(2)} = 0,98$ pour $(m_1, m_2) = (0, 0)$). Ceci explique le facteur d'augmentation élevé obtenu en $h \parallel h$ pour cette transition.

Le raisonnement et les figures montrés ici dans le canal $h \parallel h$ se généralisent bien sûr aux autres canaux de polarisation, et pour d'autres transitions atomiques.

6.7.5 Facteurs d'augmentation incluant la diffusion simple

Les facteurs d'augmentation donnés ci-dessus concernent uniquement la diffusion double. Leur intérêt est de mettre clairement en évidence la diminution de l'augmentation due à la structure interne atomique. Toutefois, il est expérimentalement impossible de se limiter à la diffusion double : l'intensité reçue comporte nécessairement les contributions de la diffusion simple et des ordres de diffusion plus élevés.

Nous oublierons ici les ordres de diffusion plus élevés (c'est une approximation assez grossière, mais pas déraisonnable quand l'épaisseur optique du milieu diffusant n'est pas très grande), en ne conservant que la diffusion simple et double. Puisque le coefficient bistatique pour la diffusion simple, $\gamma^{(1)}$, est indépendant de θ à l'échelle $1/(k\ell)$, l'effet de la diffusion simple sur les courbes données figure 6.5 est simplement d'augmenter l'intensité incohérente. L'ajout de la diffusion simple diminue donc les facteurs d'augmentation sans modifier la forme des courbes. A partir des valeurs obtenues précédemment pour $\gamma^{(1)}$, $\gamma_L^{(2)}$ et $\gamma_C^{(2)}(\theta)$, on calcule aisément le facteur d'augmentation α_2 pour la diffusion simple et double, qui s'ex-

petit- m_2 grand ; alors que dans l'argument donné précédemment, nous avons arbitrairement fixé l'ordre "atome 1 puis atome 2" pour la diffusion.

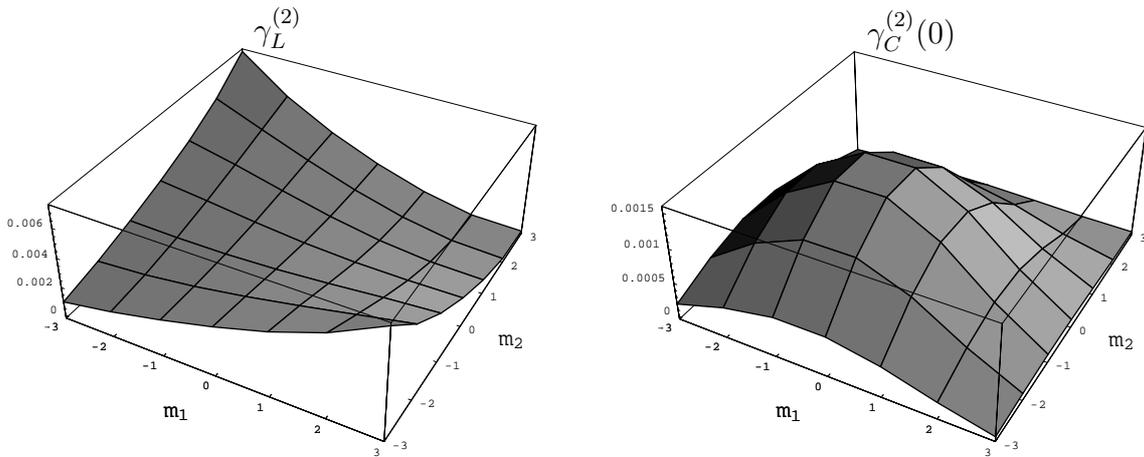


FIG. 6.8 – Surfaces donnant la contribution de chaque configuration (m_1, m_2) aux coefficients bistatiques $\gamma_L^{(2)}$ et $\gamma_C^{(2)}(0)$, dans le canal $h \parallel h$, pour la transition atomique $J = 3 \rightarrow J_e = 4$. On voit que les configurations qui contribuent de manière importante à $\gamma_L^{(2)}$ (m_1 grand et m_2 petit, ou l'inverse) fournissent une augmentation cohérente très faible ($\gamma_C^{(2)}(0)$ étant maximum pour m_1 et m_2 proches de 0), ce qui explique le faible facteur d'augmentation observé dans ce canal.

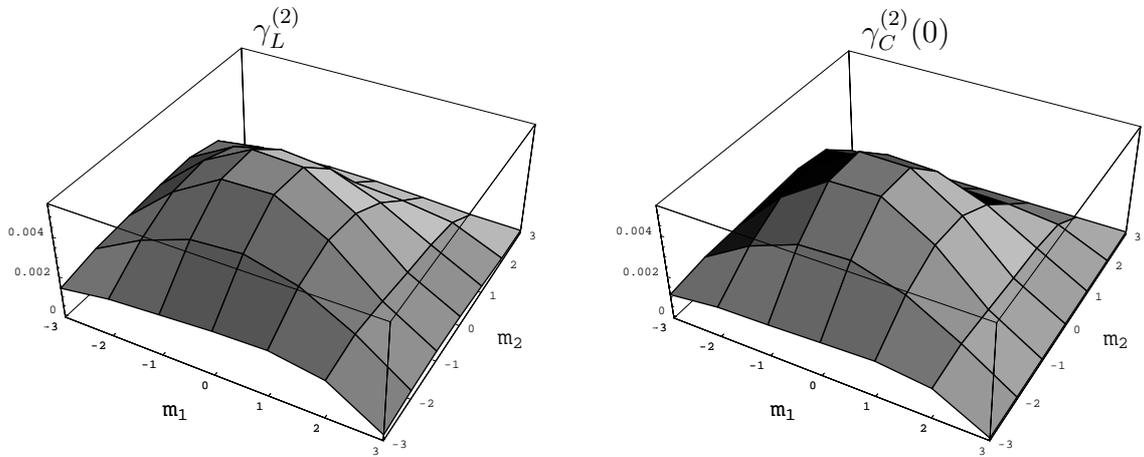


FIG. 6.9 – Surfaces donnant la contribution de chaque configuration (m_1, m_2) aux coefficients bistatiques $\gamma_L^{(2)}$ et $\gamma_C^{(2)}(0)$, dans le canal $h \parallel h$, pour la transition atomique $J = 3 \rightarrow J_e = 3$. A l'inverse du cas $J_g = 3 \rightarrow J_e = 4$, on voit ici que les configurations où l'augmentation cohérente est la plus forte ($\gamma_C^{(2)}(0)$ est maximum pour m_1 et m_2 proches de 0) correspondent également aux configurations contribuant le plus à l'intensité incohérente $\gamma_L^{(2)}$. Ceci explique le facteur d'augmentation élevé (1,857) observé dans ce canal pour cette transition atomique.

prime par :

$$\alpha_2 = 1 + \frac{\gamma_C^{(2)}(0)}{\gamma^{(1)} + \gamma_L^{(2)} + \gamma_C^{(2)}(0)} \quad (6.27)$$

Les valeurs de α_2 , ainsi que celle de $\gamma^{(1)}$, $\gamma_L^{(2)}$ et $\gamma_C^{(2)}(0)$ sont données dans le tableau 6.1. Le rapport $1 + \gamma_C^{(2)}(0)/\gamma_L^{(2)}$ qui fournit le facteur d'augmentation sans la diffusion simple, est également donné. On voit avec ces valeurs que l'inclusion de la diffusion simple diminue fortement le facteur d'augmentation. De plus, comme la diffusion simple est importante dans les canaux où $\gamma_C^{(2)}(0)/\gamma_L^{(2)}$ est élevé, on obtient quatre facteurs d'augmentation assez proches, aux alentours de 1,2. Remarquons que ces valeurs sont du même ordre que les valeurs expérimentales (montrées également dans le tableau 6.1).

Le fait que les valeurs calculées de α_2 sont proches des valeurs expérimentales montre que les calculs présentés ici rendent bien compte du mécanisme menant à la diminution du facteur d'augmentation. Il est important de noter qu'il y a deux effets distincts, d'importance comparable, qui mènent aux facteurs d'augmentation observés. D'une part, l'inégalité des amplitudes \mathcal{T}_{dir} et \mathcal{T}_{rev} qui interfèrent, dont l'effet est clairement visible sur les valeurs du facteur d'augmentation pour la diffusion double uniquement (c'est-à-dire $1 + \gamma_C^{(2)}(0)/\gamma_L^{(2)}$). D'autre part, la contribution de la diffusion simple, qui augmente le fond d'intensité incohérente, et diminue donc le facteur d'augmentation. Ces deux effets doivent nécessairement être pris en compte pour s'approcher des valeurs expérimentales, les contributions relatives des deux effets à la diminution du facteur d'augmentation dépendant du canal de polarisation considéré. Dans les canaux $h \perp h$ et $lin \parallel lin$, l'inégalité des amplitudes qui interfèrent n'est pas trop importante (facteurs d'augmentation pour la diffusion double uniquement de 1,72 et 1,60), mais la contribution de la diffusion simple est très importante et diminue fortement le facteur d'augmentation. A l'opposé, dans le canal $h \parallel h$, la contribution de la diffusion simple est très faible, mais l'effet de l'inégalité des amplitudes qui interfèrent est très important (facteur d'augmentation pour la diffusion double uniquement de 1,22). Enfin, pour le canal $lin \perp lin$, les deux effets contribuent de manière similaire à la réduction du facteur d'augmentation.

Notons enfin que le calcul de l'intensité pour un *slab*, limité à la diffusion double, ne prétend bien sûr pas reproduire précisément les valeurs expérimentales, qui sont obtenues pour un milieu de géométrie plutôt sphérique (un nuage d'atomes), et dans lesquelles les ordres de diffusion supérieurs interviennent.

	$\gamma^{(1)}$	$\gamma_L^{(2)}$	$\gamma_C^{(2)}(0)$	$1 + (\gamma_C^{(2)}(0)/\gamma_L^{(2)})$	α_2	valeurs expérimentales
$h \perp h$	0,509	0,215	0,154	1,72	1,21	1,20
$lin \parallel lin$	0,348	0,179	0,108	1,60	1,20	1,15
$lin \perp lin$	0,200	0,167	0,075	1,44	1,20	1,12
$h \parallel h$	0,040	0,131	0,028	1,22	1,17	1,06

TAB. 6.1 – Valeurs du facteur d’augmentation pour la diffusion simple et double, α_2 (équation (6.27)), ainsi que les valeurs des coefficients bistatiques pour la diffusion simple ($\gamma^{(1)}$) et la diffusion double ($\gamma_L^{(2)}$ et $\gamma_C^{(2)}(0)$), et le rapport $1 + \gamma_C^{(2)}(0)/\gamma_L^{(2)}$, dans les quatre canaux de polarisation. On voit que la contribution de la diffusion simple diminue fortement le facteur d’augmentation. A titre indicatif, les valeurs expérimentales obtenues pour le facteur d’augmentation dans l’expérience de Nice sont également données.

6.8 Interprétation en termes du tenseur de diffusion pour une transition atomique

6.8.1 Définition du tenseur de diffusion pour une transition atomique

Pour obtenir un point de vue différent sur la réduction de l’augmentation de rétrodiffusion à cause de la structure interne atomique, il est utile d’introduire le tenseur de diffusion pour une transition atomique, qui généralise l’expression (4.36) concernant un diffuseur dipolaire. Notons que, s’il est possible de caractériser la diffusion par une transition atomique donnée avec un tenseur de diffusion, il n’est pas possible de caractériser un atome avec un tel tenseur de diffusion. La diffusion sur un atome est donc un processus plus complexe que celle sur un diffuseur classique.

L’amplitude de diffusion simple par un atome en \mathbf{r}_0 effectuant la transition $m_i \rightarrow m_f$ (voir équation (5.28)) s’exprime simplement à partir du tenseur [86, 93] :

$$\mathbf{t}(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; \omega) = t(\omega) \hat{\mathbf{t}}(m_f, m_i) \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_0) \delta(\mathbf{r}' - \mathbf{r}_0) \quad (6.28)$$

avec

$$t(\omega) = \frac{(g_\omega d)^2}{\hbar(\delta + i\Gamma/2)} = \frac{(g_\omega d)^2}{\hbar(\omega - \omega_0 + i\Gamma/2)} \quad (6.29)$$

et où $\hat{\mathbf{t}}(m_f, m_i)$ est une matrice 3x3 agissant dans l’espace des polarisations, avec :

$$\boldsymbol{\epsilon}_{out}^* \cdot \hat{\mathbf{t}}(m_f, m_i) \cdot \boldsymbol{\epsilon}_{in} = \langle m_f | (\boldsymbol{\epsilon}_{out}^* \cdot \mathbf{d}') (\mathbf{d}' \cdot \boldsymbol{\epsilon}_{in}) | m_i \rangle \quad (6.30)$$

Comme pour un diffuseur dipolaire ponctuel, les deux fonctions δ rendent compte du caractère ponctuel du diffuseur (ici, l’atome), et $t(\omega)$ a un comportement

résonant autour ω_0 . La différence essentielle par rapport à un diffuseur dipolaire est dans le tenseur $\hat{\mathbf{t}}(m_f, m_i)$ - pour un diffuseur dipolaire, on a simplement la matrice unité. Il possède en général une partie antisymétrique, qui est toujours absente pour un diffuseur classique (c'est évidemment vrai pour un diffuseur dipolaire, puisqu'on a la matrice unité, mais c'est également vrai pour un diffuseur non sphérique, pour lequel le tenseur ne comporte, en plus d'une partie scalaire, qu'une partie symétrique). Si l'on considère par exemple le tenseur $\hat{\mathbf{t}}(m, m)$ associé à une diffusion Rayleigh (pas de changement d'état interne), on a :

$$\hat{\mathbf{t}}_{xy}(m, m) = \langle m | d_x d_y | m \rangle = \frac{i}{2} (C(m, m-1)^2 - C(m, m+1)^2) \quad (6.31)$$

$$\hat{\mathbf{t}}_{yx}(m, m) = \langle m | d_y d_x | m \rangle = \frac{-i}{2} (C(m, m-1)^2 - C(m, m+1)^2) \quad (6.32)$$

($C(m, m\pm 1)$ est le coefficient de Clebsch-Gordan $\langle J_e, m\pm 1 | J, 1; m, \pm 1 \rangle$). Le tenseur $\hat{\mathbf{t}}(m, m)$ a donc clairement une partie antisymétrique, qui découle ici de l'inégalité entre les coefficients de Clebsch-Gordan décrivant les transitions $|J, m\rangle \rightarrow |J_e, m+1\rangle$ et $|J, m\rangle \rightarrow |J_e, m-1\rangle$. C'est, d'une manière plus générale, parce que les différentes polarisations incidentes sont diffusées de manière différente dans la transition $m \rightarrow m'$ que le tenseur $\hat{\mathbf{t}}(m, m')$ possède une partie antisymétrique.

Une situation similaire est obtenue avec des diffuseurs classiques lorsque l'on applique un champ magnétique extérieur [94, 95]. Dans ce cas, l'effet Faraday se traduit par une partie antisymétrique dans le tenseur de diffusion, qui dépend à la fois de la direction du champ magnétique et de la direction de propagation. Dans le cas des atomes, la partie antisymétrique du tenseur de diffusion est, pour chaque transition atomique, une propriété intrinsèque de l'atome, indépendante de la direction de propagation, et présente en l'absence de champ magnétique extérieur.

6.8.2 Antisymétrie du tenseur de diffusion et diminution de l'augmentation de rétrodiffusion

L'antisymétrie du tenseur de diffusion nous permet de comprendre simplement l'inégalité des amplitudes des chemins direct et inverse qui interfèrent à rétrodiffusion. En termes du tenseur $\hat{\mathbf{t}}(m_i, m_f)$, les amplitudes \mathcal{T}_{dir} et \mathcal{T}_{rev} introduites précédemment (équations (6.1) et (6.2)) s'écrivent :

$$\begin{aligned} \mathcal{T}_{\text{dir}}(m_1, m_2 \rightarrow m'_1, m'_2) &= e^{i(\mathbf{k}_{in} \cdot \mathbf{r}_1 - \mathbf{k}_{out} \cdot \mathbf{r}_2)} \\ &\quad \boldsymbol{\epsilon}_{out}^* \cdot \hat{\mathbf{t}}_2(m'_2, m_2) \cdot \Delta_{12} \cdot \hat{\mathbf{t}}_1(m'_1, m_1) \cdot \boldsymbol{\epsilon}_{in} \end{aligned} \quad (6.33)$$

$$\begin{aligned} \mathcal{T}_{\text{rev}}(m_1, m_2 \rightarrow m'_1, m'_2) &= e^{i(\mathbf{k}_{in} \cdot \mathbf{r}_2 - \mathbf{k}_{out} \cdot \mathbf{r}_1)} \\ &\quad \boldsymbol{\epsilon}_{out}^* \cdot \hat{\mathbf{t}}_1(m'_1, m_1) \cdot \Delta_{12} \cdot \hat{\mathbf{t}}_2(m'_2, m_2) \cdot \boldsymbol{\epsilon}_{in} \end{aligned} \quad (6.34)$$

où $\hat{\mathbf{t}}_1$ et $\hat{\mathbf{t}}_2$ sont les tenseurs de diffusion pour l'atome 1 et l'atome 2. A partir de l'égalité suivante :

$$\boldsymbol{\epsilon}_{in} \cdot \hat{\mathbf{t}}_2(m'_2, m_2) \cdot \Delta_{12} \cdot \hat{\mathbf{t}}_1(m'_1, m_1) \cdot \boldsymbol{\epsilon}_{in} = \boldsymbol{\epsilon}_{in} \cdot (\hat{\mathbf{t}}_1(m'_1, m_1))^T \cdot \Delta_{12} \cdot (\hat{\mathbf{t}}_2(m'_2, m_2))^T \cdot \boldsymbol{\epsilon}_{in} \quad (6.35)$$

(T désignant la transposition), on voit que si les tenseurs de diffusion étaient symétriques (c'est-à-dire égaux à leur transposé), les amplitudes \mathcal{T}_{dir} et \mathcal{T}_{rev} ((6.33) et (6.34)) seraient égales à rétrodiffusion ($\mathbf{k}_{out} = -\mathbf{k}_{in}$) dans les canaux parallèles ($\boldsymbol{\epsilon}_{out} = \boldsymbol{\epsilon}_{in}^*$). Mais puisque les tenseurs ont une partie antisymétrique, les amplitudes \mathcal{T}_{dir} et \mathcal{T}_{rev} sont nécessairement différentes, même dans les canaux parallèles⁵. On voit donc que c'est clairement la partie antisymétrique du tenseur de diffusion qui est responsable de l'inégalité des amplitudes \mathcal{T}_{dir} et \mathcal{T}_{rev} qui interfèrent, et donc de la diminution de l'augmentation cohérente à rétrodiffusion.

6.8.3 Lien avec la réciprocité

L'introduction du tenseur de diffusion pour une transition atomique nous permet également d'avoir un point de vue différent sur la réciprocité. En introduisant le tenseur $\hat{\mathbf{t}}(m_f, m_i)$ pour chaque atome le long d'un chemin de diffusion, les états internes initial et final de chaque atome le long du chemin sont des paramètres associés à ce chemin, et non plus des variables du système. Dans ce cas, l'antisymétrie du tenseur de diffusion entraîne que la propriété de réciprocité n'est pas satisfaite pour le système, puisque celle-ci découle directement de la symétrie des tenseurs caractéristiques du milieu. Avec ce point de vue, où les états internes (m_i, m_f) pour chaque atome sont des paramètres fixés, les atomes constituent un milieu diffusant pour lequel la réciprocité n'est pas valable, et donc l'obtention d'un facteur d'augmentation inférieur à deux, quel que soit le canal de polarisation, n'est pas une surprise. Ce point de vue correspond bien à la situation expérimentale, dans laquelle on ne contrôle pas l'état interne des atomes, et où l'intensité diffusée est la somme des intensités provenant des différents chemins caractérisés par des états internes (initiaux et/ou finals) différents.

6.8.4 Cas d'une transition $0 \rightarrow 1$

Nous avons déjà vu précédemment que dans le cas où la transition atomique est du type $J = 0 \rightarrow J_e = 1$, l'atome est équivalent (pour un calcul au premier ordre en intensité) à un diffuseur dipolaire classique. Ceci se comprend simplement en termes du tenseur de diffusion. Puisque $J = 0$, on a nécessairement $m_i = m_f = 0$, et donc l'atome est caractérisé entièrement par un seul tenseur : $\hat{\mathbf{t}}(m_i = 0, m_f = 0)$. De plus, ce tenseur est simplement la matrice unité :

$$\hat{\mathbf{t}}_{ij}(m = 0, m = 0) = \langle 0 | d_i d_j | 0 \rangle = \delta_{ij} \quad (6.36)$$

⁵ Dans les canaux perpendiculaires, ces amplitudes seront *a priori* différentes même en l'absence de partie antisymétrique pour les tenseurs $\hat{\mathbf{t}}_1$ et $\hat{\mathbf{t}}_2$

(($i, j = x, y, z$)) et est donc strictement identique à celui d'un diffuseur ponctuel. Il apparaît donc à nouveau que, dans le cas d'une transition $0 \rightarrow 1$, un atome est totalement équivalent à un diffuseur dipolaire ponctuel.

6.9 Contribution de la diffusion Raman

Comme nous venons de le voir, c'est la structure interne atomique qui est responsable de la réduction de l'augmentation de rétrodiffusion. Or, la dégénérescence de l'état fondamental permet à l'atome de diffuser un photon en changeant d'état interne (diffusion Raman). Comme cette possibilité est absente pour la transition $J = 0 \rightarrow J_e = 1$, qui donne les mêmes résultats qu'un diffuseur dipolaire, il est légitime de se demander si la réduction de l'augmentation de rétrodiffusion ne peut pas être entièrement attribuée à la diffusion Raman, c'est-à-dire aux chemins contenant au moins une transition Raman.

Toutefois, comme nous l'avons vu dans la section 6.3, il n'y a pas de raison fondamentale pour laquelle la diffusion Raman ne contribuerait pas à l'augmentation cohérente de rétrodiffusion. La contribution de la diffusion Raman (c'est-à-dire de tous les chemins de diffusion comportant une ou plusieurs transition(s) Raman) à l'augmentation de rétrodiffusion est donc en général non-nulle, et est spécifique à chaque canal de polarisation. En utilisant la même méthode que précédemment, il est facile de voir quelle est la contribution de la diffusion Raman à l'augmentation de rétrodiffusion pour la diffusion double pour des atomes dans un *slab*. Il suffit, dans la formule (6.22) donnant $\gamma_C^{(2)}(\theta)$, de considérer que tous les chemins de diffusion comptant au moins une transition Raman (et donc un changement d'état interne atomique) ne contribuent pas. On obtient de cette manière les courbes de rétrodiffusion fictives pour la diffusion double dans lesquelles seule la diffusion Rayleigh contribue à l'augmentation (l'intensité incohérente $\gamma_L^{(2)}$ étant inchangée). La figure 6.10 montre la courbe obtenue pour $1 + \gamma_C^{(2)}(\theta)/\gamma_L^{(2)}$ dans le canal $h \parallel h$ dans le cas d'une transition $J = 3 \rightarrow J_e = 4$, ainsi que la courbe contenant également la diffusion Raman (qui est la même que la courbe de la figure 6.5). On voit que, sans la diffusion Raman, le facteur d'augmentation est fortement diminué, et donc que dans ce canal, c'est essentiellement la diffusion Raman qui contribue à l'augmentation de rétrodiffusion. Les valeurs des facteurs d'augmentation pour la diffusion double uniquement (c'est-à-dire $1 + \gamma_C^{(2)}(0)/\gamma_L^{(2)}$) pour la transition $J = 3 \rightarrow J_e = 4$, avec et sans la contribution de la diffusion Raman, dans les quatre canaux de polarisation, sont les suivantes :

$1 + \gamma_C^{(2)}(0)/\gamma_L^{(2)}$	avec la diffusion Raman	sans la diffusion Raman
$h \perp h$	1,72	1,72
$lin \parallel lin$	1,60	1,47
$lin \perp lin$	1,45	1,06
$h \parallel h$	1,22	1,038

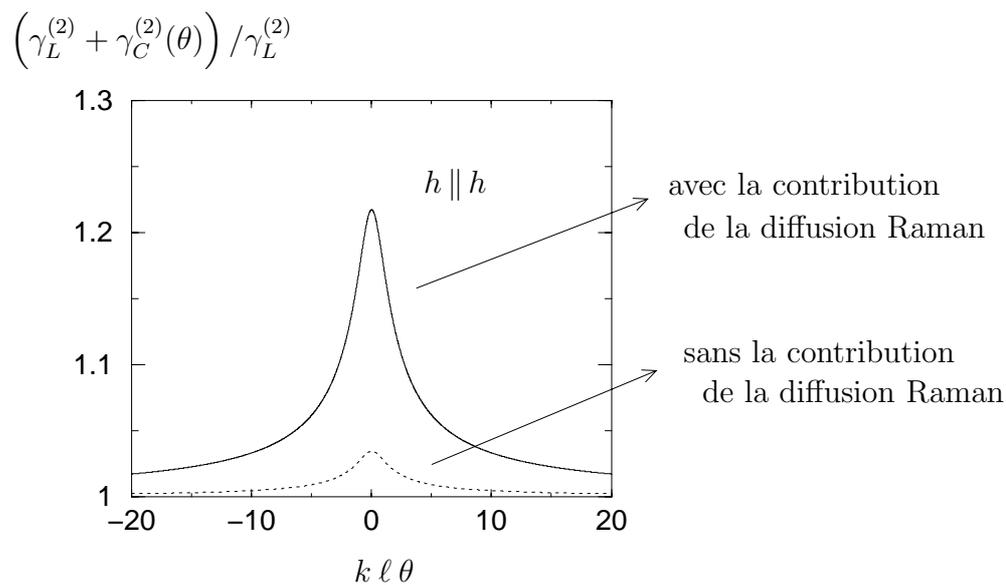


FIG. 6.10 – Courbes représentant l'intensité de diffusion double $(1 + \gamma_C^{(2)}(\theta)/\gamma_L^{(2)})$ (voir formules (6.20) et (6.22)) sur des atomes, avec une transition $J = 3 \rightarrow J_e = 4$, en fonction de la variable réduite $kl\theta$, dans le canal $h \parallel h$, avec ou sans la contribution de la diffusion Raman pour $\gamma_C^{(2)}(\theta)$ (l'intensité incohérente $\gamma_L^{(2)}$ est la même dans les deux cas). Il est clair que, dans ce canal, c'est essentiellement la diffusion Raman qui contribue à l'augmentation de rétrodiffusion.

On voit que la contribution de la diffusion Raman varie suivant le canal de polarisation considéré. Le canal $h \perp h$ est particulier : on montre facilement que, pour la diffusion double, la diffusion Raman ne contribue pas à l'augmentation, alors que les chemins composés uniquement de transitions Rayleigh interfèrent de façon optimale. Cette particularité disparaît dès que l'on considère les ordres de diffusion supérieurs : à partir de la diffusion triple, les chemins comportant des transitions Raman contribuent à l'augmentation.

Enfin, il convient de noter que, de même qu'il est faux d'affirmer que la diffusion Raman ne contribue pas à l'augmentation (nous venons de voir qu'elle contribue en général), il est faux de penser que la diffusion Rayleigh (c'est-à-dire de tous les chemins de diffusion composés uniquement de transitions Rayleigh) contribue de manière optimale à l'augmentation. En général, les amplitudes \mathcal{T}_{dir} et \mathcal{T}_{rev} de chemins composés uniquement de transitions Rayleigh sont différentes, ce qui signifie que l'interférence entre ces deux chemins n'est pas parfaitement constructive et que le facteur d'augmentation pour cette paire de chemins est plus petit que deux. Une preuve simple de ceci nous est donnée par l'exemple que nous avons considéré précédemment (voir figure 6.3), dans lequel on a $\mathcal{T}_{\text{dir}} \neq 0$ et $\mathcal{T}_{\text{rev}} = 0$, alors que les deux atomes des chemins effectuent chacun une transition Rayleigh.

6.10 Au-delà de la diffusion double : ordres de diffusion supérieurs

6.10.1 Introduction

Les résultats que nous avons présentés jusqu'à présent se limitent à la diffusion simple et la diffusion double. Ils permettent de comprendre le point essentiel pour la rétrodiffusion cohérente sur des atomes : la diminution du facteur d'augmentation à cause de la structure interne atomique. Ils montrent aussi l'importance de la diffusion simple, présente dans tous les canaux de polarisation. À partir de ces résultats, il est légitime de s'interroger sur les résultats pour les ordres de diffusion supérieurs, pour savoir par exemple comment se comporte le facteur d'augmentation en fonction de l'ordre de diffusion. Ceci est particulièrement vrai si l'on désire obtenir une comparaison précise avec des résultats expérimentaux.

Comme nous l'avons vu dans le chapitre 5 sur le calcul de l'intensité diffusée (section 5.4.4), il est très facile de généraliser les expressions de l'intensité de diffusion double aux ordres de diffusion supérieurs. Toutefois, les expressions obtenues sont, en pratique, malaisées à calculer explicitement. En effet, le nombre de termes à calculer devient rapidement rédhibitoire. Ainsi, pour la diffusion d'ordre N , si l'on spécifie l'état interne initial (m_1, \dots, m_N) des N atomes, il y a typiquement $9 \times 5^{(N-2)}$ états finals possibles (m'_1, \dots, m'_N) (chaque atome ayant en général 5 états finals accessibles, avec $\Delta m = \pm 2, \pm 1, 0$, excepté le premier et le dernier atome du chemin). Le calcul nécessitant de sommer les contributions de tous les états finals

possibles, puis de moyenner sur l'état initial, il est impossible en pratique de calculer ainsi les ordres de diffusion élevés. La section suivante donne une approximation pour le facteur d'augmentation de la diffusion triple dans le cas d'une transition $J = 3 \rightarrow J_e = 4$. La section 6.10.3 donne ensuite le principe d'une méthode analytique plus puissante, permettant de faire un calcul à tous les ordres [86, 96]. Enfin, la section 6.10.4 donne le principe d'un calcul numérique à tous les ordres au moyen d'une méthode de type Monte-Carlo.

6.10.2 Calcul de la diffusion triple

Le calcul des facteurs d'augmentation pour la diffusion triple sur des atomes dans un *slab* présente deux difficultés. La première est le calcul explicite de l'intensité de diffusion triple (intensité incohérente et intensité due à l'interférence) et la moyenne sur les états internes. Vu le nombre élevé de termes à calculer, ce calcul a été fait grâce à un programme de calcul symbolique (Mathematica)⁶. La seconde difficulté est l'utilisation de l'intensité obtenue pour l'intégration dans un *slab*. L'intégrale pour la diffusion triple dans un *slab* est très simple à écrire, mais ne se prête pas à un calcul analytique, et ne peut se calculer que numériquement. L'intégration de l'intensité de diffusion triple dans un *slab* conduit au coefficient bistatique, qui permet de comparer la contribution relative de la diffusion triple par rapport aux autres ordres de diffusion. Plutôt que d'effectuer cette intégrale, nous avons choisi par simplicité d'obtenir une approximation du facteur d'augmentation de la diffusion triple (c'est-à-dire $1 + \gamma_C^{(3)}(0)/\gamma_L^{(3)}$) en moyennant l'intensité de diffusion triple sur les positions relatives des trois atomes, de manière isotrope. Le facteur d'augmentation ainsi obtenu est sans doute peu différent du facteur exact obtenu en intégrant dans le *slab* (pour lequel la géométrie favorise certaines configurations des trois atomes par rapport à d'autres). Nous avons vérifié que, dans le cas de la diffusion double, une moyenne isotrope sur l'orientation relative des deux atomes donne une bonne approximation du facteur d'augmentation exact obtenu en effectuant l'intégrale dans le *slab*. Cette manière de faire ne nous permet pas, par contre, d'obtenir la valeur des coefficients bistatiques eux-mêmes ($\gamma_C^{(3)}(0)$ et $\gamma_L^{(3)}$), et donc d'obtenir la contribution relative de la diffusion triple.

Les valeurs des facteurs d'augmentation obtenus de cette manière (qui donnent donc une approximation de $1 + \gamma_C^{(3)}(0)/\gamma_L^{(3)}$) dans les différents canaux de polarisation, pour la transition atomique $J = 3 \rightarrow J_e = 4$, sont les suivantes :

$lin \parallel lin : 1,30$	$lin \perp lin : \text{non calculé}$	(6.37)
$h \parallel h : 1,083$	$h \perp h : 1,42$	

(pour des raisons purement techniques, le facteur d'augmentation en $lin \perp lin$ est plus difficile à obtenir, et n'a donc pas été calculé). On observe, dans chaque canal, que le facteur d'augmentation obtenu est plus faible que celui de la diffusion

⁶Même avec Mathematica, il est difficile de faire ce calcul au-delà de la diffusion triple.

double (voir (6.23)), ce qui indique que le facteur d'augmentation est une fonction décroissante de l'ordre de diffusion (mais il n'est pas possible d'en déduire le comportement à grand ordre de diffusion). On note également que l'ordre relatif des facteurs d'augmentation est le même que pour la diffusion double : le plus élevé est en $h \perp h$, le plus faible en $h \parallel h$, et la valeur en $lin \parallel lin$ est légèrement inférieure à celle en $h \perp h$.

6.10.3 Méthode de calcul utilisant les techniques des Opérateurs Tensoriels Irréductibles

La méthode que nous avons présentée plus haut pour le calcul de l'intensité (diffusion simple ou diffusion double) consiste à calculer la contribution à l'intensité pour un état interne donné de chaque atome. Et ensuite à moyenner le résultat obtenu sur tous les états internes possibles. Cette méthode n'utilise donc pas le fait que tous les états internes d'un atome contribuent avec des poids égaux, c'est-à-dire que l'atome est non polarisé. Il est possible de tirer parti de cette particularité pour obtenir une méthode de calcul plus puissante [97]. Puisque supposer que le milieu atomique est non polarisé implique qu'il est invariant par rotation, cette méthode se base sur l'utilisation de la décomposition d'un opérateur en ses composantes irréductibles se comportant différemment sous les rotations.

Considérons dans un premier temps l'intensité de diffusion simple. D'après l'équation (6.15), le coefficient bistatique de diffusion simple à rétrodiffusion est donné par :

$$\gamma^{(1)} = \frac{9}{4} \frac{1}{2J_e + 1} \sum_{m=-J}^J \langle m | (\mathbf{d}' \cdot \boldsymbol{\epsilon}_{in}^*) (\mathbf{d}' \cdot \boldsymbol{\epsilon}_{out}) (\mathbf{d}' \cdot \boldsymbol{\epsilon}_{out}^*) (\mathbf{d}' \cdot \boldsymbol{\epsilon}_{in}) | m \rangle \quad (6.38)$$

En introduisant l'opérateur $I^{(1)}$:

$$I^{(1)}(\mathbf{x}_1, \mathbf{x}_2, \mathbf{x}_3, \mathbf{x}_4) = (\mathbf{d}' \cdot \mathbf{x}_1)(\mathbf{d}' \cdot \mathbf{x}_2)(\mathbf{d}' \cdot \mathbf{x}_3)(\mathbf{d}' \cdot \mathbf{x}_4) \quad (6.39)$$

$\gamma^{(1)}$ peut encore s'écrire :

$$\gamma^{(1)} = \frac{9}{4} \frac{1}{2J_e + 1} \text{Tr}(\rho I^{(1)}(\boldsymbol{\epsilon}_{in}^*, \boldsymbol{\epsilon}_{out}, \boldsymbol{\epsilon}_{out}^*, \boldsymbol{\epsilon}_{in})) \quad (6.40)$$

où ρ est la matrice densité d'un atome pour la répartition dans les états internes, qui, puisqu'on suppose que l'atome est non polarisé, est purement scalaire, et est donnée par :

$$\rho_{mm'} = \frac{1}{2J + 1} \delta_{m,m'} \quad \text{Tr}(\rho) = 1 \quad (6.41)$$

Or, d'après la théorie des opérateurs tensoriels irréductibles (OTI), la moyenne d'un opérateur A donné, $\text{Tr}(\rho A)$, avec une matrice densité scalaire, est donnée simplement par la composante scalaire du développement en composantes irréductibles

sous les rotations de l'opérateur A [98, 99]. $\gamma^{(1)}$ s'obtient donc simplement en exprimant $I^{(1)}(\mathbf{x}_1, \mathbf{x}_2, \mathbf{x}_3, \mathbf{x}_4)$ en termes de ses composantes irréductibles, et en sélectionnant la partie scalaire. Dit de manière plus simple, supposer que le milieu atomique est non-polarisé revient à prendre un milieu invariant sous les rotations, et l'intensité s'obtient alors en sélectionnant la partie invariante sous les rotations de $I^{(1)}$.

En effectuant la décomposition de l'opérateur $I^{(1)}$, le résultat pour $\gamma^{(1)}$ s'exprime très simplement en termes des vecteurs $\boldsymbol{\epsilon}_{in}$ et $\boldsymbol{\epsilon}_{out}$, et des coefficients 6J de Wigner faisant intervenir les moments angulaires J, J_e et 1 (moment angulaire du photon). Les polarisations apparaissent uniquement dans des produits scalaires du type $\boldsymbol{\epsilon} \cdot \boldsymbol{\epsilon}'$, ou $\boldsymbol{\epsilon}$ et $\boldsymbol{\epsilon}'$ sont donnés par $\boldsymbol{\epsilon}_{in}, \boldsymbol{\epsilon}_{in}^*, \boldsymbol{\epsilon}_{out}$ ou $\boldsymbol{\epsilon}_{out}^*$. Les résultats sont donnés dans l'article [86] donné en appendice.

Considérons maintenant l'intensité de diffusion double. D'après les équations (6.20) et (6.22) donnant $\gamma_L^{(2)}$ et $\gamma_C^{(2)}$, on doit effectuer des moyennes du type :

$$\text{Tr}(\rho_{12}(\boldsymbol{\epsilon}_{in}^* \cdot \mathbf{d}'_1)(\mathbf{d}'_2 \cdot \boldsymbol{\Delta}_{12} \cdot \mathbf{d}'_1)(\boldsymbol{\epsilon}_{out} \cdot \mathbf{d}'_2)(\boldsymbol{\epsilon}_{out}^* \cdot \mathbf{d}'_2)(\mathbf{d}'_2 \cdot \boldsymbol{\Delta}_{12} \cdot \mathbf{d}'_1)(\boldsymbol{\epsilon}_{in} \cdot \mathbf{d}'_1)) \quad (6.42)$$

(on a écrit ici le terme concernant $\gamma_L^{(2)}$) où ρ_{12} est la matrice densité pour la répartition dans les états internes des atomes 1 et 2. Ceux-ci étant non corrélés, ρ_{12} est simplement le produit de 2 matrices identiques :

$$\rho_{12} = \rho_1 \otimes \rho_2 \quad (6.43)$$

On peut donc moyenner indépendamment sur l'atome 1 (opérateurs \mathbf{d}'_1) et sur l'atome 2 (opérateurs \mathbf{d}'_2). L'opérateur de projection $\boldsymbol{\Delta}_{12}$ ayant l'expression suivante :

$$\mathbf{d}'_2 \cdot \boldsymbol{\Delta}_{12} \cdot \mathbf{d}'_1 = \mathbf{d}'_2 \cdot \mathbf{d}'_1 - (\mathbf{d}'_2 \cdot \hat{\mathbf{n}}_{12})(\mathbf{d}'_1 \cdot \hat{\mathbf{n}}_{12}) \quad (6.44)$$

où $\hat{\mathbf{n}}_{12}$ est le vecteur unitaire joignant les positions des atomes 1 et 2. on voit que la moyenne ci-dessus peut s'exprimer comme une combinaison linéaire de produits de deux termes du type

$$\text{Tr}(\rho I^{(1)}(\mathbf{x}_1, \mathbf{x}_2, \mathbf{x}_3, \mathbf{x}_4)) \quad (6.45)$$

Ceci signifie que le résultat s'exprime simplement grâce aux calculs effectués pour la diffusion simple, c'est-à-dire grâce au calcul de la composante scalaire de $I^{(1)}$. Le résultat pour la diffusion double s'exprime finalement (avant intégration dans le *slab* semi-infini) en termes des polarisations $\boldsymbol{\epsilon}_{in}$ et $\boldsymbol{\epsilon}_{out}$, et leurs conjugués (dans des termes du type $\boldsymbol{\epsilon} \cdot \boldsymbol{\Delta}_{12} \cdot \boldsymbol{\epsilon}'$ et $\boldsymbol{\epsilon} \cdot \boldsymbol{\epsilon}'$), et de coefficients 6J. Ce résultat peut être obtenu simplement à partir de diagrammes, qui obéissent à des règles simples fournissant les divers termes du résultat.

La méthode utilisée pour la diffusion double se généralise à un ordre de diffusion arbitraire, la représentation diagrammatique fournissant le résultat en termes des polarisations et de coefficients 6J. En utilisant cette méthode, il est même envisageable de resommer la série de diffusion multiple donnant le propagateur dans

le milieu atomique, et d'utiliser ensuite le résultat pour calculer l'intensité diffusée à tous les ordres par des atomes dans un *slab* semi-infini.

La méthode exposée ici permet donc de calculer efficacement la contribution des ordres de diffusion plus élevés. Notons toutefois que, pour calculer la contribution explicite d'un ordre donné, supérieur à 2, l'intégrale dans le milieu semi-infini reste une difficulté (de même que pour l'intensité resommée à tous les ordres). Cette méthode a également l'intérêt de fournir des expressions analytiques simples en fonction de J et J_e ⁷. On peut donc étudier le comportement de l'intensité en fonction du type de transition ($J_e = J-1, J, J+1$) et de la valeur de J (notamment le comportement pour $J \rightarrow \infty$). Voir à ce sujet l'article en appendice.

Par contre, cette méthode est évidemment limitée au cas d'un milieu atomique non polarisé. On peut envisager de la généraliser au cas d'une matrice densité ρ quelconque, en faisant intervenir les différentes composantes irréductibles de $I^{(1)}$, mais ceci rendrait les calculs nettement plus complexes. La méthode exposée précédemment, où l'on somme la contribution explicite de chaque état interne atomique, est donc particulièrement utile si l'on s'intéresse à un milieu atomique polarisé, pour étudier par exemple les effets de pompage optique du milieu par le faisceau incident sur l'intensité diffusée.

Un autre cas où la méthode de sommation des différentes contributions se révèle très utile est l'étude de l'intensité rétrodiffusée en présence d'un champ magnétique extérieur, et de la variation du facteur d'augmentation à rétrodiffusion en fonction de celui-ci. En effet, la présence d'un champ magnétique extérieur lève la dégénérescence entre les sous-niveaux $|J, m\rangle$, et les différentes transitions associées aux différents sous-niveaux ont des poids différents (outre les coefficients de Clebsch-Gordan), dus à des fréquences de résonance différentes. Cette modification peut être prise en compte sans difficulté majeure avec la méthode calculant explicitement la contribution de chaque état interne, alors que ce n'est pas possible avec la méthode utilisant les OTI. Notons que ce problème, qui est actuellement à l'étude, semble particulièrement riche, puisqu'il est possible d'observer expérimentalement un accroissement du facteur d'augmentation à rétrodiffusion lorsque le champ magnétique est non-nul.

6.10.4 Intégration numérique par méthode Monte-Carlo

Il est également possible de calculer l'intensité rétrodiffusée à tous les ordres en calculant les intégrales numériquement à partir d'une méthode de type Monte-Carlo [100]. Grossièrement, le principe consiste à tirer au hasard, un grand nombre de fois, le parcours d'un photon dans le milieu. Le photon a une probabilité

⁷Avec la méthode exposées précédemment, on peut également aboutir à des expressions analytiques en J et J_e , mais elles sont très lourdes puisqu'elles contiennent la somme des expressions des coefficients de Clebsch-Gordan en fonction de J et J_e (provenant de la contribution de chaque transition à l'intensité). De ce point de vue, la méthode utilisant les OTI revient à utiliser des règles de somme pour les coefficients de Clebsch-Gordan, donnant des coefficients $6J$.

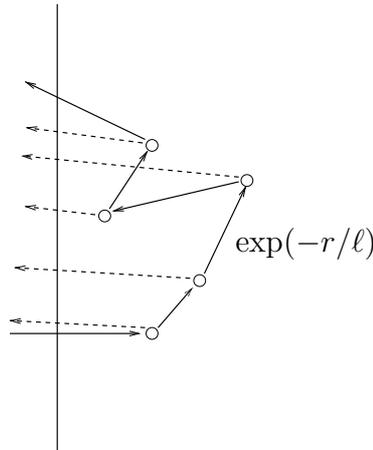


FIG. 6.11 – *Illustration de la méthode de calcul de type Monte-Carlo. On tire au hasard le trajet d’un “photon” dans le milieu. Il a une probabilité $\exp(-r/\ell)$ de parcourir une distance r dans le milieu avant d’être diffusé, et sa direction de propagation après une diffusion est tirée au hasard suivant le diagramme de rayonnement de diffuseur. On obtient un chemin de diffusion lorsque le photon sort du milieu diffusant. La méthode des “photons partiels” (flèches tiretées) consiste à considérer que l’on obtient un chemin donné après chaque diffusion.*

$\exp(-r/\ell)$ de parcourir une distance r dans le milieu avant de subir une diffusion, ℓ étant le libre parcours moyen. Le direction de propagation après une diffusion est tirée au hasard suivant le diagramme de rayonnement du diffuseur (dans le cas des atomes, ce sera un atome dans un sous-niveau donné, déterminé aléatoirement suivant la matrice densité caractérisant un atome). On continue de la sorte jusqu’à ce que le photon sorte du milieu, et on obtient alors un chemin de diffusion, dont l’ordre est donné par le nombre de diffusions subies par le photon. La contribution de ce chemin à l’intensité incohérente, et à l’augmentation de rétrodiffusion (obtenue en calculant également à partir de ce chemin l’amplitude du chemin inverse) est alors calculée. Notons que l’on peut en pratique améliorer l’efficacité de la méthode en considérant que l’on a un chemin donné après chaque diffusion : si le photon sort après N diffusions, on a ainsi une contribution à l’intensité pour chaque ordre de diffusion de 1 à N (méthode dite des “photons partiels” [100]). Le principe de la méthode est illustré sur la figure 6.11.

Par rapport aux méthodes présentées précédemment, celle-ci a le défaut de ne fournir aucune expression analytique, ni pour la dépendance des résultats en fonction de la transition atomique considérée (J et J_e), ni pour la forme du cône de rétrodiffusion. Il faut donc effectuer un nouveau calcul pour chaque valeur de J (et J_e) que l’on désire étudier. Par contre, cette méthode a l’avantage de fournir efficacement l’intensité à tous les ordres, avec une bonne précision. De plus, il est très facile de considérer une géométrie arbitraire pour le milieu diffusant, alors

qu'avec les méthodes analytiques il est très difficile d'obtenir des résultats pour une géométrie autre qu'un *slab*. La méthode Monte-Carlo peut même être adaptée pour prendre en compte un milieu diffusant de densité variable. Tout ceci fait que cette méthode est particulièrement adaptée à une comparaison quantitative avec les résultats expérimentaux, pour lesquels la géométrie est proche de celle d'une sphère (ou d'un ellipsoïde) de densité croissante vers le centre. Le développement d'une méthode de ce type pour la diffusion sur les atomes est en cours.

Annexe A

Justification de la coupure des sommes de la section 2.4.5

A.1 Introduction

Cette annexe présente un argument théorique justifiant la coupure des sommes introduite dans la section 2.4.5. Le raisonnement comporte trois étapes. Dans la première, on étudie la fonction de Green pour l'hydrogène dans le champ extérieur, $G_0(\mathbf{r}, 0; z)$, prise à l'énergie complexe $z = E + i\Lambda$, pour montrer que l'ajout d'une partie imaginaire Λ à l'énergie entraîne que la limite pour $\mathbf{r} \rightarrow 0$ de $G_0(\mathbf{r}, 0; z)$ est indépendante du champ extérieur. Dans la deuxième étape, on examine les conséquences de ce résultat sur les états propres pour l'hydrogène dans le champ extérieur pris en $\mathbf{r} = 0$: $\phi_n(0)$. On y montre que la moyenne de $|\phi_n(0)|^2$ sur un intervalle d'énergie Δ est indépendante du champ extérieur. Enfin, on montre dans la troisième étape que ceci justifie la coupure des sommes introduite dans la section 2.4.5.

A.2 La fonction de Green $G_0(\mathbf{r}, 0; z)$ prise à l'énergie complexe z

Considérons tout d'abord la fonction de Green pour l'hydrogène dans le champ extérieur, $G_0(\mathbf{r}, 0; E)$, prise à une énergie $E < 0$ correspondant aux états de Rydberg de l'électron (par exemple $E \sim -1.10^{-4}$). L'équation satisfaite par $G_0(\mathbf{r}, 0; E)$ est :

$$\left(-\Delta - \frac{2}{r} + V(\mathbf{r}) - E\right) G_0(\mathbf{r}, 0; E) = -\delta(\mathbf{r}) \quad (\text{A.1})$$

Comme nous l'avons vu précédemment (section 2.3), on peut définir une sphère de rayon r_0 à l'intérieur de laquelle le champ extérieur est négligeable, r_0 valant au moins plusieurs dizaines d'unités atomiques. Dans cette sphère, $G_0(\mathbf{r}, 0; E)$ satisfait

l'équation sans champ extérieur :

$$\left(-\Delta - \frac{2}{r} - E\right) G_0(\mathbf{r}, 0; E) = -\delta(\mathbf{r}) \quad r \leq r_0 \quad (\text{A.2})$$

$G_0(\mathbf{r}, 0; E)$ ne dépend alors, pour $r \leq r_0$, que de la distance r , et s'exprime comme une combinaison linéaire des fonctions $c_0(r; E)/r$ et $s_0(r; E)/r$, qui sont solutions de l'équation radiale sans champ pour $l = 0$:

$$\left(\frac{d^2}{dr^2} + \frac{2}{r} + E\right) \begin{cases} c_0(r; E) \\ s_0(r; E) \end{cases} = 0 \quad (\text{A.3})$$

Dans la combinaison linéaire donnant $G_0(\mathbf{r}, 0; E)$, le coefficient de $c_0(r; E)/r$ est fixé indépendamment du champ extérieur, puisque la divergence de $G_0(\mathbf{r}, 0; E)$ pour $\mathbf{r} \rightarrow 0$ est indépendante du champ extérieur (section 1.2) et $c_0(r; E)$ est la solution de A.3 divergente pour $r \rightarrow 0$ (le coefficient de $c_0(r; E)/r$ dans la combinaison linéaire vaut précisément $-\sqrt{2}/4$, voir équation (2.31)). Par contre, le coefficient de $s_0(r; E)/r$ dépend du champ extérieur, et s'obtient en imposant la compatibilité de la fonction de Green pour $r \leq r_0$ (donnée par la combinaison linéaire de $c_0(r)/r$ et $s_0(r)/r$) et de la fonction de Green pour $r \geq r_0$, qui est solution de l'équation avec champ. Puisque $s_0(r; E)/r$ tend vers une constante pour $r \rightarrow 0$ (la valeur exacte est $\sqrt{2}$), et que le coefficient de $s_0(r; E)/r$ dans la combinaison linéaire donnant $G_0(\mathbf{r}, 0; E)$ dépend du champ extérieur, la limite de $G(\mathbf{r}, 0; E)$ pour $\mathbf{r} \rightarrow 0$ dépend explicitement du champ extérieur. Notons que si l'on considère la fonction de Green pour l'hydrogène sans champ extérieur, $\mathcal{G}_0(\mathbf{r}, 0; E)$ (qui est solution de (A.2) pour tout $r \in \mathbb{R}^+$), le coefficient de la fonction $s_0(r; E)/r$ est donné en imposant le bon comportement à l'infini, et on obtient (cf. équations (2.7) et (2.31)) :

$$\mathcal{G}_0(\mathbf{r}, 0; E) = \frac{-\sqrt{2}}{4} \left(\frac{c_0(r; E)}{r} - \cotg(\pi\nu) \frac{s_0(r; E)}{r} \right) \quad (\text{A.4})$$

avec $E = -1/\nu^2$. En effet, les fonctions $c_0(r; E)/r$ et $s_0(r; E)/r$ sont des fonctions exponentiellement divergentes pour $r \geq 2/|E|$, et c'est uniquement en prenant la combinaison linéaire $c_0(r; E) - \cotg(\pi\nu) s_0(r; E)$ que l'on obtient une fonction qui tend vers 0 pour $r \rightarrow \infty$.

Considérons maintenant la fonction de Green $G_0(\mathbf{r}, 0; z)$ prise à l'énergie $z = E + i\Lambda$, dont la partie réelle est la même que ci-dessus, mais qui comprend également une partie imaginaire Λ non-nulle. Nous allons voir que l'ajout de cette partie imaginaire à l'énergie entraîne, si elle est suffisamment grande, que la limite pour $\mathbf{r} \rightarrow 0$ de $G_0(\mathbf{r}, 0; z)$ est indépendante du champ extérieur. Considérons pour cela le comportement des fonctions $s_0(r; z)$ et $c_0(r; z)$. Pour une énergie réelle $z = E$ ($E < 0$ et $|E| \ll 1$), elles sont oscillantes pour $r \leq 2/|E|$, et ont un comportement exponentiel pour $r \geq 2/|E|$ (voir section 2.3.2). Le fait d'ajouter une partie imaginaire

Λ ajoute un comportement exponentiel aux fonctions $c_0(r; z)$ et $s_0(r; z)$. En effet, l'équation satisfaite par ces fonctions est (écrite ici avec $c_0(r; z)$) :

$$\left(\frac{d^2}{dr^2} + \frac{2}{r} + E + i\Lambda \right) c_0(r; E + i\Lambda) = 0 \quad (\text{A.5})$$

Près de $r = \tilde{r}$ fixé, $c_0(r; z)$ a localement un comportement proche de $\exp(\pm i\alpha r)$, avec

$$\alpha = \sqrt{2/\tilde{r} + E + i\Lambda} = \sqrt{2/\tilde{r} - |E| + i\Lambda} = \alpha_{\text{R}} + i\alpha_{\text{I}} \quad (\text{A.6})$$

où α_{I} est donné par

$$\alpha_{\text{I}} = \frac{1}{\sqrt{2}} \sqrt{\sqrt{(2/\tilde{r} - |E|)^2 + \Lambda^2} - (2/\tilde{r} - |E|)} \quad (\text{A.7})$$

La partie imaginaire α_{I} entraîne le comportement exponentiel $\exp(\pm\alpha_{\text{I}}r)$. Remarquons que, à l'intérieur de la sphère de rayon r_0 (au plus une centaine d'unités atomiques), et pour les énergies que l'on considère (typiquement $E \simeq -1 \cdot 10^{-4}$), on a $|E| \ll 2/r$. La présence de la partie imaginaire α_{I} entraîne que les fonctions $s_0(r; z)/r$ et $c_0(r; z)/r$ (dont une combinaison linéaire donne $G_0(\mathbf{r}, 0; z)$) croissent très rapidement (en valeur absolue), et atteignent des valeurs exponentiellement grandes au niveau de la sphère de rayon r_0 sur laquelle on impose la compatibilité avec la solution pour $G_0(\mathbf{r}, 0; E)$ à l'extérieur de la sphère. Puisque la valeur que l'on impose en r_0 (provenant de la solution à l'extérieur de la sphère de rayon r_0) n'est pas exponentiellement grande, la combinaison linéaire des fonctions $c_0(r; z)/r$ et $s_0(r; z)/r$ qui en découle est celle pour laquelle les comportements exponentiels de ces deux fonctions se compensent, c'est-à-dire précisément la combinaison linéaire qui est régulière à l'infini, celle que l'on obtient en l'absence de champ (équation (A.4)).

Ceci signifie qu'à cause de la partie imaginaire Λ ajoutée à l'énergie, qui entraîne un comportement exponentiel pour les fonctions $c_0(r; E)$ et $s_0(r; E)$, les coefficients de la combinaison linéaire obtenus grâce au *matching* en $r = r_0$ sont précisément ceux qui correspondent à la fonction de Green pour l'hydrogène sans champ extérieur. Et donc que la limite pour $\mathbf{r} \rightarrow 0$ de $G_0(\mathbf{r}, 0; z)$ est indépendante du champ extérieur, à condition que la partie imaginaire soit suffisamment grande.

Il reste maintenant à évaluer la valeur minimale Λ_0 pour la partie imaginaire Λ telle que l'argument ci-dessus soit valable. Un ordre de grandeur est obtenu en considérant le comportement exponentiel $\exp(\alpha_{\text{I}}r)$ en $r = r_0$, et en imposant $\exp(\alpha_{\text{I}}r_0) \gg 1$. Ceci donne un Λ_0 valant une fraction de $1/r_0$. Toutefois, cette estimation est optimiste, puisque le comportement exponentiel augmente avec r et qu'il est calculé ici uniquement en $r = r_0$. Une estimation plus réaliste est obtenue en intégrant le comportement exponentiel sur r (c'est-à-dire en considérant $\int^{r_0} d\tilde{r} \alpha_{\text{I}}(\tilde{r})$). On aboutit alors à l'estimation

$$\Lambda_0 \sim \frac{1}{r_0} \quad (\text{A.8})$$

pour la valeur minimale Λ_0 de la partie imaginaire de l'énergie telle que la limite de $G_0(\mathbf{r}, 0; E + i\Lambda_0)$ pour $\mathbf{r} \rightarrow 0$ est indépendante du champ extérieur.

A.3 Conséquence sur les états propres $\phi_n(0)$

Nous allons considérer dans cette section la fonction de Green $G_0(\mathbf{r}, 0; z)$ explicitement en $\mathbf{r} = 0$: $G_0(0, 0; z)$, avec $z = E + i\Lambda$. D'après la section précédente, cette quantité est indépendante du champ extérieur, ce qui s'écrit :

$$G_0(0, 0; z) = \mathcal{G}_0(0, 0; z) \quad (\text{A.9})$$

où $\mathcal{G}_0(\mathbf{r}, 0; z)$ est la fonction de Green pour l'hydrogène en l'absence de champ extérieur. Notons que les deux membres de cette équation sont divergents, et que chacun de ces membres doit être vu comme une limite pour $\mathbf{r} \rightarrow 0$, qui entraîne donc à la fois l'égalité pour le terme divergent en r^{-1} et l'égalité pour le terme constant en r^0 . En utilisant la représentation spectrale de chaque fonction de Green (équation (2.33)), et en séparant partie réelle et partie imaginaire (avec $z = E + i\Lambda$), on obtient les équations :

$$\sum_n |\phi_n(0)|^2 \frac{(E - E_n)}{(E - E_n)^2 + \Lambda^2} = \sum_n |\psi_n(0)|^2 \frac{(E - E_n^0)}{(E - E_n^0)^2 + \Lambda^2} \quad (\text{A.10})$$

$$\sum_n |\phi_n(0)|^2 \frac{1}{(E - E_n)^2 + \Lambda^2} = \sum_n |\psi_n(0)|^2 \frac{1}{(E - E_n^0)^2 + \Lambda^2} \quad (\text{A.11})$$

où les $\phi_n(\mathbf{r})$ et E_n (respectivement $\psi_n(\mathbf{r})$ et E_n^0) sont les fonctions propres et valeurs propres pour l'hydrogène dans le champ extérieur (resp. pour l'hydrogène sans champ extérieur). Ces égalités sont vraies pour toutes les énergies E appartenant au domaine que l'on considère ($E < 0$ et $|E| \ll 1$), et pour tous les Λ tels que $\Lambda \geq \Lambda_0$.

Dans la première équation, on somme les $|\phi_n(0)|^2$ et les $|\psi_n(0)|^2$ sur les valeurs discrètes d'une fonction de type "courbe de dispersion" ($f(E_n) = (E - E_n)/((E - E_n)^2 + \Lambda^2)$) centrée en $E_n = E$ et de largeur $\sim \Lambda$. Dans la deuxième équation, on somme les $|\phi_n(0)|^2$ et les $|\psi_n(0)|^2$ sur les valeurs discrètes d'une fonction de type "lorentzienne" ($f(E_n) = 1/((E - E_n)^2 + \Lambda^2)$) centrée en $E_n = E$ et de largeur $\sim \Lambda$. Pour chaque égalité, la contribution essentielle vient donc des $|\phi_n(0)|^2$ et $|\psi_n(0)|^2$ correspondant aux E_n et E_n^0 compris dans un intervalle de largeur $\sim \Lambda$ autour de l'énergie E . Puisque ces deux égalités sont vraies pour tout $\Lambda \geq \Lambda_0$ et pour toutes les énergies E telles que $E < 0$ et $|E| \ll 1$, la seule possibilité pour qu'elles soient satisfaites est que la somme des $|\phi_n(0)|^2$ dans un intervalle d'énergie Δ autour d'une énergie arbitraire E_0 soit égale à la somme des $|\psi_n(0)|^2$ dans le même intervalle d'énergie de largeur Δ , quelle que soit l'énergie E_0 . En notant $\sum_{n(E_0, \Delta)}$

la somme sur les niveaux E_n ou E_n^0 compris dans l'intervalle $[E_0 - \Delta/2, E_0 + \Delta/2]$, on a l'équation :

$$\sum_{n(E_0, \Delta)} |\phi_n(0)|^2 = \sum_{n(E_0, \Delta)} |\psi_n(0)|^2 \quad (\text{A.12})$$

Cette équation doit être satisfaite pour une largeur Δ petite devant Λ_0 . En effet, si la relation (A.12) n'était pas satisfaite pour un intervalle de largeur $\Delta \ll \Lambda_0$, on pourrait choisir une énergie E et une largeur $\Lambda \geq \Lambda_0$ telles que l'équation (A.10) et/ou l'équation (A.11) ne soit pas satisfaite, en faisant intervenir de manière significative dans la somme des $|\phi_n(0)|^2$ et $|\psi_n(0)|^2$ avec des poids qui varient rapidement à l'échelle de la largeur Δ . Le fait que la limite pour $\mathbf{r} \rightarrow 0$ de la fonction de Green soit indépendante du champ extérieur entraîne donc que la moyenne de $|\phi_n(0)|^2$ dans un intervalle d'énergie Δ est également indépendante du champ extérieur, avec $\Delta \ll \Lambda_0$ ¹.

A.4 Application pour la coupure des sommes

Considérons maintenant l'expression similaire à la partie réelle de la fonction de Green, mais dans laquelle on ne somme que sur les états d'énergie $E_n > E_+$, avec $E_+ > E$. Elle s'écrit :

$$\sum_{n|E_n > E_+} |\phi_n(0)|^2 \frac{(E - E_n)}{(E - E_n)^2 + \Lambda^2} \quad (\text{A.13})$$

Puisque la $\sum_n |\phi_n(0)|^2$ dans un intervalle d'énergie de largeur Δ est indépendante du champ extérieur (et donc égale à $\sum_n |\psi_n(0)|^2$ dans le même intervalle), on a ici aussi la relation :

$$\sum_{n|E_n > E_+} |\phi_n(0)|^2 \frac{(E - E_n)}{(E - E_n)^2 + \Lambda^2} = \sum_{n|E_n^0 > E_+} |\psi_n(0)|^2 \frac{(E - E_n^0)}{(E - E_n^0)^2 + \Lambda^2} \quad (\text{A.14})$$

Cette équation est similaire à l'équation (A.10), mais avec la somme sur n limitée aux énergies supérieures à E_+ . L'équation (A.10) est valide sous la condition $\Lambda \geq \Lambda_0$. Ici, l'égalité peut être satisfaite avec un $\Lambda < \Lambda_0$ si E_+ est suffisamment éloigné de E . En effet, considérons un $\Lambda < \Lambda_0$ (ou même $\ll \Lambda_0$), et choisissons un E_+ tel que $(E_+ - E) \gg \Lambda$. Ce choix assure que, dans la somme sur n , n'interviennent que les niveaux E_n et E_n^0 qui sont loin du zéro de la courbe de dispersion $(E - E_n)/((E - E_n)^2 + \Lambda^2)$. La variation de cette courbe, loin de son zéro ($E_n = E$) est nettement plus lente que près du zéro, et peut être suffisamment lente pour que la courbe puisse être considérée comme constante sur un intervalle de largeur Δ , ce

¹La largeur Δ doit naturellement être plus grande que l'espacement moyen entre les niveaux E_n et E_n^0 .

qui assure, grâce à l'équation (A.12), l'égalité (A.14). Pour E_n proche de E_+ , avec $E_+ - E \gg \Lambda$, la courbe de dispersion est simplement

$$\frac{E - E_n}{(E - E_n)^2 + \Lambda^2} \simeq \frac{1}{E - E_n} \quad (\text{A.15})$$

et sa longueur caractéristique de variation est $\sim (E_+ - E)$ (il faut se déplacer de $(E_+ - E)$ pour que la fonction diminue de moitié). Cette longueur caractéristique de variation doit être grande devant Δ pour assurer l'égalité (A.14), et doit valoir au minimum Λ_0 (comme dans les équations (A.10) et (A.11)). La condition sur E_+ est donc simplement :

$$E_+ - E \sim \Lambda_0 \quad (\text{A.16})$$

indépendamment du choix du Λ apparaissant dans l'équation (A.14).

On peut donc satisfaire l'équation (A.14) en choisissant E_+ suivant (A.16), et en prenant un Λ arbitrairement petit. On a alors :

$$\sum_{n|E_n > E_+} |\phi_n(0)|^2 \frac{(E - E_n)}{(E - E_n)^2 + \Lambda^2} = \sum_{n|E_n > E_+} |\phi_n(0)|^2 \left(\frac{1}{E - E_n} + \mathcal{O}\left(\frac{\Lambda^2}{(E - E_+)^2}\right) \right) \quad (\text{A.17})$$

En négligeant le terme d'ordre Λ^2 (ce qui est possible en prenant Λ suffisamment petit), l'équation (A.14) devient :

$$\sum_{n|E_n > E_+} |\phi_n(0)|^2 \frac{1}{E - E_n} = \sum_{n|E_n^0 > E_+} |\psi_n(0)|^2 \frac{1}{E - E_n^0} \quad (\text{A.18})$$

Ceci est précisément la relation que l'on a utilisée pour couper les sommes dans l'équation (2.35). L'argument exposé ici justifie donc la coupure des sommes introduite dans la section 2.4.5.

Notons toutefois que l'ordre de grandeur prévu ici pour la valeur de E_+ (équation (A.16)) est bien plus pessimiste que la valeur obtenue en pratique. En effet, on a obtenu dans la section A.2 la relation $\Lambda_0 \sim 1/r_0$ qui, pour un rayon r_0 d'une centaine d'unités atomiques, donne $\Lambda_0 \sim 10^{-2}$, et donc $E_+ - E \sim 10^{-2}$. Puisque $E \sim -1 \cdot 10^{-4}$, ceci signifie que l'énergie E_+ devrait être positive, et donc qu'il faudrait inclure dans la somme sur n tous les niveaux E_n discrets et une partie du continuum, ce qui serait impossible en pratique.

Comme le montrent les résultats de la section 2.4.6, on peut en pratique utiliser un E_+ bien plus proche de E . Ainsi, pour l'exemple donné dans cette section, on a utilisé un $E_+ \simeq -8 \cdot 10^{-5}$ pour calculer des solutions E jusqu'à environ $E = -2,8 \cdot 10^{-4}$, ce qui donne $E_+ - E \simeq 2 \cdot 10^{-4}$.

Bibliographie

- [1] M. J. Giannoni, A. Voros and J. Zinn-Justin, editors. *1989 Les Houches summer school on Chaos and Quantum Physics*. North-Holland (1991).
- [2] H.-J. Stöckmann. *Quantum chaos : an introduction*. Cambridge university press, Cambridge (1999).
- [3] O. Bohigas. “Random matrix theories and chaotic dynamics.” In M. J. Giannoni, A. Voros and J. Zinn-Justin, editors, *1989 Les Houches summer school on Chaos and Quantum Physics*. North-Holland (1991).
- [4] H. Friedrich and D. Wintgen. *Phys. Rep.* **183** : 37 (1989).
- [5] D. Delande. “Chaos in atomic and molecular physics.” In M. J. Giannoni, A. Voros and J. Zinn-Justin, editors, *1989 Les Houches summer school on Chaos and Quantum Physics*. North-Holland (1991).
- [6] M. H. Halley, D. Delande and K. T. Taylor. *J. Phys. B* **26** : 1775 (1993).
- [7] D. Delande, K. Taylor, M. Halley, T. van der Veldt, W. Vassen and W. Hogervorst. “Scaled energy spectra of non-hydrogenic atoms in a magnetic field.” *J. Phys. B* **27** : 2771–2784 (1994).
- [8] E. Bogomolny, U. Gerland and C. Schmit. “Models of intermediate statistics.” *Phys. Rev. E* **59** : 1315–1318 (1999).
- [9] S. Albeverio, F. Geszety, R. Høegh-Krohn and H. Holden. *Solvable models in quantum mechanics*. Springer, Berlin (1998).
- [10] P. Seba. “Wave chaos in singular quantum billiard.” *Phys. Rev. Lett.* **64** : 1855–1858 (1990).
- [11] S. Albeverio and P. Seba. “Wave chaos in quantum systems with point interaction.” *J. Statist. Phys.* **64** : 369–383 (1991).
- [12] P. Morse and H. Feshbach. *Methods of theoretical physics*. McGraw-Hill (1953).
- [13] M. L. Goldberger and K. Watson. *Collision theory*. Wiley (1964).
- [14] T. Nieuwenhuizen, A. Lagendijk and B. van Tiggelen. “Resonant point scatterer in multiple scattering of classical waves.” *Phys. Lett. A* **169** : 191–194 (1992).

- [15] P. de Vries, D. van Coevorden and A. Lagendijk. “Point scatterers for classical waves.” *Rev. Modern Phys.* **70** : 447–466 (1998).
- [16] T. Shigehara. “Conditions for the appearance of wave chaos in quantum singular systems with a pointlike scatterer.” *Phys. Rev. E* **50** : 4357–4370 (1994).
- [17] T. Shigehara and T. Cheon. “Wave chaos in quantum billiards with a small but finite size scatterer.” *Phys. Rev. E* **54** : 1321–1331 (1996).
- [18] G. Bonneau, J. Faraut and G. Valent. “Self-adjoint extensions of operators and the teaching of quantum mechanics.” *preprint* (2001). quant-ph/0103153.
- [19] J. Zorbas. “Perturbation of self-adjoint operators by dirac distributions.” *J. Math. Phys.* **21** : 840–847 (1980).
- [20] M. Reed and B. Simon. *Methods of Modern Mathematical Physics. II. Fourier Analysis, Self-Adjointness*. Academic Press (1975).
- [21] Y. Castin. “Bose-einstein condensates in atomic gases : Simple theoretical results.” In R. Kaiser, C. Westbrook and F. David, editors, *1999 Les Houches Summer School on Coherent Atomic Matter Waves*. EDP Sciences and Springer-Verlag (2001).
- [22] E. Fermi. *Ricerca Sci.* **7** : 13 (1936).
- [23] M. Gutzwiller. *Chaos in classical and quantum mechanics*. Springer-Verlag (1990).
- [24] N. Pavloff and C. Schmit. “Diffractive orbits in quantum billiards.” *Phys. Rev. Lett.* **75** : 61–64 (1995).
- [25] G. Vattay, A. Wirzba and E. Rosenqvist. “Periodic orbit theory of diffraction.” *Phys. Rev. Lett.* **73** : 2304–2307 (1994).
- [26] E. Bogomolny. “Trace formulas and spectral statistics of diffractive systems.” *preprint* (2000). nlin.CD/0011024.
- [27] P. Dahlqvist and G. Vattay. “Periodic orbit quantization of the sinai billiard in the small scatterer limit.” *J. Phys. A* **31** : 6333–6345 (1998).
- [28] P. Rosenqvist, N. D. Whelan and A. Wirzba. “Small disks and semiclassical resonances.” *J. Phys. A* **29** : 5441–5453 (1996).
- [29] T. Shigahara, N. Yoshinaga, T. Cheon and T. Mizusaki. “Level-spacing distribution of a singular billiard.” *Phys. Rev. B* **47** : R3822–3825 (1993).
- [30] M. L. Mehta. *Random matrices*. Academic Press (1991).
- [31] E. Bogomolny, P. Lebœuf and C. Schmitt. “Spectral statistics of chaotic systems with a point-like scatterer.” *Phys. Rev. Lett.* **85** : 2486–2489 (2000).
- [32] M. Sieber. “Geometrical theory of diffraction and spectral statistics.” *J. Phys. A* **32** : 7679–7689 (1999).
- [33] M. Sieber. “Spectral statistics in chaotic systems with a point interaction.” *J. Phys. A* **33** : 6263–6278 (2000).

- [34] D. Braun, G. Montambaux and M. Pascaud. “Boundary conditions at the mobility edge.” *Phys. Rev. Lett.* **81** : 1062–1065 (1998).
- [35] E. Bogomolny, U. Gerland and C. Schmit. “Singular statistics.” *Phys. Rev. E* **63** : 36306–36221 (2001).
- [36] T. Shigehara, H. Mizoguchi, T. Mishima and T. Cheon. “Chaos induced by quantization.” *IEICE Transactions on fundamentals of electronics, communications and computer sciences* **E81-A** : 1762–1768 (1998).
- [37] M. Seaton. “Quantum defect theory.” *Rep. Progr. Phys.* **46** : 167–257 (1983).
- [38] E. Condon and G. Shortley. *The theory of atomic spectra*. Cambridge University Press (1959).
- [39] C. Fabre. “Thèse de doctorat d’état.” Université Paris 6.
- [40] R. Weast, editor. *Handbook of chemistry and physics*. CRC press, Boca Raton, 67th edition (1986).
- [41] G. Stevens, C. Iu, T. Bergeman, H. Metcalf, I. Seipp, K. Taylor and D. Delande. “Absolute calibration of electric fields using stark spectroscopy.” *Phys. Rev. Lett.* **75** : 3402–3405 (1995).
- [42] G. Stevens, C. Iu, T. Bergeman, H. Metcalf, I. Seipp, K. Taylor and D. Delande. “Precision measurements on lithium atoms in an electric field compared with r-matrix and other stark theories.” *Phys. Rev. A* **53** : 1349–1366 (1996).
- [43] T. Jonckheere, B. Grémaud and D. Delande. “Spectral properties of non-hydrogenic atoms in weak external fields.” *Phys. Rev. Lett.* **81** : 2442–2445 (1998).
- [44] D. Delande. “Thèse de doctorat d’état.” Université Paris 6.
- [45] E. Bogomolny, U. Gerland and C. Schmit. “Short-range plasma model for intermediate spectral statistics.” *European J. Phys. B* **19** : 121–132 (2000).
- [46] K. Karremans, A. Kips, W. Vassen and W. Hogervorst. “Effects of core-scattering on level statistics in helium atoms in scaled external fields.” *Phys. Rev. A* **60** : R2649–2652 (1999).
- [47] P. A. Mello. “Theory of random matrices : spectral statistics and scattering problems.” In E. Akkermans, G. Montambaux, J. L. Pichard and J. Zinn-Justin, editors, *1994 Les Houches Summer School on Mesoscopic Quantum Physics*. North-Holland (1995).
- [48] T. Monteiro and G. Wunner. “Analysis of quantum manifestations of chaos in general rydberg atoms in strong magnetic fields.” *Phys. Rev. Lett.* **65** : 1100–1103 (1990).
- [49] T. Ericsson and A. Ruhe. “The spectral transformation lanczos method for the numerical solution of large sparse generalized symmetric eigenvalue problems.” *Math. Comp.* **35** : 1251–1268 (1980).

- [50] M. Du and J. Delos. “Effet of closed classical orbits on quantum spectra : Ionization of atoms in a magnetic field. i. physical picture and calculations.” *Phys. Rev. A* **38** : 1896–1912 (1988).
- [51] M. Du and J. Delos. “Effet of closed classical orbits on quantum spectra : Ionization of atoms in a magnetic field. ii. derivation of formulas.” *Phys. Rev. A* **38** : 1913–1930 (1988).
- [52] R. Marcinek and D. Delande. “Semiclassical photoionization cross section of the hydrogen atom in a magnetic field.” *Phys. Rev. A* **62** : 62704–62715 (2000).
- [53] B. Hüpper, J. Main and G. Wunner. “Photoabsorbtion of nonhydrogenic rydberg atoms in a magnetic field : effects of core-scattered classical orbits.” *Phys. Rev. Lett.* **74** : 2650–2653 (1995).
- [54] B. Hüpper, J. Main and G. Wunner. “Nonhydrogenic rydberg atoms in a magnetic field : a rigorous semiclassical approach.” *Phys. Rev. A* **53** : 744759 (1996).
- [55] P. Dando, T. Monteiro, D. Delande and K. Taylor. “Role of core-scattered closed orbits in nonhydrogenic atoms.” *Phys. Rev. A* pp. 127–138 (1996).
- [56] S. Chandrasekhar. *Radiative transfer*. Dover, New York (1960).
- [57] P. W. Anderson. *Phys. Rev.* **109** : 1492 (1958).
- [58] M. P. van Albada and A. Lagendijk. “Observation of weak localization of light in a random medium.” *Phys. Rev. Lett.* **55** : 2692–2695 (1985).
- [59] P. Wolf and G. Maret. “Weak localization and coherent backscattering oh photons in disordered media.” *Phys. Rev. Lett.* **55** : 2696–2699 (1985).
- [60] R. Kaiser, C. Westbrook and F. David, editors. *Les Houches 1999 summer school on coherent atomic matter waves*. EDP Sciences and Springer-Verlag (2001).
- [61] K. Burnett, editor. *Ultracold atoms and Bose-Einstien condensation*, volume 7 of *OSA Trends in optics and photonics series*. OSA (1996).
- [62] A. Lagendijk and B. A. van Tiggelen. “Resonant multiple scattering of light.” *Phys. Rep.* **270** : 143–215 (1996).
- [63] G. Labeyrie, F. de Tomasi, J.-C. Bernard, C. A. Müller, C. Miniatura and R. Kaiser. *Phys. Rev. Lett.* **83** : 5266–5269 (1999).
- [64] G. Labeyrie, C. A. Müller, D. S. Wiersma, C. Miniatura and R. Kaiser. *J. Opt. Soc. Amer. B* **2** : 672–685 (2000).
- [65] *Diffuse Wave in complex media*. Kluwer Academic, Dordrecht (1999).
- [66] POAN Research Group, editor. *New aspects of electromagnetic and acoustic wave diffusion*. Springer, Berlin (1998).

- [67] B. L. Altshuler and B. Simons. “Universalities : from Anderson localization to quantum chaos.” In E. Akkermans, G. Montanbaux, J. L. Pichard and J. Zinn-Justin, editors, *1994 Les Houches Summer School on Mesoscopic Quantum Physics*. North-Holland (1995).
- [68] G. Maret. “Recent experiments on multiple scattering and localization of light.” In E. Akkermans, G. Montanbaux, J. L. Pichard and J. Zinn-Justin, editors, *1994 Les Houches Summer School on Mesoscopic Quantum Physics*. North-Holland (1995).
- [69] E. Akkermans, P. Wolf, R. Maynard and G. Maret. “Theoretical study of the coherent backscattering of light by disordered media.” *J. Phys. France* **49** : 77–98 (1988).
- [70] B. A. van Tiggelen. *Multiple scattering and localization of light*. Ph.D. thesis, Universiteit van Amsterdam (1992).
- [71] D. S. Wiersma, M. P. van Albada, B. A. van Tiggelen and A. Lagendijk. “Experimental evidence for recurrent multiple scattering events of light in disordered media.” *Phys. Rev. Lett.* **74** : 4193–4196 (1995).
- [72] J. Dalibard, J.-M. Raimond and J. Zinn-Justin, editors. *Les Houches 1990 summer school on fundamental systems in quantum optics*, Amsterdam (1992). North-Holland.
- [73] C. Cohen-Tannoudji, G. Grynberg and J. Dupont-Roc. *Processus d’interaction entre photons et atomes*. InterEditions/Editions du CNRS, Paris (1988).
- [74] M. P. van Albada, M. B. van der Mark and A. Lagendijk. “Observation of weak localization of light in a finite slab : anisotropy effects and light-path classification.” *Phys. Rev. Lett.* **58** : 361–365 (1987).
- [75] E. Akkermans, P. E. Wolf and R. Maynard. “Coherent backscattering of light by disordered media : Analysis of the peak line shape.” *Phys. Rev. Lett.* **56** : 1471–1474 (1986).
- [76] M. van Albada and A. Lagendijk. “Vector character of light in weak localization : spatial anisotropy in coherent backscattering from a random medium.” *Phys. Rev. B* **36** : 2353–2356 (1987).
- [77] M. B. van der Mark, M. P. van Albada and A. Lagendijk. “Light scattering in strongly scattering media : Multiple scattering and weak localization.” *Phys. Rev. B* **37** : 3575–3592 (1988).
- [78] D. S. Wiersma. *Light in strongly scattering and amplifying random media*. Ph.D. thesis, Universiteit van Amsterdam (1995).
- [79] M. Born and E. Wolf. *Principles of optics*. Pergamon press (1980).
- [80] E. Amic, J. M. Luck and T. M. Nieuwenhuizen. “Multiple Rayleigh scattering of electromagnetic waves.” *J. Phys. I France* **7** : 445–483 (1997).
- [81] T. M. Nieuwenhuizen and J. M. Luck. “Skin layer of diffusive media.” *Phys. Rev. E* **48** : 569 (1993).

- [82] V. D. Ozrin. “Exact solution for coherent backscattering of polarized light from a random medium of rayleigh scatterers.” *Waves in random media* pp. 141–164 (1992).
- [83] E. E. Gorodnichev, S. L. Dudarev and D. B. Rogozkin. “Coherent wave backscattering by random medium. Exact solution of the albedo problem.” *Phys. Lett. A* **144** : 48–54 (1990).
- [84] H. B. G. Casimir. “On Onsager’s principle of microscopic reversibility.” *Rev. Modern Phys.* **17** : 343–350 (1945).
- [85] B. A. van Tiggelen and R. Maynard. “Reciprocity and coherent backscattering of light.” In R. Burridge, G. Papanicolaou and L. Pastur, editors, *Waves in random and other complex media*, pp. 247–271, Berlin (1997). Springer-Verlag.
- [86] C. A. Müller, T. Jonckheere, C. Miniatura and D. Delande. “Weak localization of light by cold atoms : the impact of quantum internal structure.” submitted to *Phys. Rev. A*.
- [87] M. C. W. van Rossum and T. M. Nieuwenhuizen. “Multiple scattering of classical waves : microscopy, mesoscopy and diffusion.” *Rev. Modern Phys.* **71** : 313–371 (1999).
- [88] M. B. van der Mark. *Propagation of light in disordered media : A search for Anderson localization*. Ph.D. thesis, Universiteit van Amsterdam (1990).
- [89] J. Dalibard. *Etude théorique et expérimentale des corrélations temporelles entre photons de fluorescence : effet d’une sélection en fréquence*. Ph.D. thesis, Université Paris 6 (1981).
- [90] A. R. Edmonds. *Angular momentum in quantum mechanics*. Princeton University Press, Princeton (1960).
- [91] L. D. Landau and E. M. Lifchitz. *Mécanique quantique : théorie non-relativiste*. Editions Mir, Moscou (1966).
- [92] G. Labeyrie. Communication privée (2001).
- [93] V. B. Berestetskii, E. M. Lifshitz and L. P. Pitaevskii. *Quantum electrodynamics*. Butterworth-Heinemann, Oxford (1982).
- [94] F. C. MacKintosh and S. John. “Coherent backscattering of light in the presence of time-reversal-noninvariant and parity-nonconserving media.” *Phys. Rev. B* **37** : 1884–1897 (1988).
- [95] A. S. Martinez and R. Maynard. “Faraday effect and multiple scattering of light.” *Phys. Rev. B* **50** : 3714–3732 (1994).
- [96] C. A. Müller, T. Jonckheere, C. Miniatura and D. Delande (). to be published.
- [97] C. A. Müller. “Localisation faible de la lumière dans un gaz d’atomes froids : rétrodiffusion cohérente et structure quantique interne.” Thèse de doctorat (2001).

- [98] D. M. Brink and G. R. Satchler. *Angular momentum*. Clarendon press, Oxford (1968).
- [99] K. Blum. *Density matrix theory and applications*. Plenum press, New York (1981).
- [100] R. Lenke and G. Maret. “Multiple scattering of light : Coherent backscattering and transmission.” In W. Brown, editor, *Scattering in Polymeric and Colloidal Systems*. Gordon and Breach Science Publishers (2000).

Summary

This thesis is composed of two distinct parts, concerning wave scattering in atomic media. The first part studies the problem of the excited levels of a non-hydrogenic atom in an external field. When one is interested in the excited levels, a non-hydrogenic atom in an external field is very similar to the hydrogen atom in the same external field, but is a more complex system due to the scattering of the electronic wave on the non-hydrogenic ionic core. It is shown in this first part that the ionic core can be mathematically represented by one or by several point scatterers. This gives an equation which allows to calculate the energy levels of the system from those of a hydrogen atom in the same external field very efficiently, and to deduce the levels statistics of this system, given those of the hydrogen problem.

The second part studies the problem of multiple scattering of a light wave in an atomic medium, and especially the coherent enhancement of backscattering by a cold atomic gas. Coherent backscattering is an interference effect between pairs of multiple scattering paths, and is a well-studied phenomenon for classical scatterers. In this second part, it is shown that taking into account the atomic internal structure is essential for the understanding of coherent backscattering by an atomic medium, and leads to a significant decrease of the observable enhancement factors. An explicit calculation is given for single and double scattering by atoms, accompanied by a comparison to recent experimental data.

Résumé

Ce travail de thèse comporte deux parties distinctes, concernant la diffusion d'ondes en milieu atomique. La première partie étudie le problème des niveaux excités d'un atome non-hydrogénoïde en champ extérieur. Ce système est très similaire au cas de l'hydrogène dans le même champ extérieur, mais est plus complexe à cause de la diffusion de l'onde électronique sur le cœur ionique non-hydrogénoïde. On montre dans cette première partie que la présence du cœur ionique est mathématiquement équivalente à celle d'un ou plusieurs diffuseurs ponctuels. Ceci permet d'obtenir une équation qui, d'une part, autorise un calcul efficace des niveaux d'énergie du système à partir de ceux pour l'atome d'hydrogène dans le même champ extérieur, et qui d'autre part mène à la prédiction des propriétés statistiques des niveaux d'énergie du système, en fonction de celles du système hydrogénoïde correspondant.

La deuxième partie est consacrée au problème de la diffusion multiple d'une onde lumineuse en milieu atomique, et en particulier à l'étude de l'augmentation cohérente de la rétrodiffusion par un gaz d'atomes refroidis. L'augmentation cohérente de la rétrodiffusion est un effet d'interférence entre des paires de chemins de diffusion multiple, et est un phénomène bien étudié pour des diffuseurs classiques. Dans cette deuxième partie, nous montrons que la prise en compte de la structure interne atomique est essentielle pour la compréhension de la rétrodiffusion cohérente par un milieu atomique, et mène à une diminution significative des facteurs d'augmentation observables. Un calcul explicite de la diffusion simple et de la diffusion double par des atomes est donné, et les résultats sont comparés à des données expérimentales récentes.