

ORSAY
n° d'ordre :

UNIVERSITE DE PARIS-SUD
CENTRE D'ORSAY

THESE

présentée
Pour obtenir

Le GRADE de DOCTEUR EN SCIENCE

Par

Nadia BOULOUFA

Sujet :

**De la régularité au chaos :
Etude de l'atome de Lithium en présence
d'un champ magnétique intense**

Soutenue le : *26 Janvier 1993* devant la commission d'examen

MM	P. GLORIEUX	Président
	J.P. CONNERADE	
	D. DELANDE	Rapporteur
	C. DELSART	
	J. PINARD	
	J.P. PIQUE	Rapporteur
	P. CACCIANI	Membre invité

A mes parents

*A violent order is disorder and a great disorder
is order. These two things are one.*

Remerciements

Ce travail a été effectué au laboratoire Aimé Cotton où toute l'équipe des "Rydbergs en champ magnétique" m'a accueillie avec gentillesse.

Je remercie vivement C.Delsart, mon directeur de thèse, et J.Pinard qui ont guidé ce travail avec efficacité et m'ont fait profiter de leurs connaissances scientifiques tout au long de cette thèse.

Je tiens à exprimer ma gratitude et mes sincères remerciements à P.Cacciani, pour le soutien continu qu'il m'a toujours apporté sans ménager nullement ses efforts. Sa disponibilité, son efficacité, ses conseils et ses critiques (souvent sévères) m'ont été très utiles. Merci encore, Patrice.

E.Luc a gentiment accepté de m'initier aux calculs théoriques. Sa rigueur et son discernement scientifiques m'ont été très utiles, particulièrement lors de la rédaction de ce mémoire. Je la remercie beaucoup.

Je ne saurais oublier D.Delande et J.C.Gay pour leur collaboration théorique fructueuse. Les discussions que nous avons eues ensemble ont été très enrichissantes pour moi. Je tiens à leur exprimer ma profonde reconnaissance.

Je tiens vivement à remercier P.Glorieux d'avoir accepté de présider le jury de cette soutenance de thèse.

D.Delande et J.P.Pique ont accepté le rôle prenant de rapporteurs. Je les en remercie vivement.

Je remercie également J.P.Connerade pour l'intérêt qu'il a porté à ce travail en acceptant de participer au jury.

Nordine a toujours été présent à mes côtés lors de cette thèse. Je le remercie particulièrement d'avoir supporté toute ma mauvaise humeur de "thésarde en rédaction".

Mes "deux copains de bouffe" Aziz et Saïda ont toujours su trouver le mot qu'il fallait pour m'aider durant cette thèse. Je les en remercie chaleureusement.

Je tiens enfin à remercier toutes les personnes du laboratoire qui de façon directe ou indirecte ont participé à ce travail.

FROM REGULARITY TO CHAOS: STUDY OF LITHIUM ATOM IN A STRONG MAGNETIC FIELD

Abstract:

Our study is devoted to the system: atom + magnetic field which is a simple, real, quantum system in which classical dynamics can display chaotic trajectories. This system is then a prototype for the study of what we call "quantum" chaos. Its simplicity allows almost complete classical and quantum studies and its reality, the possibility of an experiment.

We have performed an experiment on lithium atom in the presence of a strong magnetic field of 4.9 T using multistep laser excitation of high lying levels. In this experiment, the excitation scheme is designed to benefit of the approximate dynamical symmetries of diamagnetism. The corresponding selection rules explain the great simplicity of the spectrum in the regular region. The complexity observed at a given energy is a consequence of the breakdown of the validity of the symmetry and can be linked to the appearance of chaotic classical trajectories. The recorded experimental spectrum shows a remarkably good agreement with the calculated one for hydrogen.

Introduction	13
CHAPITRE I	
L'atome d'hydrogène en champ magnétique: Etude théorique	
Introduction	25
A. L'atome d'hydrogène isolé	25
I. Traitement classique	26
1. Généralités	26
2. Equivalence avec deux oscillateurs harmoniques	27
3. Variables action angle	30
II. Traitement quantique	32
1. Hamiltonien et constantes du mouvement.	32
2. Séparabilité en coordonnées Semi-paraboliques. Equivalence avec deux oscillateurs harmoniques	33
III. Le groupe de symétrie dynamique du problème de Coulomb	34
1. Définition et propriétés d'une algèbre de symétrie $SO(n)$	34
2. Algèbre $SO(4)$ pour l'atome d'hydrogène	35
3. Le groupe dynamique $SO(2,2)$ du système oscillateur	37
a. Le groupe dynamique $SO(2,1)$ de l'oscillateur harmonique à 2D	38
b. Le groupe dynamique $SO(2,2)$ du système oscillateur. Application à l'étude de l'atome d'hydrogène	39
c. Fonctions d'ondes Sturmiennes	43
B. En champ magnétique	44
I. Généralités	44
1. Hamiltonien. Passage au référentiel de Larmor	44
2. Non séparabilité. Non intégrabilité	45
3. Invariance d'échelle	46
a. Mise en évidence	46

b. Différents régimes de dynamique classique	49
c. Non validité en mécanique quantique	50
II. Régime de champs faibles. Dynamique classique régulière	50
1. Traitement classique	50
a. Approximation séculaire	51
b. Coordonnées semi paraboliques. Equivalence avec deux oscillateurs harmoniques à 2D couplés	54
c. Variables action angle	54
2. Traitement quantique	57
a. Equivalent quantique de l'approximation séculaire classique	58
b. Le multiplet diamagnétique	59
- Structure	59
- La base parabolique et les états vibrationnels	61
- La base " lambda " et les états rotationnels	62
III. Régime de champs forts. Dynamique classique chaotique	62
1. Traitement classique	63
a. Trajectoires dans l'espace réel. Coordonnées cylindriques	63
b. Variables dynamiques	65
- Variables dynamiques canoniques	65
- Equations d'évolution	67
- Méthode de résolution. Simulations numériques	67
c. Section de Poincaré	68
- définition	68
- Application à l'atome d'hydrogène en champ magnétique	69
2. Traitement quantique	72
a. Principe des simulations numériques	72
b. Diagramme d'énergie	75

c. Statistique de niveaux	79
C. Conclusion du chapitre	80

CHAPITRE II

Excitation sélective pour l'observation de la transition vers le chaos.

Introduction	83
A. Choix de l'excitation optique	84
I. Excitation à partir d'un niveau profond	84
II. Simulation d'une excitation sélective	88
1. Projection sur la base Lambda	88
2. Projection sur la base parabolique	89
3. Conséquences expérimentales	91
III. Excitation sélective à partir d'un état excité	92
1. Cas des champs faibles	92
2. Cas des champs forts	94
B. Les atomes alcalins en présence d'un champ magnétique	97
I. Champ magnétique très faible	98
II. Zone d'inter l-mixing (champ faible)	98
III. Zone d'inter n-mixing (champ moyen)	101
C. Principe d'une expérience à trois étages sur le lithium: Justification des choix	101
I. Le lithium	101
II. Le jet atomique	102
III. La détection	104
IV. L'excitation à 3 étages	105
V. Calibration	107

1. Energie	107
2. Champ magnétique	107
D. Etude détaillée des transitions mises en jeu	108
I. La transition $2s \rightarrow 2p$	108
II. La transition intermédiaire $2p \rightarrow n=10$	109
1. Effet d'un champ électrique appliqué parallèlement au champ magnétique	113
2. La méthode de débranchement adiabatique du champ	115
E. La transition finale ($n=10 \rightarrow$ état de Rydberg)	120
I. Régime de champ faible	120
1. Transition sélective	120
2. Choix des polarisations	123
a. Excitation vibrationnelle	123
b. Excitation rotationnelle	127
II. Régime de champ intense	129

CHAPITRE III

Description du dispositif expérimental

Introduction	131
A. Le jet atomique	132
I. Le pompage	132
II. Production du jet atomique	134
B. Zone d'interaction	137
C. Détection	138
I. Le détecteur	138
II. Traitement et acquisition du signal	139

D. Lasers	141
I. Le laser continu	141
1. Un laser à colorant	141
2. Un laser à diode	142
a. La diode libre	144
b. La diode à cavité étendue	145
- Choix du réseau	145
- Réduction de la largeur spectrale et balayage en fréquence	148
c. Eléments sélecteurs	149
- Variation de i à L_0 fixé	151
- Variation de L_0 à i fixé	153
d. Asservissement sur la transition $2s \rightarrow 2p$	154
II. Les systèmes lasers pulsés monomodes à injection	155
1. Description du système	156
a. La cavité à double excitation en anneau	156
b. Asservissement du laser à colorant	157
c. Balayage du laser à colorant	158
2. Le système d'amplification	159
3. Doublage de fréquence : génération d'UV avec le système laser compulsé à cavité linéaire	160
E. L'horloge centrale	160
F. Génération d'IR lointain	161
I. Par effet Raman	161
1. Principe	161
2. Gain Raman (exemple du premier Stokes)	163
3. Génération du 3 ^{ème} Stokes: mélange à quatre ondes	165
4. Application expérimentale	167

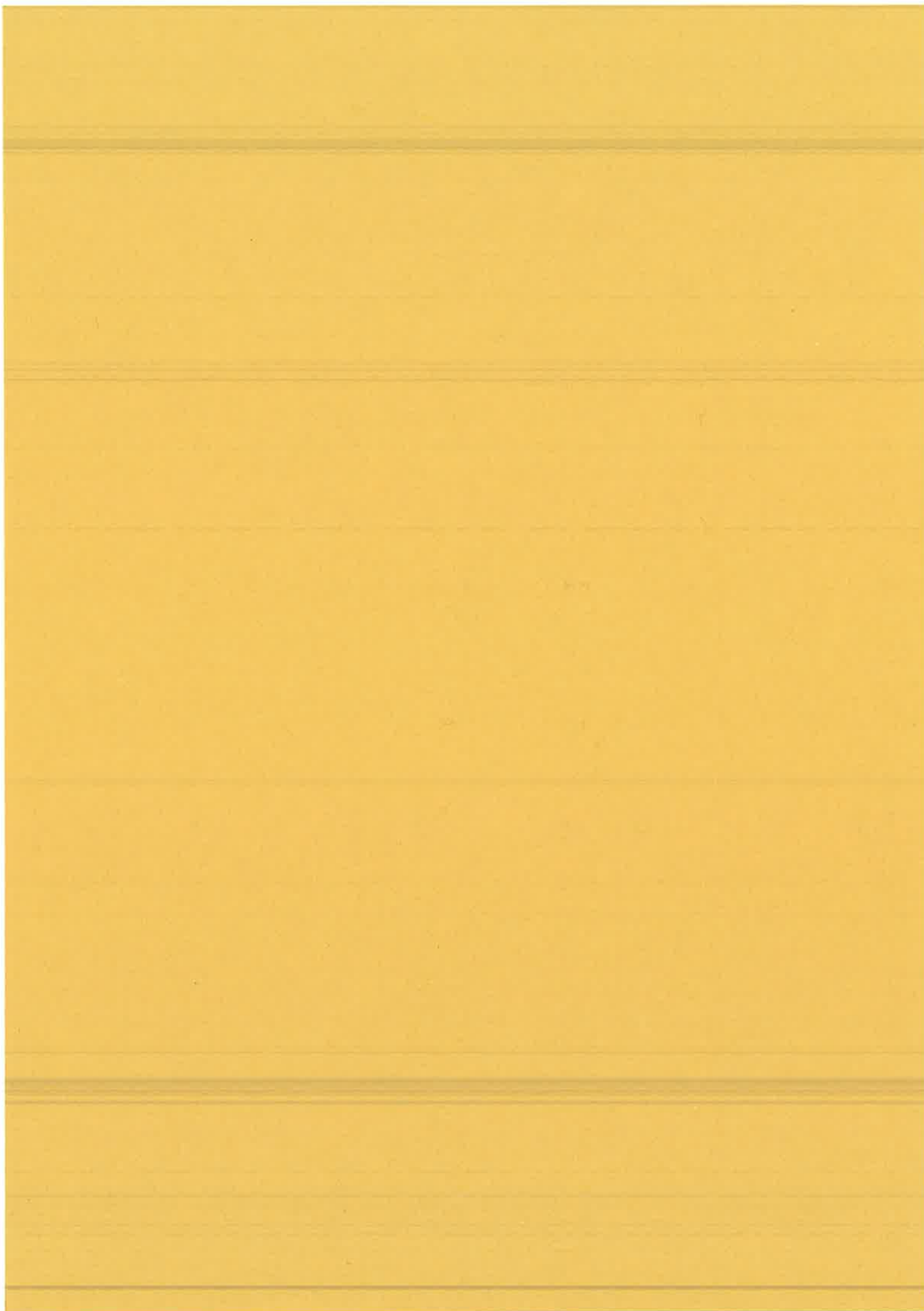
a. Description détaillée de la cellule Raman	167
b Intérêt du capillaire	170
c. Résultats expérimentaux obtenus	170
II. Par mélange de fréquences dans un cristal	173

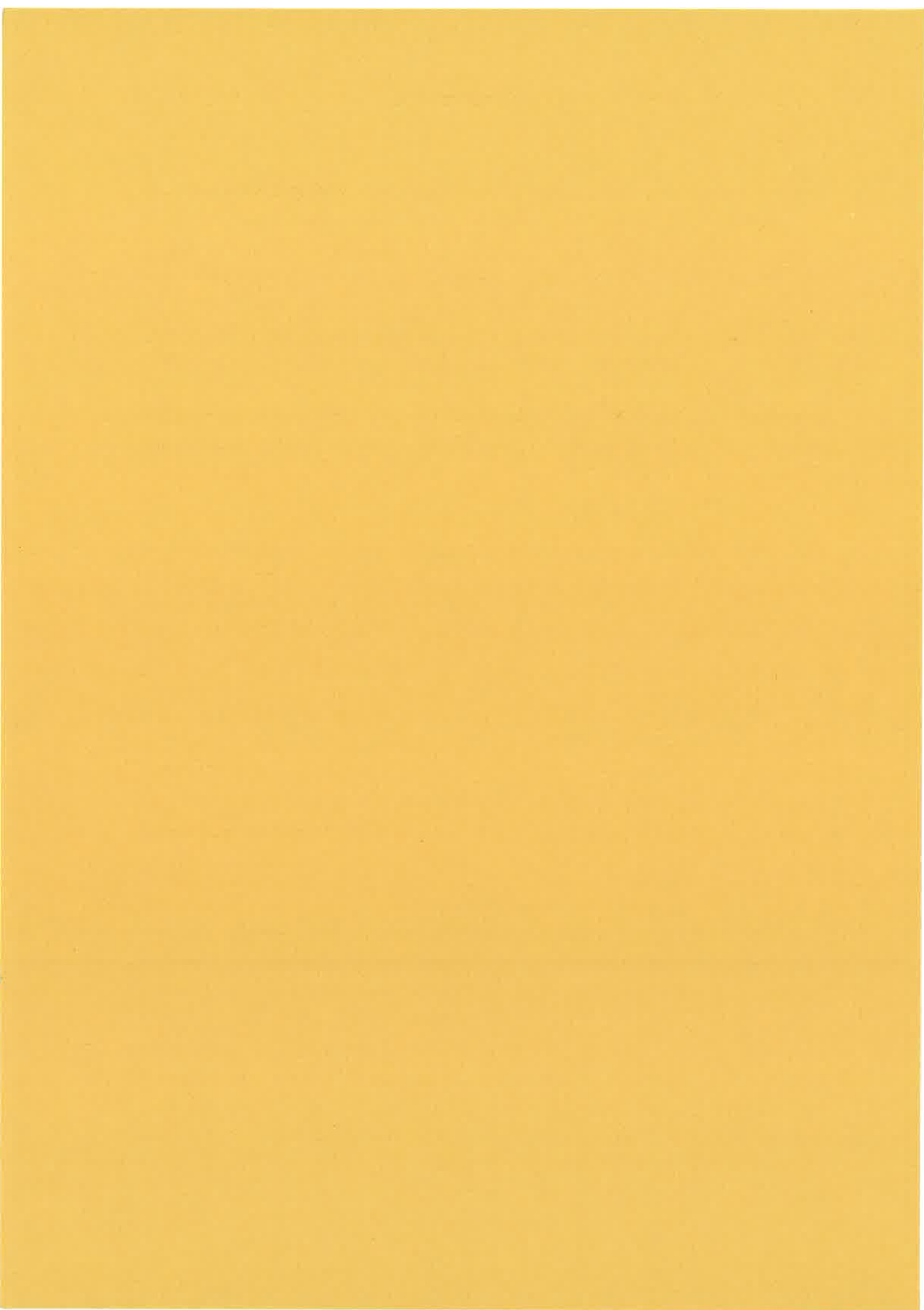
CHAPITRE IV

Résultats expérimentaux et interprétation

Introduction	177
A. La raie de résonance $2s \rightarrow 2p$ du lithium	178
A.I. Etude de la transition sans champ magnétique	180
A.I.1. Effet sur le niveau fondamental $2s$	181
A.I.2. Effet sur le niveau excité $2p$	182
A.I.3. Résultats expérimentaux	183
A.I.4. Structure de la transition $2s \rightarrow 2p$ en présence d'un champ magnétique fort	194
A.II. Interactions d'un champ magnétique	196
A.II.1. Etude du niveau $2s$	196
a) effet du W_z	196
b) effet de W_F	197
c) effet de W_{hf}	197
A.II.2. Etude du niveau $2p$	198
a) Effet de $W_z + W_{so}$	198
b) Effet de W_{zn} et de W_{hf}	199
A.II.3. Structure de la transition $2s \rightarrow 2p$	200
B. Préparation de l'état de départ $n = 10$	204
B.I. Multiplet diamagnétiques ($n = 10 \ M = 1$) et ($n = 10 \ M = 0$)	205

B.II. Multiplets diamagnétiques ($n = 10$ M) en présence d'un champ électrique	207
B.III. Multiplet Stark ($n = 10$, M)	211
B.IV. Vérification de l'état de départ obtenu par Stark switching	215
B.V. Champ de compensation	218
C. Spectres Vibrationnels et Rotationnels	221
C.I. Spectre Vibrationnel	222
C.I.1. Résultats Expérimentaux	222
C.I.2. Analyse du Spectre Expérimental	226
C.I.3. Calcul du Spectre Théorique	231
C.I.4. Discussion	239
C.II. Spectre Rotationnel	240
C.II.1. Résultat Expérimental	241
Conclusion générale	245





Jusqu'aux années soixante-dix l'étude des systèmes dynamiques c'est à dire des phénomènes dépendant du temps, s'était arrêtée là où commençait le désordre, c'est à dire là où l'évolution du système prenait une apparence totalement désordonnée (erratique) rendant impossible toute description scientifique. Presque simultanément des mathématiciens, des physiciens, des biologistes, des chimistes et des économistes ont osé poser un premier pas dans ce monde inexploité: depuis une science nouvelle se développe que l'on a qualifiée de non linéaire, de turbulente ou de chaotique et qui a pour objet l'étude "du chaos déterministe" par opposition à l'étude du "chaos stochastique" engendré par des phénomènes aléatoires, erratiques, tels que les fluctuations thermiques ou le mouvement brownien. Les physiciens ont alors sorti de leurs tiroirs de nombreux problèmes non résolus, tels que la turbulence, que toutes les lois existantes jusqu'ici avaient échoué à expliquer.

Les systèmes chaotiques sont décrits par des lois parfaitement déterministes, dont la forme souvent non linéaire et non homogène rend impossible une intégration analytique exacte. La connaissance exacte du système à un instant donné ne permet pas de prédire son évolution ultérieure pour des temps longs. Seule une connaissance approchée de cette évolution est possible grâce à l'intégration numérique des équations du mouvement. Des conditions initiales infiniment proches peuvent entraîner des différences d'évolution considérables divergeant exponentiellement avec le temps; on a baptisé cela "la sensibilité aux conditions initiales". Ceci signifie que la séparation entre deux conditions initiales proches $\Delta x(t_0)$ croit exponentiellement au cours du temps: $\Delta x(t) \approx \Delta x(t_0) e^{\lambda t}$ ($\lambda > 0$). Cette notion a des conséquences expérimentales extrêmement importantes, les inévitables incertitudes sur la mesure des conditions initiales sont rapidement amplifiées et on ne peut plus prédire expérimentalement l'état futur du système bien que celui-ci soit théoriquement calculable.

Il convient de faire une distinction nette entre systèmes décrits par une dynamique irréversible ou réversible associés respectivement à des équations non invariantes ou invariantes par renversement du temps. Pour les premiers qui sont qualifiés de dissipatifs, le frottement entraîne une perte continue d'énergie au cours du temps. Leur dynamique est caractérisée par l'existence d'un "attracteur", c'est à dire d'une limite asymptotique des solutions aux temps longs, limite sur laquelle la condition initiale n'a pas de prise directe. Cette notion d'attracteur simplifie substantiellement l'étude puisqu'elle permet de ne pas considérer le régime transitoire et de se concentrer sur l'étude du régime asymptotique [BER84]. Une telle démarche est inapplicable à l'analyse

des systèmes hamiltoniens pour lesquels l'absence d'attracteur confère à la condition initiale une influence déterminante. Selon que le hamiltonien qui les décrit est indépendant ou dépendant du temps ces systèmes sont dits conservatifs ou non. Un exemple type de système hamiltonien non conservatif et chaotique est l'atome d'hydrogène plongé dans un champ microonde.

Les systèmes chaotiques les plus étudiés expérimentalement et théoriquement sont les systèmes dynamiques dissipatifs. Nous nous intéresserons au contraire au chaos hamiltonien dans des systèmes conservatifs décrits par une fonction de Hamilton indépendante du temps, mais dépendant des coordonnées d'espace généralisées notées (q_i) et de leurs moments généralisés canoniquement conjugués notés (p_i) . A un instant donné, l'état du système est caractérisé par un point de l'espace des phases (q_i, p_i) et l'évolution au cours du temps du système est représentée par une courbe de cet espace appelée "trajectoire de phase". Le nombre de degrés de liberté n d'un tel système hamiltonien est égal au nombre de variables de position indépendantes; l'espace des phases a alors une dimension $2n$ correspondant au nombre de conditions initiales ($t=0$) que l'on peut choisir indépendamment et la trajectoire de phase s'inscrit sur une surface de dimension $(2n-1)$, puisque l'énergie se conserve au cours du temps.

La conservation de l'énergie a pour conséquence la conservation des volumes dans l'espace des phases au cours du mouvement (théorème de Liouville): un ensemble de conditions initiales occupant un élément de volume $\delta q_i \delta p_i$ de l'espace des phases occupera un volume de même mesure (dans l'espace des phases) au cours de l'évolution. Cette conservation peut être assurée de deux manières:

- Soit l'élément de volume ne se déforme pas de façon substantielle et deux trajectoires de phase initialement proches restent toujours dans le voisinage l'une de l'autre: de telles trajectoires sont dites stables et la dynamique associée est régulière.

- Soit l'élément de volume s'allonge exponentiellement dans une direction comme $e^{\lambda t}$ ($\lambda > 0$) et se contracte comme $e^{-\lambda t}$ dans la direction perpendiculaire; la trajectoire est alors instable car un faible écart initial va s'amplifier exponentiellement au cours du temps donnant naissance à une dynamique chaotique appelée parfois "stochasticité intrinsèque".

Pour un système à n degrés de liberté, s'il existe une suite de transformations canoniques changeant (p_i, q_i) en une nouvelle série de variables canoniques conjuguées (I_i, θ_i) appelées variables action-angle telles que la fonction de Hamilton ne dépende plus

que de I_i , alors le système possède n constantes du mouvement I_i et les variables θ_i deviennent des variables cycliques du temps [GUT90]. La trajectoire de phase se déplace sur une surface de dimension $2n-n=n$ qui a la topologie d'un tore. Le mouvement est alors dit régulier ou intégrable. Tout système conservatif à un degré de liberté a une dynamique classique régulière puisque l'énergie est une constante du mouvement. De plus tout système à n degrés de liberté séparable est intégrable puisqu'il peut être découpé en n systèmes à un degré de liberté.

Si pour un système hamiltonien à n degrés de liberté ($n \geq 2$), il existe au plus $(n-1)$ constantes du mouvement, y compris l'énergie, le système explore une surface de l'espace des phases de dimension au moins égale à $(n+1)$ qui n'a pas la topologie d'un tore. Le mouvement est alors irrégulier et non intégrable et le système est dit chaotique.

Un exemple particulièrement intéressant est celui des systèmes dits quasi-intégrables décrits par une fonction de Hamilton du type $H = H_0(p_i, q_i) + \epsilon H_1(p_i, q_i)$ où H_0 est intégrable et où ϵH_1 est une perturbation responsable de la non intégrabilité de H . Dans un tel système, il peut exister des portions de l'espace des phases régulières et d'autres chaotiques. Quand le paramètre ϵ croît, la portion chaotique de l'espace des phases (nulle pour $\epsilon = 0$) augmente régulièrement et les tores décrivant le régime régulier ($\epsilon = 0$) sont peu à peu détruits. La transition vers le chaos se fait sans effet de seuil [HAR83].

L'espace des phases associé à un système conservatif chaotique est au moins de dimension 4; se pose alors le problème de visualisation des trajectoires dans cet espace. Pour simplifier ce problème et visualiser sous une forme commode les trajectoires de phase, on définit l'application de Poincaré qui associe à chaque trajectoire, les points d'intersection avec un plan de coupe à deux dimensions, l'ensemble de ces points forme une section dite de Poincaré. Dans le cas du régime régulier (et donc d'existence du tore) les points de la section se répartissent sur une courbe fermée régulière. Dans le régime totalement chaotique les points de la section sont répartis sur tout le plan de façon ergodique. Pour les systèmes quasi-intégrables où l'existence d'un régime mixte régulier-chaotique est possible, la section de Poincaré correspondante est un mélange de zones où les points sont répartis sur des courbes fermées et d'autres où cette répartition est ergodique.

Dans la théorie quantique, l'évolution du système est décrite par l'équation de Schrödinger, qui est linéaire et homogène et dont les solutions sont des fonctions

stationnaires du temps. Dans cette théorie, le principe d'incertitude (gouverné par la constante de Planck) anihile la notion de conditions initiales infiniment voisines et le problème d'évolution aux temps longs du système ne se pose plus (puisque les solutions de l'équation de Schrödinger étant des fonctions stationnaires).

Se posent donc les questions suivantes: peut on déceler dans des mesures de nature quantique telles que l'énergie et la probabilité d'excitation optique, des caractéristiques communes pour des systèmes dont la dynamique classique est chaotique? Dans le cas d'un système quasi-intégrable, peut on observer l'apparition progressive de ces caractéristiques lorsque le système passe classiquement d'un régime régulier à un régime chaotique?

La première méthode de caractérisation du "chaos quantique" fut développée dans le contexte de la physique nucléaire par Dyson et Mehta [DYS63]. Cette méthode consiste en une étude statistique des écarts d'énergie entre niveaux voisins pour des systèmes dont la dynamique classique est chaotique.

Pour les systèmes intégrables ayant plus d'un degré de liberté, les propriétés statistiques des niveaux d'énergie s'interprètent comme celles de niveaux disposés aléatoirement et sans interaction. En particulier l'histogramme des écarts entre niveaux d'énergie est bien décrit par une simple exponentielle décroissante, traduisant l'absence de corrélations entre niveaux: cette distribution est celle de Poisson. Cet histogramme maximum à l'origine, traduit l'existence plus probable d'écarts d'énergie faibles entre niveaux voisins; ceci est la marque de dégénérescences de niveaux dans le spectre.

Dans le cas des systèmes classiquement chaotiques, l'histogramme des distributions d'écarts d'énergie entre niveaux successifs, est bien reproduit par un modèle de matrices aléatoires orthogonales [BOH84] dont l'idée générale consiste à simuler le hamiltonien du système en remplaçant ses éléments de matrice par des variables aléatoires réelles indépendantes distribuées au hasard (avec une distribution gaussienne). Une telle distribution est très proche de celle de Wigner; l'histogramme associé, minimum à l'origine traduit une répulsion des niveaux d'énergie qui se traduit par l'absence de dégénérescences dans le spectre.

Le régime mixte régulier-chaotique qui est un des régimes possibles du comportement classique des systèmes quasi-intégrables est caractérisé par une allure de la

distribution d'écarts d'énergie entre niveaux, intermédiaire entre la distribution de Poisson (régime régulier) et celle de Wigner (régime chaotique).

Après avoir Testé avec succès cette caractérisation quantique du chaos classique sur des modèles chaotiques de type oscillateurs couplés et billards, Bohigas et son équipe concluent que cette propriété devait être plus générale et valable pour tous les systèmes chaotiques.

Un certain nombre de systèmes hamiltoniens ayant un nombre de degrés de liberté faible et présentant une dynamique classique chaotique ont été étudiés dans le passé. Les billards à deux dimensions dans lesquels une particule se meut librement dans un domaine limité du plan entre deux rebonds élastiques sur les parois [SIN70, BEN84], des oscillateurs harmoniques ou anharmoniques couplés anharmoniquement [PUL84, HAL86] sont des exemples de tels systèmes. Nous nous intéresserons au problème de l'atome d'hydrogène en présence d'un champ magnétique qui est un exemple du même type.

Par contraste aux autres systèmes cités l'atome d'hydrogène dans un champ magnétique n'est pas un modèle abstrait mais un système physique réel qui peut être étudié en laboratoire [HOL86, CAC92]. De plus un tel système est par excellence un système quantique et seule une étude en termes de niveaux d'énergie et de probabilités d'excitation optique peut rendre compte des phénomènes observés. Qu'advient il alors du comportement quantique de ce système quand sous l'effet de la force diamagnétique la dynamique classique équivalente transite d'un régime régulier à un régime chaotique? Pour tenter de répondre à cette question le système étudié nous offre plusieurs avantages:

- Isolé, l'atome d'hydrogène est un exemple simple de système hamiltonien complètement intégrable: le mouvement de l'électron est régulier. Les trajectoires de phase s'enroulent sur des tores invariants.

- Quand à la force électrostatique de Coulomb liant l'électron au noyau, s'ajoute une force de Lorentz de symétrie cylindrique incompatible avec celle, sphérique, de la force de Coulomb; l'hamiltonien qui décrit le système devient non séparable dans les 13 systèmes de coordonnées qui séparent le Laplacien de l'atome libre. Les équations du mouvement associées deviennent non intégrables et la dynamique classique est chaotique. L'invariance par rotation autour de l'axe du champ magnétique réduit à deux le nombre de degrés de liberté du système et introduit la constante de mouvement L_z , ceci simplifie les

simulations numériques auxquelles on a recours pour résoudre les équations d'évolution du système.

Lorsque la force diamagnétique croît et prend de l'importance devant la force électrostatique, les tores invariants associés au mouvement régulier de l'électron sont progressivement détruits: le mouvement devient peu à peu chaotique.

- Il existe une invariance d'échelle pour le système. Pour étudier la dynamique classique de l'électron, il est inutile d'étudier le mouvement pour toutes les valeurs du champ magnétique et de l'énergie. La dynamique du système qui dépend à priori de ces deux grandeurs ne dépend en fait que du rapport: $\epsilon = E\gamma^{-2/3}$.

- La dynamique de l'électron de l'atome d'hydrogène plongé dans un champ magnétique est rigoureusement équivalente à celle d'une paire d'oscillateurs harmoniques à deux dimensions, isotropes, de même moment cinétique ($L_z = M$) et dont le mouvement radial est couplé par l'interaction diamagnétique qui joue le rôle d'un couplage anharmonique [DEL87].

L'utilisation des variables dynamiques décrivant chacun des deux oscillateurs (énergie et phase) conduit à une forme simple pour les équations d'évolution du système. La résolution numérique de ces équations permet d'étudier la dynamique classique de ce système pour diverses valeurs de ϵ , mettant en évidence la transition d'un comportement régulier à un comportement chaotique.

L'équivalence de l'atome d'hydrogène avec le système des deux oscillateurs simplifie aussi l'étude quantique du système tant en champ faible (comportement classique régulier) qu'en champ fort (comportement classique chaotique). La base de fonctions sturmiennes construite à l'aide du groupe $SO(2,2)$ (base propre du système des deux oscillateurs) permet de construire analytiquement la matrice associée à l'hamiltonien du système et d'obtenir (par diagonalisation) avec une très grande précision les valeurs propres et les états propres de plusieurs centaines de niveaux [WIN86a]. Ceci permet une étude statistique de distribution des niveaux d'énergie et une simulation de spectres d'excitation optique.

Les études de la dynamique classique en fonction du paramètre d'échelle ϵ basées sur la résolution numérique des équations de mouvement qui décrivent la dynamique du système et sur la représentation des trajectoires sur une section de

Poincaré de l'espace des phases [DEL'84, DEL86a] révélèrent trois régimes de comportement classique distincts du système:

($\epsilon < -0,54$) la dynamique du système est totalement régulière.

($-0,54 < \epsilon < -0,127$) la dynamique du système est mixte régulière-chaotique.

($\epsilon > -0,127$) la dynamique du système est totalement chaotique.

Ces études classiques constituent un point de départ très important pour l'étude de l'aspect chaotique du système.

- La valeur du rapport d'échelle ϵ pour laquelle la dynamique classique de l'électron devient complètement chaotique est négative et correspond à une énergie qui se situe dans la région liée du spectre ($E < 0$). Ceci rend possible l'étude expérimentale sur des raies fines et bien isolées du spectre dans un domaine d'énergie où classiquement toutes les trajectoires du système sont chaotiques.

- Le régime de champ intense où l'électron de l'atome présente un comportement chaotique est accessible pour des intensités de champ magnétique réalisables en laboratoire si on étudie des états de Rydberg suffisamment excités. Cette possibilité est primordiale car l'expérience permet d'apporter les éléments d'information qui permettent de répondre aux questions posées.

- Ce système prototype du "chaos quantique" a aussi le mérite d'avoir été l'objet de plusieurs études théoriques et expérimentales, et ces dernières aussi bien sous l'aspect classique que quantique. Ces études ont de plus été menées dans les trois régimes de champ possibles (régimes de comportement classique régulier, régulier-chaotique et chaotique).

Le hamiltonien d'interaction entre l'atome et le champ magnétique comprend deux termes:

- le terme paramagnétique linéaire en champ.

- le terme diamagnétique quadratique en champ.

Pour les champs magnétiques que l'on peut produire en laboratoire, le terme diamagnétique est négligeable pour des états peu excités mais joue un rôle déterminant

dans l'étude des états de Rydberg. Le comportement de l'atome dépend donc très fortement de l'importance de ce terme et est fonction non seulement de l'intensité du champ magnétique mais aussi du degré d'excitation de l'atome étudié.

Alors que l'effet Zeeman (du au terme paramagnétique de l'interaction) est connu depuis 1886, il a fallu attendre 1939 pour mettre en évidence expérimentalement l'existence de l'effet diamagnétique. Ceci fut réalisé par Jenkins et Segré [JEN 39] qui étudièrent des spectres d'absorption du sodium et du potassium en présence d'un champ magnétique de quelques Teslas.

Un autre tournant important dans "l'histoire quantique" de ce système (atome + champ magnétique) est du à la découverte expérimentale de Garton et Tomkins en 1969 [GAR69]. Cette expérience réalisée à basse résolution sur l'atome de baryum excité près de la limite d'ionisation et placé dans un champ magnétique de 2,4T est à l'origine de la découverte des résonances de quasi-Landau (modulations de période $1,5 \hbar \omega_c$ où ω_c est la pulsation cyclotron) qui surviennent dans le région d'énergie où les forces de Coulomb et de Lorentz sont du même ordre de grandeur.

La zone de champ faible où l'interaction diamagnétique se traite en perturbation par rapport à l'interaction coulombienne bénéficie de la possibilité de calculs effectués par diagonalisation de l'hamiltonien total sur une base d'états de dimension finie. Les résultats expérimentaux [CAC88a, CAC86a et CAC86b] sont en général bien reproduits par ces calculs

Cette région a fait l'objet d'études théoriques très poussées et une symétrie approchée a été mise en évidence d'abord par des méthodes classiques [ROB81] puis semi-classiques [PEN83, SOL81, DEL'83, BRA83]. Un formalisme quantique basé sur la théorie des groupes a permis une formulation simple de cette symétrie [DEL83].

Lorsque les interactions coulombienne et diamagnétique sont du même ordre de grandeur, on passe à la zone de quasi-Landau [GAR69] où aucun traitement perturbatif n'est valable. Cette région proche de la limite d'ionisation fût explorée expérimentalement à basse résolution par plusieurs équipes [GAY80, CAS80], les expériences réalisées sur différents atomes confirmèrent l'existence de modulations (résonances de quasi Landau) dans cette zone d'énergie.

La grande avancée dans les simulations numériques dans la région discrète du spectre atomique, permit dans les années 80 de générer les valeurs propres et les fonctions d'onde de l'électron de Rydberg de l'atome d'hydrogène en présence d'un champ magnétique dans les deux régimes de champ faible (comportement classique régulier) et intense (comportement classique chaotique) avec une précision relative excellente [DEL84]. Ceci n'est pas évident si l'on songe que dans le régime de champ intense le terme diamagnétique mélange tous les états du spectre de Coulomb y compris ceux du spectre continu. La comparaison raie par raie des spectres expérimentaux réalisés à haute résolution par l'équipe de K.H.Welge [HOL87, WIN86a] montre un accord impressionnant entre la théorie et l'expérience du moins dans la limite de la résolution spectrale expérimentale.

Si l'on fait une convolution d'un spectre théorique calculé, avec une gaussienne pour simuler un spectre expérimental avec faible résolution, on redécouvre dans la région du spectre où la dynamique de l'électron est chaotique, les célèbres résonances de quasi-Landau qui donnèrent au début des années soixante dix un regain d'intérêt au problème de l'atome plongé dans un champ magnétique.

Dans les années 86, on songea à tester sur les spectres théoriques de l'atome d'hydrogène en présence d'un champ magnétique, la méthode de statistiques d'écart d'énergie entre niveaux voisins: ce test était possible puisque on savait générer le spectre d'énergie. Au cours de cette année, parurent trois articles [DEL86b, WIN86b, WUN86] dans lesquels les propriétés statistiques d'écart d'énergie entre niveaux voisins du spectre de l'électron de l'atome d'hydrogène plongé dans un champ magnétique uniforme sont étudiées et comparées aux prédictions des théories statistiques. Indépendamment ces trois références confirmèrent que cette distribution est une distribution de Poisson dans la région du spectre où la dynamique classique correspondante est régulière ($\epsilon < -0,54$), et est une distribution de Wigner dans la région où cette dynamique est chaotique ($\epsilon > -0,127$). Par la suite, des études plus détaillées [HON89] de ces statistiques faites sur des spectres simulés pour des valeurs fixes du paramètre d'échelle, explorèrent la région d'énergie intermédiaire ($-0.5 < \epsilon < -0.127$) entre les régions régulière (Poisson) et chaotique (Wigner). Il semble très difficile sinon impossible de trouver une description quantitative des distributions d'écart d'énergie entre niveaux voisins dans ce régime de transition entre la régularité et le chaos total (correspondant à une dynamique classique mixte régulière-chaotique). Dans ce régime intermédiaire, il n'existe pas de loi universelle

(pour tous les systèmes quasi intégrables) qui permette de rendre compte de la distribution des écarts d'énergie entre niveaux voisins.

Sur le plan expérimental ces statistiques d'états n'ont jamais été établies pour l'atome d'hydrogène même dans le régime régulier. Cet atome qui est par excellence le système simple où l'on peut tout calculer, est très difficile à exciter optiquement. A défaut d'hydrogène, des expériences ont été menées sur l'atome de lithium. La dynamique de l'électron de Rydberg étant peu affecté par l'existence du coeur atomique, il s'ensuit que les caractéristiques de la transition vers le chaos sont à peu près identiques à celles de l'atome d'hydrogène [O'MA89]. Les calculs numériques correspondants sont évidemment plus difficiles. Des statistiques d'états dans le régime régulier ont été réalisées à partir de spectres expérimentaux de cet atome par D.Kleppner et son équipe [WEL89], utilisant une excitation optique par un laser continu à très haute résolution ($\approx 10^{-3} \text{ cm}^{-1}$): Ces statistiques sont en bon accord avec les prédictions numériques. A ce jour la distribution d'écarts d'énergie entre niveaux voisins dans le régime classiquement chaotique, n'a pu être expérimentalement établie. Ceci parce que les raies peu intenses noyées dans le bruit expérimental ne sont pas visibles et aussi parce qu'un champ électrique parasite aussi faible que quelques mV/cm suffit pour rajouter des raies et fausser complètement les statistiques.

Un autre traitement mathématique possible d'un spectre enregistré expérimentalement ou calculé théoriquement dans le régime de champ intense consiste à calculer sa transformée de Fourier [O'MA89, HOL86, HOL87] et à en tracer le carré en fonction de l'énergie. On retrouve grâce à cette méthode les fréquences des modulations qui surgissent dans cette partie du spectre où la dynamique classique du système est totalement chaotique. Ces fréquences sont étroitement liées aux périodes des trajectoires classiques fermées instables [HOL86] qui subsistent dans le régime classiquement chaotique. Les résonances de quasi-Landau ($1,5 \hbar\omega_c$) sont reliées aux trajectoires fermées de l'électron localisées dans le plan ($z=0$) perpendiculaire à l'axe du champ magnétique. D'autres résonances ont été mises en évidence, entre autres celles qui ont pour périodicité ($1,64 \hbar\omega_c$) et qui sont reliées aux trajectoires de l'électron ayant une localisation importante selon l'axe Oz du champ magnétique.

Le travail de thèse rapporté dans ce manuscrit a pour but la réalisation d'une expérience permettant d'obtenir des spectres montrant de façon directe (sans recours à un

traitement mathématique) la modification qui survient (sur ces spectres) au passage de la dynamique classique du système d'un régime régulier à un régime chaotique.

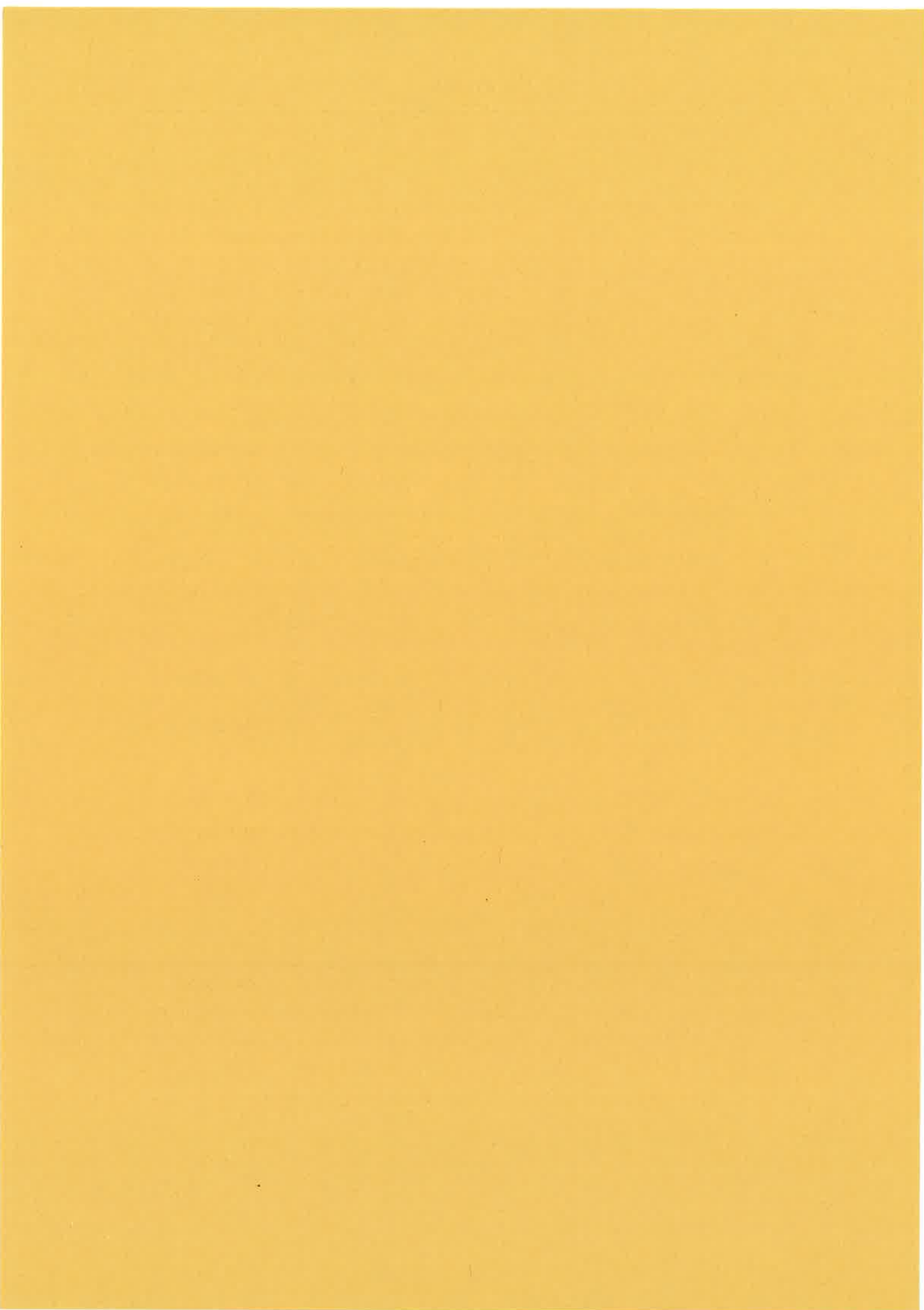
Dans le premier chapitre de ce mémoire nous présenterons une synthèse des résultats théoriques concernant le problème général de Coulomb en champ magnétique. Nous rappellerons les différents modèles théoriques classiques et quantiques approchés existants en précisant leur domaine de validité.

Le deuxième chapitre sera consacré à la recherche de l'excitation optique, qui permette de réaliser un spectre de l'atome de lithium aussi simple que possible dans la région d'énergie correspondant à une dynamique régulière. Ceci afin de rendre frappante la différence d'aspect du spectre dans les deux régions d'énergie qui correspondent à des comportements classiques différents.

Le troisième chapitre sera une description exhaustive et détaillée du dispositif expérimental.

Dans le dernier chapitre, nous exposerons les résultats expérimentaux obtenus et leur interprétation.





Ce chapitre est consacré à l'étude théorique de l'atome d'hydrogène isolé puis en présence d'un champ magnétique uniforme et indépendant du temps. Cette étude sera faite d'un point de vue classique et quantique dans les deux régimes de comportement classique distincts régulier et chaotique. L'importance des propriétés d'invariance du système par des transformations de symétrie sera mise en évidence. Cette étude a été le sujet de plusieurs articles et de plusieurs thèses notamment celle de D.Delande [DEL88], particulièrement détaillée. Je me restreindrai donc à cerner les notions dont la clarté m'apparaît nécessaire pour la compréhension de ce qui viendra dans le chapitre II.

Tout a commencé en 1969 avec les résonances de quasi-Landau [GAR69] dont la compréhension profonde a résisté à l'analyse jusqu' en 1985 où l' on se rendit compte que ces résonances sont reliées aux orbites périodiques instables qui persistent dans la région classiquement chaotique du système. Depuis le système atome d'hydrogène + champ magnétique connaît un regain d'intérêt puisque il est un des systèmes les plus simples dont la dynamique classique est chaotique et pour lequel des études expérimentales et des calculs numériques, comme on le verra dans la suite de ce chapitre, sont possibles.

Pour l'ensemble de ce chapitre, le noyau de l' atome d'hydrogène est considéré comme ponctuel, de masse infinie et placé à l'origine des coordonnées. De plus les effets relativistes sont négligés.

Dans tout ce chapitre on utilisera les unités atomiques pour exprimer les grandeurs qui permettent de décrire les comportements classique et quantique du système étudié. Dans toutes les formules qui apparaiteront dans la suite de ce chapitre on a substitué: $m = 1$, $\hbar = 1$, $q = -1$ (où m est la masse de l'électron et q sa charge).

A. L'atome d'hydrogène isolé.

L'atome d'hydrogène isolé est un système exceptionnel, presque toutes les grandeurs physiques intéressantes sont calculables analytiquement. Comme conséquence directe des propriétés de symétrie du problème de Coulomb, les niveaux d'énergie du spectre discret sont dégénérés; les trajectoires classiques correspondantes sont fermées et les énergies des niveaux ne dépendent que du nombre quantique principal.

A.I. Traitement classique.

A.I.1. Généralités.

Le hamiltonien de l'atome d'hydrogène en unités atomiques s'écrit comme suit :

$$H_0 = \frac{\mathbf{p}^2}{2} - \frac{1}{r}$$

où \mathbf{r} et \mathbf{p} sont les vecteurs position et impulsion de l'électron. Ce sont deux quantités conjuguées.

Le mouvement de l'électron est régi par l'équation (en u.a):

$$\frac{d^2 \mathbf{r}}{dt^2} = - \frac{\mathbf{r}}{r^3}$$

Les constantes du mouvement sont :

- L'énergie de l'électron E_0
- Le moment cinétique de l'électron $\mathbf{L} = \mathbf{r} \wedge \mathbf{p}$
- Le vecteur de Runge Lenz $\mathbf{A} = \mathbf{L} \wedge \mathbf{p} + \frac{\mathbf{r}}{r}$

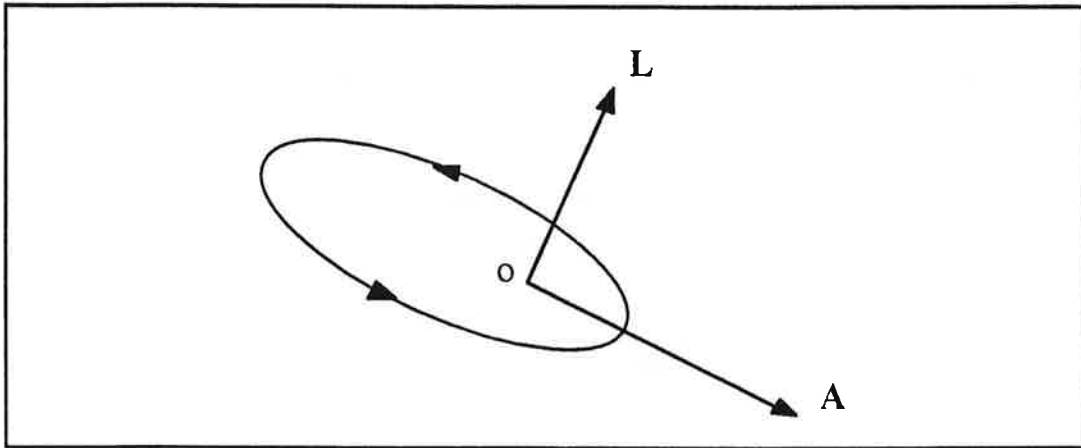
Il existe dans le problème trois constantes du mouvement indépendantes qui permettent de décrire toute la dynamique classique du système: le problème de Coulomb est donc complètement intégrable et sa dynamique est régulière.

\mathbf{r} étant perpendiculaire à la constante du mouvement \mathbf{L} , la trajectoire est contenue dans le plan perpendiculaire à \mathbf{L} . En choisissant la direction du vecteur de Runge Lenz \mathbf{A} comme axe de référence des coordonnées polaires de ce plan, l'équation de la trajectoire de l'électron est donnée par :

$$r = \frac{L^2}{1 + |\mathbf{A}| \cos \theta}$$

Suivant le module A de \mathbf{A} , la trajectoire est une ellipse ($A < 1$), une parabole ($A=1$) ou une hyperbole ($A > 1$) dont o est l'un des foyers. L'énergie de l'électron vérifie la relation suivante :

$$E_0 = \frac{A^2 - 1}{L^2}$$



Trajectoire classique elliptique de l'électron autour du noyau

Pour les énergies négatives les trajectoires sont des ellipses de Kepler contenues dans un plan perpendiculaire à L , le vecteur A est dirigé selon le grand axe de l'ellipse (cf schéma précédent), l'excentricité ϵ de l'ellipse est égale au module de A et le demi grand axe est lié à l'énergie par :

$$b = \frac{-1}{2E_0}$$

Le problème de Coulomb est un cas particulier de problème à champ central où les trajectoires bornées sont des ellipses et donc fermées. Cette propriété traduit une symétrie d'ordre supérieur contenue dans la conservation du vecteur de Runge Lenz A .

L'atome d'hydrogène isolé est un exemple type de système intégrable et donc présentant une dynamique complètement régulière. Ce système présente d'autres caractéristiques que l'on développera dans les paragraphes suivants et qui permettent de simplifier l'étude de sa dynamique.

A.I.2. Equivalence avec deux oscillateurs harmoniques.

L'atome d'hydrogène isolé est équivalent à un système de deux oscillateurs harmoniques isotropes à deux dimensions. Pour établir cette équivalence les coordonnées les plus judicieuses à utiliser sont les coordonnées semi-paraboliques (u, v, ϕ) définies comme suit:

$$(I.1) \begin{cases} u = \sqrt{r+z} \\ v = \sqrt{r-z} \\ \phi = \tan^{-1}(y/x) \end{cases}$$

Dans ce système de coordonnées le hamiltonien de l'atome d'hydrogène s'écrit de la façon suivante:

$$H_0 = \frac{p_u^2 + p_v^2}{2(u^2 + v^2)} + \frac{p_\phi^2}{2u^2 v^2} - \frac{2}{u^2 + v^2}$$

$$\dot{p}_\phi = -\frac{\partial H_0}{\partial \phi} = 0 \Rightarrow p_\phi = L_z = \text{constante}$$

Les équations du mouvement de ce système s'écrivent comme suit:

$$\dot{u} = \frac{\partial H_0}{\partial p_u} \quad \text{et} \quad \dot{v} = \frac{\partial H_0}{\partial p_v}$$

$$\dot{p}_u = -\frac{\partial H_0}{\partial u} \quad \text{et} \quad \dot{p}_v = -\frac{\partial H_0}{\partial v}$$

A cause du dénominateur en $1/(u^2+v^2)$ du hamiltonien, ces équations d'évolution ont des expressions compliquées. On va montrer que résoudre ces équations de mouvement revient à résoudre les équations du mouvement du nouveau hamiltonien H_0' qu'on définit de la façon suivante pour chaque énergie E_0 :

$$H_0' = (H_0 - E_0)(u^2 + v^2) = \frac{p_u^2 + p_v^2}{2} + \frac{p_\phi^2}{2u^2} + \frac{p_\phi^2}{2v^2} - 2 - E_0(u^2 + v^2)$$

Avant tout on va montrer que si on introduit un temps réduit τ , H_0' s'interprète comme un hamiltonien effectif associé au temps τ et que les équations d'évolution du système décrit par cet hamiltonien s'expriment très simplement en fonction de ce temps dit "temps oscillateur" et que l'on définit de la façon suivante:

$$\frac{d\tau}{dt} = \frac{1}{2r} = \frac{1}{u^2 + v^2}$$

Pour toute quantité classique f on a:

$$\frac{df}{d\tau} = \frac{df}{dt} \frac{dt}{d\tau} = \frac{df}{dt} (u^2 + v^2)$$

or d'après la mécanique hamiltonienne on sait que:

$$\frac{df}{dt} = \frac{\partial f}{\partial t} + \{H_0, f\}$$

où $\{H_0, f\}$ représente le crochet de Poisson de H_0 et f , défini comme suit:

$$\{H_0, f\} = \frac{\partial H_0}{\partial p_u} \frac{\partial f}{\partial u} - \frac{\partial H_0}{\partial u} \frac{\partial f}{\partial p_u} + (u \leftrightarrow v)$$

Si f ne dépend pas explicitement du temps, $\partial f / \partial t$ est nul et:

$$\frac{df}{d\tau} = \{H_0, f\} (u^2 + v^2)$$

Calculons sur une trajectoire d'énergie E_0 la valeur du crochet de Poisson $\{H'_0, f\}$:

$$\begin{aligned} \{H'_0, f\} &= \left\{ (H_0 - E_0) (u^2 + v^2), f \right\} \\ &= (H_0 - E_0) \left\{ (u^2 + v^2), f \right\} + \frac{df}{d\tau} = \frac{df}{d\tau} \end{aligned}$$

En particulier:

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{du}{d\tau} = \{H'_0, u\} = \frac{\partial H'_0}{\partial p_u} = p_u \\ \frac{dp_u}{d\tau} = \{H'_0, p_u\} = -\frac{\partial H'_0}{\partial u} = 2uE_0 + \frac{L_z^2}{u^3} \\ \text{et } (u \leftrightarrow v) \end{array} \right.$$

Ces équations sont les équations d'évolution décrivant un système ayant un hamiltonien effectif H'_0 associé au temps τ . Ces équations ont une expression simple et leur résolution permet de déduire la trajectoire d'énergie E_0 de l'atome d'hydrogène. Le hamiltonien H'_0 peut être réécrit de façon plus simple en séparant les coordonnées u et v :

$$(I.2) H_0' = \left\{ \frac{P_u^2}{2} + \frac{P_\phi^2}{2u^2} - E_0 u^2 \right\} + \left\{ \frac{P_v^2}{2} + \frac{P_\phi^2}{2v^2} - E_0 v^2 \right\} - 2$$

Dans le cas où l'énergie E_0 est négative, chaque partie selon u ou v s'identifie à l'hamiltonien d'un oscillateur harmonique isotrope à deux dimensions isotrope de coordonnées polaires (u ou v, ϕ). Ces deux oscillateurs fictifs dont la somme des énergies propres vaut 2 ont le même moment angulaire $L_z = M$ et la même pulsation ω_0 reliée à l'énergie E_0 par la relation suivante :

$$\omega_0 = \sqrt{-2E_0}$$

Toutes les propriétés du problème de Kepler peuvent être retrouvées en résolvant les équations de mouvement du système de deux oscillateurs à deux dimensions, en utilisant le temps τ appelé temps oscillateur.

Par la suite on verra que cette équivalence est très importante puisqu'elle permet de simplifier le traitement classique et quantique du problème de Coulomb plongé dans un champ magnétique intense.

A.I.3. Variables action angle.

Pour un système intégrable et donc présentant une dynamique complètement régulière on peut trouver des variables canoniques conjuguées (I_i, θ_i) en fonction desquelles l'expression du hamiltonien qui décrit le système est très simple [GUT90].

Un système dynamique conservatif à n degrés de liberté est intégrable s'il existe n constantes du mouvement indépendantes. La dynamique d'un tel système est totalement régulière. Il est alors possible de trouver une transformation canonique qui change les $2n$ variables généralisées (q_i, p_i) décrivant l'espace des phases en variables (I_i, θ_i) telles que le hamiltonien ne dépende que des actions I_i ($I_i = 1/2\pi \int \sum p_i dq_i$). L'intégration des équations du mouvement est immédiate:

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{dI_i}{dt} = \frac{\partial H}{\partial \theta_i} = 0 \rightarrow I_i = I_{i0} \quad (i = 1, N) \\ \frac{d\theta_j}{dt} = -\frac{\partial H}{\partial I_j} \rightarrow \theta_j(t) = -\frac{\partial H}{\partial I_j} t + \theta_{j0} \quad (j = 1, N) \end{array} \right.$$

On en déduit donc directement les n constantes du mouvement qui sont les actions I_i . Les angles θ_i sont des fonctions cycliques du temps.

La projection de la trajectoire de l'électron sur l'un des plans (I_i, θ_i) de l'espace des phases montre que le mouvement a lieu sur un cercle de rayon I_{i0} et d'angle variant linéairement avec le temps. Le mouvement dans tout l'espace des phases de dimension $2n$ se fait sur un tore de dimension n , qui est le produit topologique des n cercles (I_{i0}, θ_{i0}) . Ce tore est invariant puisqu'une orbite qui y démarre y demeure éternellement et l'on comprend bien la désignation précédente des variables I_i qui sont les actions du tore considéré et des variables θ_i qui repèrent les angles sur le tore et varient entre 0 et 2π .

Ces variables sont les plus adéquates pour décrire la dynamique d'un système intégrable. Cependant la détermination des intégrales d'action indépendantes est très difficile. Pour le cas de l'atome d'hydrogène isolé, ces intégrales d'action I_i et les angles correspondants θ_i peuvent être déterminés relativement facilement quand on utilise l'équivalence de ce système avec deux oscillateurs harmoniques à deux dimensions établie précédemment.

Considérons un oscillateur harmonique à deux dimensions; le hamiltonien de ce système écrit en coordonnées polaires (u, θ) est:

$$H = \frac{p_u^2}{2} + \frac{p_\theta^2}{2u^2} - E_0 u^2$$

Les variables action-angle qui décrivent ce système dans le cas où le moment angulaire L_z est nul s'expriment ainsi:

$$(I.3) \quad \left\{ \begin{array}{l} I_u = \frac{1}{4} \left(\frac{1}{\sqrt{-2E_0}} p_u^2 + \sqrt{-2E_0} u^2 \right) \\ \theta_u = 2 \operatorname{tang}^{-1} \left(\frac{p_u}{u \sqrt{-2E_0}} \right) \end{array} \right.$$

Pour l'atome d'hydrogène isolé, toute la dynamique classique ($L_z = 0$) peut être décrite dans l'espace des phases par les variables action-angle ($I_u, I_v, \theta_u, \theta_v$) où chaque couple (I_i, θ_i $i=u$ ou v) décrit la dynamique d'un oscillateur harmonique à deux dimensions. L'énergie E_0 de chaque trajectoire s'exprime en fonction de I_u et I_v comme suit:

$$(I.4) E_0 = - \frac{1}{2(I_u + I_v)^2}$$

A.II. Traitement quantique.

A.II.1. Hamiltonien et constantes du mouvement.

Le hamiltonien du système s'écrit :

$$H_0 = \frac{p^2}{2} - \frac{1}{r}$$

où \mathbf{r} et \mathbf{p} sont les opérateurs position et impulsion de l'électron. Ce sont deux opérateurs conjugués.

Ce hamiltonien est invariant par toute rotation, il commute avec toutes les composantes du moment cinétique orbital \mathbf{L} ($\mathbf{L} = \mathbf{r} \wedge \mathbf{p}$).

$$[H_0, \mathbf{L}] = 0$$

\mathbf{L} est donc une constante vectorielle du mouvement émanant de l'invariance par symétrie sphérique de tout problème à champ central .

Par analogie avec la mécanique classique, on définit l'opérateur \mathbf{A} , vecteur de Runge Lenz symétrisé :

$$\mathbf{A} = \frac{1}{2}(\mathbf{p} \wedge \mathbf{L} - \mathbf{L} \wedge \mathbf{p}) - \frac{\mathbf{r}}{r}$$

Cet opérateur commute avec le hamiltonien : $[H_0, \mathbf{A}] = 0$, c'est donc une constante du mouvement spécifique du champ coulombien.

On peut construire deux ensembles complets d'observables qui commutent indépendants :

- (H_0, L^2, L_z) qui conduit à la séparabilité en coordonnées sphériques (r, θ, ϕ) .
- (H_0, L_z, A_z) qui conduit à la séparabilité en coordonnées paraboliques $(\xi = r+z, \eta = r-z, \phi)$.

Par la suite on développera plus en détails la séparabilité du système en coordonnées paraboliques puisqu'elle nous servira à résoudre l'équation de Schrödinger de l'atome d'hydrogène en utilisant son équivalence avec le système oscillateur.

**A.II.2. Séparabilité en coordonnées Semi-paraboliques.
Equivalence avec deux oscillateurs harmoniques.**

On va démontrer que résoudre l'équation de Schrödinger pour l'atome d'hydrogène isolé de moment angulaire $L_z = M$ revient à résoudre celle de deux oscillateurs harmoniques à deux dimensions de même moment angulaire. Pour cela écrivons l'équation de Schrödinger de l'atome d'hydrogène en coordonnées semi-paraboliques définies par (I.1):

$$(I.5) \left\{ \frac{1}{u^2 + v^2} \left[\left(\frac{\partial^2}{\partial u^2} + \frac{1}{u} \frac{\partial}{\partial u} - \frac{M^2}{u^2} \right) + \left(\frac{\partial^2}{\partial v^2} + \frac{1}{v} \frac{\partial}{\partial v} - \frac{M^2}{v^2} \right) + 4 \right] + 2E_0 \right\} \psi(u,v) = 0$$

La fonction d'onde $\psi(u,v)$ a la forme suivante:

$$\psi(u,v) = f(u) g(v) e^{-iM\phi}$$

L'équation de Schrödinger (I.4) se simplifie en la multipliant par le facteur $(u^2 + v^2)$:

$$(I.6) \left[\left(\frac{\partial^2}{\partial u^2} + \frac{1}{u} \frac{\partial}{\partial u} - \frac{M^2}{u^2} + 2E_0 u^2 \right) + \left(\frac{\partial^2}{\partial v^2} + \frac{1}{v} \frac{\partial}{\partial v} - \frac{M^2}{v^2} + 2E_0 v^2 \right) + 4 \right] f(u)g(v) = 0$$

D'autre part le hamiltonien d'un oscillateur harmonique à deux dimensions de pulsation ω et de moment cinétique M s'écrit en coordonnées polaires (u,ϕ) :

$$(I.7) H(u,\omega,M) = -\frac{1}{2} \left(\frac{\partial^2}{\partial u^2} + \frac{1}{u} \frac{\partial}{\partial u} - \frac{M^2}{u^2} \right) + \frac{\omega^2}{2} u^2$$

En utilisant (I.7) l'équation (I.6) peut se réécrire comme:

$$(I.8) \quad [H(u, \sqrt{-2E_0}, M) + H(v, \sqrt{-2E_0}, M) - 2] f(u)g(v) = 0$$

Cette équation est l'équation de Schrödinger de deux oscillateurs harmoniques à deux dimensions dont les coordonnées polaires sont $(u \text{ ou } v, \phi)$ ayant pour somme de valeurs propres 2, pour pulsation $(-2E_0)^{1/2}$ et pour moment cinétique M .

Le spectre de l'hamiltonien (I.7) étant donné par $\varepsilon = (2n + |M| + 1)\omega$, avec n entier positif ou nul, on peut déduire le spectre de l'hamiltonien (I.8):

$$E_0 = \frac{-1}{2(n_1 + n_2 + |M| + 1)^2} = \frac{-1}{2n^2}$$

n_1 et n_2 représentent les nombres quantiques paraboliques de l'atome c'est à dire respectivement le nombre de noeuds des fonctions f et g .

L'équivalence (atome d'hydrogène / système oscillateur) est donc mise en évidence. Cette équivalence est à manier avec précaution car, bien que les fonctions d'onde des deux systèmes soient strictement les mêmes, dans le système oscillateur, elles sont fonctions d'onde d'un hamiltonien qui dépend du niveau d'énergie considéré. Comme on le verra dans les paragraphes suivants, cette équivalence est très importante car elle nous permettra d'étudier l'atome d'hydrogène en utilisant le groupe dynamique du système oscillateur.

A.III. Le groupe de symétrie dynamique du problème de Coulomb

A.III.1. Définition et propriétés d'une algèbre de symétrie $SO(n)$.

On montre [DEL88] que certaines propriétés remarquables de l'atome d'hydrogène (dégénérescence, séparabilité, éléments de matrice) peuvent s'expliquer par l'existence d'une symétrie dynamique. Il existe des transformations non triviales conservant l'énergie et reliant tous les états d'un même niveau d'énergie appelé multiplet hydrogénoïde.

Une transformation infinitésimale est dite de "symétrie" si elle commute avec le hamiltonien. L'ensemble de ces transformations infinitésimales forme le groupe de symétrie, et les générateurs infinitésimaux associés constituent une base de l'algèbre de symétrie.

Pour construire l'algèbre de symétrie il faut donc trouver un ensemble d'opérateurs agissant dans l'espace des états, qui commutent avec le hamiltonien et dont les relations de commutation soient fermées. Ces opérateurs peuvent être déduits des constantes du mouvement caractéristiques du système.

Les générateurs d'un groupe de rotation de dimension n noté selon les conventions $SO(n)$ sont les $n(n-1)/2$ composantes du moment angulaire dans un espace de dimension n :

$$\mathcal{L}_{ij} = x_i p_j - x_j p_i \quad 1 \leq i < j \leq n$$

où les x_i représentent les composantes du vecteur position et les p_i celles du vecteur impulsion. \mathcal{L}_{ij} est le générateur infinitésimal des rotations dans le plan (i, j) . Un calcul élémentaire donne les relations de commutation suivantes :

$$(I.9) \quad \begin{cases} [\mathcal{L}_{ij}, \mathcal{L}_{kl}] = 0 & \text{si: } i \neq j \neq k \neq l \\ [\mathcal{L}_{ij}, \mathcal{L}_{ik}] = i \mathcal{L}_{jk} & \text{si: } i \neq j \neq k \end{cases}$$

A.III.2. Algèbre $SO(4)$ pour l'atome d'hydrogène.

Dans le cas du spectre lié de ($E_0 < 0$) du problème de Coulomb on désigne par A' le vecteur de Runge Lenz réduit :

$$A' = \frac{A}{\sqrt{-2H_0}}$$

Ce vecteur A' et le vecteur moment angulaire L vérifient les relations de commutation suivantes :

$$(I.10) \quad \begin{cases} [L_i, L_j] = i \varepsilon_{ijk} L_k \\ [L_i, A'_j] = i \varepsilon_{ijk} A'_k \\ [A'_i, A'_j] = i \varepsilon_{ijk} L_k \\ \varepsilon_{ijk} \text{ est le symbole de Kronecker} \end{cases}$$

Si l'on fait l'identification suivante :

$$\begin{aligned}
L_z &\equiv \mathfrak{L}_{12} \\
L_x &\equiv \mathfrak{L}_{23} \\
L_y &\equiv \mathfrak{L}_{31} \\
A'_x &\equiv \mathfrak{L}_{14} \\
A'_y &\equiv \mathfrak{L}_{24} \\
A'_z &\equiv \mathfrak{L}_{34}
\end{aligned}$$

On vérifie grâce aux relations de commutation (I.10) que ces composantes \mathfrak{L}_{ij} vérifient les relations de commutation (I.9) dans le cas où $n = 4$; on déduit que ces composantes \mathfrak{L}_{ij} sont celles d'un moment angulaire dans un espace de dimension 4. De plus :

$$\mathfrak{L}^2 = \sum_{i < j} (\mathfrak{L}_{ij})^2 = \vec{L}^2 + \vec{A}'^2 = -\frac{1}{2H_0} - 1$$

et: $L.A' = 0$

La symétrie du champ de Coulomb est donc une symétrie de rotation dans cet espace à 4 dimensions [ENG79], on la note $SO(4)$ selon les conventions. La structure très particulière du groupe $SO(4)$ permet d'exprimer la symétrie coulombienne en terme du produit de deux symétries $SO(3)$ associées à deux moments angulaires et d'utiliser toute la puissance de l'algèbre angulaire à 3 dimensions. On introduit pour cela les deux moments angulaires \mathbf{J}_1 et \mathbf{J}_2 définis comme suit :

$$(I.11) \quad \begin{cases} \mathbf{J}_1 = \frac{1}{2}(\mathbf{L} - \mathbf{A}') \\ \mathbf{J}_2 = \frac{1}{2}(\mathbf{L} + \mathbf{A}') \end{cases}$$

Ils sont des constantes du mouvement du problème classique. D'après leurs relations de commutation, ils constituent deux moments angulaires qui commutent entre eux. La transformation de symétrie la plus générale est une exponentielle des générateurs infinitésimaux \mathbf{L} et \mathbf{A} [ENG].

$$T(\alpha, \beta) = \exp[-i(\alpha.L + \beta.A')] = \exp[-i(\alpha - \beta) \cdot \mathbf{J}_1] \exp[-i(\alpha + \beta) \cdot \mathbf{J}_2]$$

Il apparaît que toute transformation du groupe de symétrie $SO(4)$ peut s'écrire comme le produit direct d'une rotation engendrée par \mathbf{J}_1 et d'une rotation engendrée par \mathbf{J}_2 dans des espaces de dimension trois. On retrouve donc en termes de deux moments angulaires indépendants (c'est à dire qui commutent) que la couche de nombre quantique principal

n a la symétrie $SO(3) \times SO(3) = SO(4)$. Les opérateurs (H_0, J_{1z}, J_{2z}) forment un E.C.O.C dont les états propres sont notés $|n_1, n_2, M\rangle$. Les deux moments angulaires J_1 et J_2 et leurs valeurs propres (j_1, n_1) et (j_2, n_2) vérifient :

$$\begin{cases} L_z = J_{1z} + J_{2z} \\ A'_z = J_{1z} - J_{2z} \\ J_1^2 = J_2^2 = J^2 \\ H_0 = \frac{-1}{2(2J_1^2 + 2J_2^2 + 1)} \end{cases} \Rightarrow \begin{cases} M = n_1 + n_2 \\ n_1 - n_2 = j_{1z} - j_{2z} \\ j_1 = j_2 = j \\ E_0 = \frac{-1}{2(2j + 1)^2} \end{cases}$$

où j est un entier ou demi entier positif ou nul. $(2j + 1)$ s'identifie au nombre quantique principal n et la dégénérescence du niveau est le produit des dégénérescences sur J_{1z} et J_{2z} soit : $(2j + 1)(2j + 1) = n^2$.

En conclusion, l'existence des deux moments angulaires J_1 et J_2 indépendants démontre que la symétrie du problème de Coulomb est $SO(3) \times SO(3) = SO(4)$. Le fait particulier au problème de Coulomb que ces deux moments angulaires aient la même norme explique la dégénérescence " accidentelle " égale à n^2 des états liés associés à la couche d'énergie de nombre quantique principal n de l'atome d'hydrogène. Cette description en termes de deux moments angulaires indépendants autorise plusieurs choix de bases indépendantes [ENG79, CHA83] qui permettent de retrouver toutes les propriétés remarquables du problème de Coulomb.

Le groupe de symétrie $SO(4)$ permet de décrire efficacement ce qui se passe à l'intérieur d'un niveau d'énergie; mais il ne permet pas de rendre compte des phénomènes faisant intervenir plusieurs couches d'énergie car les différents générateurs du groupe ne connectent pas les différentes couches entre elles. Il faut par conséquent un groupe reliant les différentes couches et donc considérer des opérateurs qui ne commutent pas avec le hamiltonien. Un tel groupe est appelé groupe dynamique.

A.III.3. Le groupe dynamique $SO(2,2)$ du système oscillateur.

Pour décrire les phénomènes faisant intervenir plusieurs couches d'énergie on doit construire un groupe dont les générateurs infinitésimaux ne commutent pas avec le hamiltonien et relie entre eux deux états appartenant à des couches différentes. Pour construire ce groupe nous ferons appel à l'équivalence de l'atome d'hydrogène isolé avec le système oscillateur qui nous permet d'utiliser le groupe dynamique de l'oscillateur

harmonique pour résoudre l'équation de Schrödinger du problème de Coulomb. Ce groupe dynamique est étudié dans le paragraphe ci-après.

a. Le groupe dynamique SO(2,1) de l'oscillateur harmonique à 2D.

A partir des combinaisons de produits bilinéaires des opérateurs de création et d'annihilation associés à chaque direction x ou y de l'oscillateur harmonique à deux dimensions isotrope, il est possible de construire trois opérateurs $S_1(\alpha)$, $S_2(\alpha)$, $S_3(\alpha)$ (dépendant d'un paramètre α) qui forment un pseudo-moment cinétique et commutent avec la composante L_z du moment cinétique L .

$$\begin{aligned} \left[S_1^{(\alpha)}, S_2^{(\alpha)} \right] &= -i S_3^{(\alpha)} & \left[S_2^{(\alpha)}, S_3^{(\alpha)} \right] &= i S_1^{(\alpha)} & \left[S_3^{(\alpha)}, S_1^{(\alpha)} \right] &= i S_2^{(\alpha)} \\ \left[S_i^{(\alpha)}, L_z \right] &= 0 \quad (i = 1, 2, 3) \end{aligned}$$

Ces relations de commutation sont caractéristiques du groupe SO(2,1). Les opérateurs qui génèrent ce groupe étant fonction des opérateurs de création et d'annihilation, peuvent être exprimés en fonction de la position et de l'impulsion. Comme ces opérateurs commutent avec L_z , il est logique de les exprimer en coordonnées polaires (u, θ_u) où ils ne dépendent que de u .

$$(I.12) \quad \begin{cases} S_1^{(\alpha)} = \frac{\alpha}{4} \left(\frac{\partial^2}{\partial u^2} + \frac{1}{u} \frac{\partial}{\partial u} - \frac{M^2}{u^2} \right) + \frac{1}{4\alpha} u^2 \\ S_2^{(\alpha)} = \frac{i}{2} \left(u \frac{\partial}{\partial u} + 1 \right) \\ S_3^{(\alpha)} = -\frac{\alpha}{4} \left(\frac{\partial^2}{\partial u^2} + \frac{1}{u} \frac{\partial}{\partial u} - \frac{M^2}{u^2} \right) + \frac{1}{4\alpha} u^2 \end{cases}$$

L'opérateur $(S^{(\alpha)})^2$ ne dépend pas de α :

$$\left(S^{(\alpha)} \right)^2 = S^2 = -\left(S_1^{(\alpha)} \right)^2 - \left(S_2^{(\alpha)} \right)^2 + \left(S_3^{(\alpha)} \right)^2 = \frac{1}{4} (M^2 - 1)$$

$S_3(\alpha)$ est proportionnel à l'hamiltonien d'un oscillateur harmonique à deux dimensions de moment angulaire M et de pulsation $1/\alpha$ (cf l'équation I.7). Les générateurs $S_1(\alpha)$ et $S_2(\alpha)$ ne commutent pas avec $S_3(\alpha)$ et donc avec le hamiltonien, le

groupe $SO(2, 1)$ n'est donc pas un groupe de symétrie mais un groupe non invariant pour l'oscillateur harmonique à deux dimensions de moment angulaire M , appelé groupe dynamique.

De façon générale une base d'une représentation irréductible d'un groupe $SO(2,1)$, notée D_k^+ est formée par l'ensemble des états $|n, k\rangle$ (où n est un entier positif ou nul et k un réel positif fixé) [ENG79]. L'état $|n, k\rangle$ est état propre de S^2 associé à la valeur propre $k(k-1)$ et de $S_3(\alpha)$ associé à la valeur propre $(n+k)$. De plus l'état $(S^{(\alpha)})^+|n, k\rangle$ (respectivement $(S^{(\alpha)})^-|n, k\rangle$) où :

$$\text{où : } (S^{(\alpha)})^{\pm} = (S_1^{(\alpha)}) \pm i(S_2^{(\alpha)})$$

est état propre de $S_3(\alpha)$ associé à la valeur propre $(n+k+1)$ (respectivement $(n+k-1)$). Les opérateurs $(S^{(\alpha)})^{\pm}$ permettent de construire donc une famille de vecteurs propres de $S_3(\alpha)$ correspondant à des valeurs propres différant d'une unité.

Dans le cas du groupe $SO(2,1)$ de l'oscillateur harmonique à deux dimensions, les représentations D_k^+ possibles sont celles telles que $k(k-1) = (M^2 - 1)/2$ soit, $k = (1+|M|)/2$.

Les états associés sont notés $|n, k\rangle$ et vérifient les relations suivantes [ENG79]:

$$\begin{aligned} (S)^2 |n, k\rangle &= \frac{1}{4} (M^2 - 1) |n, k\rangle \\ S_3^{(\alpha)} |n, k\rangle &= \left(n + \frac{|M|+1}{2} \right) |n, k\rangle \\ (S^{(\alpha)})^+ |n, k\rangle &= \sqrt{(n+1)(n+|M|+1)} |n+1, k\rangle \\ (S^{(\alpha)})^- |n, k\rangle &= \sqrt{n(n+|M|)} |n-1, k\rangle \end{aligned}$$

$$\text{où : } (S^{(\alpha)})^{\pm} = (S_1^{(\alpha)}) \pm i(S_2^{(\alpha)})$$

b. Le groupe dynamique $SO(2,2)$ du système oscillateur.

Application à l'étude de l'atome d'hydrogène.

Pour construire le groupe dynamique du système de deux oscillateurs harmoniques à deux dimensions de même moment cinétique M et de pulsation $(-2E)^{1/2}$

équivalent à l'atome d'hydrogène, nous considérons le produit direct des groupes dynamiques $SO(2,1)$ de chaque oscillateur. Pour cela nous définissons une famille d'opérateurs $S_i^{(\alpha)}$ agissant sur l'oscillateur " u " et une famille d'opérateurs $T_i^{(\alpha)}$ agissant sur l'oscillateur " v " (les T_i sont définis comme les S_i en remplaçant u par v), u et v désignant les rayons polaires de chaque oscillateur. Ces deux ensembles d'opérateurs commutent puisque les deux oscillateurs sont indépendants.

$$\left[S_i^{(\alpha)}, T_j^{(\alpha)} \right] = 0$$

Ces opérateurs sont les générateurs du groupe dynamique $SO(2,2) = SO(2,1) \times SO(2,1)$. L'équation de Schrödinger de l'atome d'hydrogène (I.6) se réécrit en fonction de ces générateurs comme suit :

$$(I.13) \left[\left(S_3^{(\alpha)} + T_3^{(\alpha)} \right) \left(\frac{1}{\alpha} - 2 E_0 \alpha \right) + \left(S_1^{(\alpha)} + T_1^{(\alpha)} \right) \left(-\frac{1}{\alpha} - 2 E_0 \alpha \right) - 2 \right] | \psi \rangle = 0$$

Si on s'intéresse au spectre discret : $E_0 < 0$, cette équation se simplifie si on adopte le choix judicieux suivant :

$$\alpha = \frac{1}{\sqrt{-2 E_0}} = n$$

$1/\alpha$ représente alors la pulsation des deux oscillateurs "u" et "v".

L'équation de Schrödinger (I.13) prend une expression différente pour chaque couche d'énergie E_0 donnée de l'atome (correspondant au nombre quantique principal n):

$$(I.14) \left(S_3^{(n)} + T_3^{(n)} - n \right) | \psi \rangle = 0$$

Les états propres de l'atome d'hydrogène correspondant à la valeur propre discrète $E_0 = -1/2n^2$ sont donc états propres de l'opérateur $S_3^{(n)} + T_3^{(n)} = U_3^{(n)}$ pour la valeur propre $\alpha = n$. La pulsation $1/\alpha = 1/n$ des deux oscillateurs varie donc avec le niveau d'énergie de l'atome.

Les états propres du système "oscillateur" sont normés pour le produit scalaire "oscillateur" noté $(|)$ défini comme suit: (u,v étant respectivement les coordonnées polaires de chaque oscillateur).

$$(\psi | \phi) = \iint \psi^*(u,v) \phi(u,v) uv du dv$$

Le produit scalaire pour les états propres de l'atome d'hydrogène fait intervenir un élément de volume exprimé en coordonnées semi-paraboliques. Ce produit noté $\langle | \rangle$ est défini comme suit: (u, v jouent ici le rôle de coordonnées semi-paraboliques pour l'atome d'hydrogène).

$$\langle \psi | \phi \rangle = \iint \psi^*(u, v) \phi(u, v) (u^2 + v^2) uv \, du \, dv$$

Ces deux produits scalaires sont différents et sont reliés l'un à l'autre par la relation suivante:

$$\begin{aligned} \text{(I.15)} \quad \langle \psi | \phi \rangle &= \langle \psi | (u^2 + v^2) | \phi \rangle = \langle \psi | 2r | \phi \rangle \\ &= 2\alpha \langle \psi | S_1^{(\alpha)} + S_3^{(\alpha)} + T_1^{(\alpha)} + T_3^{(\alpha)} | \phi \rangle \end{aligned}$$

Par conséquent, les fonctions d'onde orthonormées du système "oscillateur" pour la valeur $\alpha = n$, notées $|\psi\rangle^{(n)}$ sont reliées aux fonctions d'onde orthonormées décrivant la couche n de l'atome d'hydrogène notées $|\psi\rangle$ par la relation suivante:

$$\text{(I.16)} \quad |\psi\rangle = \frac{1}{\sqrt{2n}} |\psi\rangle^{(n)}$$

Plusieurs choix de bases sont possibles pour décrire les solutions de l'équation (I.14). A titre d'exemple la base découplée $(S_3^{(n)}, T_3^{(n)})$ est formée des états propres des opérateurs $S_3^{(n)}$ et $T_3^{(n)}$ notés $|\ln_1 n_2 M\rangle^{(n)}$ et vérifiant:

$$\begin{aligned} L_z |\ln_1 n_2 M\rangle^{(n)} &= M |\ln_1 n_2 M\rangle^{(n)} \\ S_3^{(n)} |\ln_1 n_2 M\rangle^{(n)} &= \left(n_1 + \frac{|M| + 1}{2} \right) |\ln_1 n_2 M\rangle^{(n)} \\ T_3^{(n)} |\ln_1 n_2 M\rangle^{(n)} &= \left(n_2 + \frac{|M| + 1}{2} \right) |\ln_1 n_2 M\rangle^{(n)} \\ (S_3^{(n)} + T_3^{(n)}) |\ln_1 n_2 M\rangle^{(n)} &= (n_1 + n_2 + |M| + 1) |\ln_1 n_2 M\rangle^{(n)} = n |\ln_1 n_2 M\rangle^{(n)} \end{aligned}$$

Il existe un isomorphisme entre cette base couplée et la base parabolique de l'atome d'hydrogène associée à l'E.C.O.C (H_0, j_{1z}, j_{2z}). L'isomorphisme s'exprime ainsi:

$$(I.17) \begin{cases} (S^{(n)})^{+/-} (T^{(n)})^{+/-} \leftrightarrow -J_1^{+/-} J_2^{-/+} \\ S_3^{(n)} - T_3^{(n)} \leftrightarrow J_{1z} - J_{2z} \\ S_3^{(n)} + T_3^{(n)} \leftrightarrow -1/\sqrt{-2H_0} = n \\ L_z \leftrightarrow J_{1z} + J_{2z} \end{cases}$$

Un deuxième exemple de base particulièrement intéressante, est la base couplée $(U^{(n)})^2$, $U_3^{(n)}$ ou $U^{(n)} = S^{(n)} + T^{(n)}$. En effet, on peut choisir comme solutions de l'équation de Schrödinger (I.14) les états propres de $(U^{(n)})^2$ et $U_3^{(n)}$:

$$\begin{cases} U_3^{(n)} = S_3^{(n)} + T_3^{(n)} \\ [U^{(n)}]^2 = U^{(2)} = L^2 \end{cases}$$

Ces états propres sont notés $|n \ l \ M \rangle^{(n)}$ et vérifient :

$$L_z |n \ l \ M \rangle^{(n)} = M |n \ l \ M \rangle^{(n)}$$

$$U_3^{(n)} |n \ l \ M \rangle^{(n)} = n |n \ l \ M \rangle^{(n)}$$

$$U^2 |n \ l \ M \rangle^{(n)} = L^2 |n \ l \ M \rangle^{(n)} = l(l+1) |n \ l \ M \rangle^{(n)}$$

avec n, l, M entiers vérifiant $n > l \geq |M|$

Il existe un isomorphisme entre cette base couplée et la base sphérique de l'atome d'hydrogène associé l'E.C.O.C ($H_0 \ L_2 \ L_z$). Cet isomorphisme est donné par:

$$L_z \leftrightarrow L_z$$

$$U_3^{(n)} \leftrightarrow 1/\sqrt{-2H_0}$$

$$(U^{(n)})^2 \leftrightarrow L^2$$

Les états propres $|n \ l \ M \rangle$ de l'atome d'hydrogène sont liés aux états propres oscillateur $|n \ l \ M \rangle^{(n)}$ par:

$$|n \ l \ M \rangle = \frac{1}{\sqrt{2n}} |n \ l \ M \rangle^{(n)}$$

En conclusion, les fonctions d'onde hydrogénoïdes sphériques habituelles associées à la couche d'énergie n de l'atome, s'obtiennent comme états propres des générateurs U^2 , $U_3(\alpha)$ du groupe dynamique $SO(2,2)$ du système oscillateur pour la valeur $\alpha=n$ dépendant de la couche d'énergie considérée.

c. Fonctions d'ondes Sturmiennes.

Les états propres du système oscillateur à fréquence fixe, autrement dit, les états propres de U^2 et $U_3(\alpha)$ avec α fixe et entier ($\alpha = n$), coïncident avec les états propres de la couche n de l'atome d'hydrogène. Ces états ne sont pas orthonormés pour le produit scalaire "hydrogène". Pour décrire toutes les couches, il faut chercher les états propres de tous les opérateurs U^2 et $U_3(\alpha)$ avec α variable pouvant prendre toutes les valeurs entières positives.

Les états propres de U^2 et $U_3(\alpha)$ avec α fixé forment une base complète, discrète, orthonormée pour le produit scalaire "oscillateur" permettant de décrire les états hydrogénoïdes. Ces fonctions sont appelées fonctions Sturmiennes, elles sont très intéressantes puisqu'elles facilitent les calculs numériques pour les problèmes faisant intervenir l'interaction coulombienne [ROT62].

Les fonctions Sturmiennes s'obtiennent à partir des fonctions hydrogénoïdes par une dilatation de rapport n / α , c'est à dire, en remplaçant la dépendance en r / n par une dépendance en r / α et en multipliant par le facteur $n / \alpha \sqrt{2}$ pour conserver la norme. Dans le cas où α est entier ces deux types de fonctions coïncident.

Contrairement aux fonctions hydrogénoïdes les fonctions Sturmiennes ne sont pas orthonormées pour le produit scalaire "hydrogène", cependant elles présentent un avantage capital : par construction elles forment une base complète qui engendre la totalité de l'espace des états discrets et continus de l'atome d'hydrogène et forment une base d'une représentation discrète irréductible du groupe dynamique $SO(2,2)$. Les générateurs $S(\alpha)$ et $T(\alpha)$ du groupe dynamique $SO(2,2)$ ont des éléments de matrice très simples dans cette base; ceci entraîne que les éléments de matrice d'opérateurs usuels tels que z , p_z , p^2 , r , r^2 , qui s'expriment en fonction de ces générateurs s'évaluent facilement dans cette base et présentent des règles de sélection élémentaires [BED77]. Enfin cette base est particulièrement bien adaptée au traitement du problème de Coulomb en présence d'un champ magnétique fort comme on le verra plus loin.

B. En champ magnétique.

On étudie l'atome d'hydrogène plongé dans un champ magnétique statique et uniforme dirigé le long de l'axe Oz.

B.I. Généralités.

B.I.1. Hamiltonien. Passage au référentiel de Larmor.

Le hamiltonien de l'atome d'hydrogène en présence d'un champ magnétique uniforme et statique \mathbf{B} parallèle à Oz, écrit en coordonnées sphériques et en unités atomiques ($\gamma = B/B_c$) a l'expression suivante si on choisit la jauge cylindrique et si l'on suppose infinie la masse du noyau:

$$(I.18) H = \frac{p^2}{2} - \frac{1}{r} + \frac{\gamma}{2} L_z + \frac{1}{8} \gamma^2 (x^2 + y^2)$$

Le système est invariant par rotation autour de Oz et L_z est une constante du mouvement. Cette fonction de Hamilton se décompose donc en trois termes :

- Le premier terme $H_0 = p^2/2 - 1/r$ représente l'hamiltonien de l'atome d'hydrogène en champ nul.

- Le deuxième terme $\gamma/2 L_z$ appelé terme paramagnétique est linéaire en γ . Il est responsable de l'effet Zeeman que l'on connaît bien en physique atomique. L_z étant une constante du mouvement, ce terme est constant.

- Le troisième terme $V = 1/8 \gamma^2 (x^2 + y^2)$, est appelé terme diamagnétique, il est quadratique en γ . Ce terme est celui qui gouverne réellement la physique du problème qui nous intéresse et est responsable des effets observés en champ fort.

Pour éliminer le terme paramagnétique, un moyen est de se placer dans le référentiel de Larmor qui tourne uniformément autour du champ magnétique à la pulsation ω_L dite de Larmor et définie par:

$$\omega_L = -\frac{\gamma}{2} \quad (\text{u.a})$$

Dans ce référentiel la force de Coriolis compense exactement la force de Lorentz et le terme paramagnétique s'annule; l'expression du hamiltonien du système se simplifie: $H = H_0 + V$.

Selon l'ordre de grandeur de V par rapport à H_0 on peut distinguer trois régimes distincts de comportement et donc de traitement du système:

- $H_0 \gg V$: C'est le régime de champ faible ou une approche perturbative est possible. La trajectoire dans le référentiel de Larmor est une ellipse de Kepler perturbée par la force diamagnétique. Le spectre d'énergie se présente sous forme de multiplets de niveaux regroupés autour de l'énergie E_0 du système non perturbé par le champ magnétique.

- $H_0 \approx V$: Le régime est celui des résonances de quasi Landau appelé aussi régime de champs intenses dont il n'existe pas de traitement complet classique.

- $H_0 \ll V$: C'est le régime de Landau ou régime de champs ultra-intenses. On traite perturbativement la force coulombienne par rapport aux trajectoires de Landau. Dans le référentiel du laboratoire, les trajectoires sont des cercles centrés à l'origine perturbés par la force de Coulomb. Le spectre d'énergie a l'allure d'un spectre de Landau.

B.I.2. Non séparabilité. Non intégrabilité.

La symétrie cylindrique de l'interaction diamagnétique est incompatible avec la symétrie sphérique de l'interaction coulombienne, il s'ensuit que le hamiltonien de l'atome d'hydrogène en champ magnétique n'est pas séparable et les équations de mouvement associées ne sont pas intégrables analytiquement. Les seules constantes de mouvement exactes pour l'atome d'hydrogène en champ magnétique sont: l'énergie totale E et la composante L_z du moment cinétique. Le nombre de degrés de liberté de ce système étant de 3, il manque une constante du mouvement pour décrire totalement sa dynamique classique. Un comportement chaotique du système est donc possible sous certaines conditions.

En régime de champ faible, aussi bien dans le formalisme classique que quantique, la méthode générale de traitement consiste à traiter le champ extérieur perturbativement: on met alors en évidence une troisième constante du mouvement approchée. Les équations classiques du mouvement peuvent alors être résolues de

manière analytique. En mécanique quantique, les constantes du mouvement permettent de construire un E.C.O.C et de résoudre formellement le problème (cf le paragraphe B de ce chapitre).

En régime de champ intense, le traitement perturbatif n'est pas possible et dans certaines conditions la dynamique classique du système devient chaotique. L'atome d'hydrogène (H_0 est intégrable) en présence d'un champ magnétique est un exemple type de système quasi-intégrable, dont la dynamique classique ne dépend que d'un seul paramètre, fonction de l'énergie et du champ magnétique.

B.I.3. Invariance d'échelle.

Comme on le verra par la suite, il n'est pas facile de résoudre les équations classiques du mouvement dans le régime de champ intense. Fort heureusement, il existe dans le cas de notre problème une invariance d'échelle qui rend inutile l'intégration de ces équations pour toutes les valeurs de l'énergie et du champ magnétique. Si on multiplie toutes les variables intervenant dans la description du mouvement c'est à dire les coordonnées généralisées (q_i p_i) et le temps t par une puissance judicieuse d'un certain paramètre, les équations du mouvement qui s'en déduisent gardent la même forme et leur résolution donne accès aux trajectoires du système.

a. Mise en évidence.

Les équations de mouvement de l'électron de l'atome d'hydrogène déduites de l'hamiltonien (I.18) sont:

$$(I.19) \left\{ \begin{array}{l} \frac{dq_i}{dt} = \frac{\partial H}{\partial p_i} \\ \frac{dp_i}{dt} = - \frac{\partial H}{\partial q_i} \end{array} \right. \text{ avec } i = x, y \text{ ou } z$$

Ces équations de mouvement dépendent de trois paramètres indépendants: γ (champ magnétique), L_z (moment cinétique) et E (énergie totale). Dans ce qui suit on cherche à trouver une transformation canonique qui sauvegarde la forme de ces équations de mouvement tout en réduisant le nombre de paramètres dont dépend la dynamique du système. On définit pour cela trois paramètres α , β , θ tels que:

$$\begin{cases} q_i = \alpha q_i' \\ p_i = \beta p_i' \\ t = \theta t' \end{cases}$$

Pour que les équations de mouvement associées à ces variables généralisées aient la même forme que les équations (I.19) on définit H' tel que:

$$(I.20) \begin{cases} \frac{dq_i'}{dt'} = \frac{\theta}{\alpha} \frac{dq_i}{dt} = \frac{\theta}{\alpha} \frac{\partial H}{\partial p_i} = \frac{\theta}{\alpha\beta} \frac{\partial H}{\partial p_i'} = \frac{\partial H'}{\partial p_i'} \\ \frac{dp_i'}{dt'} = \frac{\theta}{\beta} \frac{dp_i}{dt} = -\frac{\theta}{\beta} \frac{\partial H}{\partial q_i} = -\frac{\theta}{\alpha\beta} \frac{\partial H}{\partial q_i'} = -\frac{\partial H'}{\partial q_i'} \end{cases} \text{ avec } i = x, y \text{ ou } z$$

D'après ces équations on déduit: $H' = (\theta/\alpha\beta) H$

$$(I.21) H' = \frac{\theta}{\alpha\beta} \left(\frac{\beta^2 p'^2}{2} - \frac{1}{\alpha r'} + \frac{1}{2} \gamma \alpha \beta L'_z + \frac{1}{8} \gamma^2 \alpha^2 (x'^2 + y'^2) \right)$$

Cette expression de H' se simplifie si l'on adopte le choix judicieux suivant:

$$\frac{\theta\beta}{\alpha} = 1 \quad \frac{\theta}{\beta\alpha^2} = 1 \quad \frac{\theta\alpha\gamma^2}{\beta} = 1$$

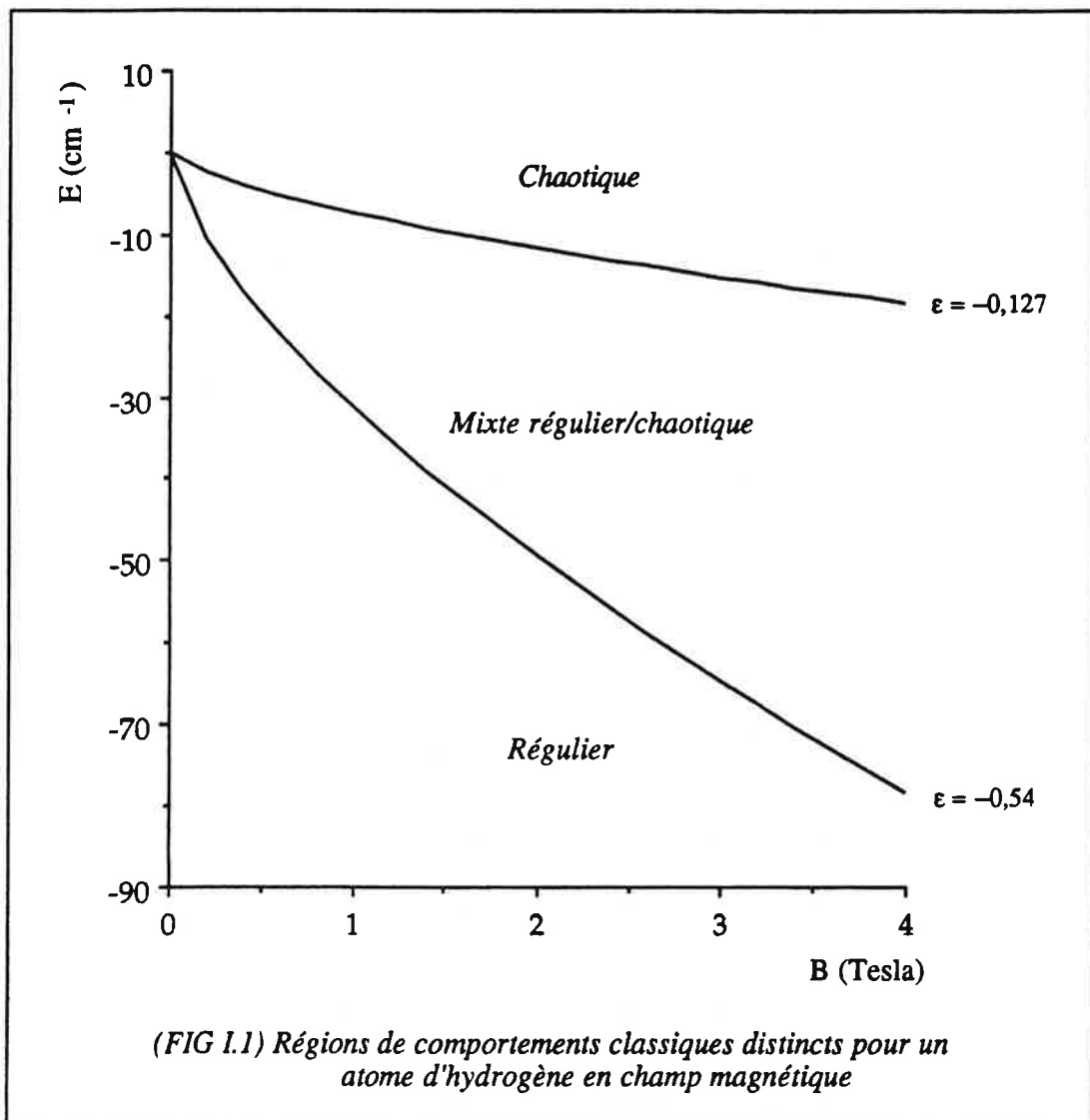
La résolution de ce système de trois équations à trois inconnues donne:

$$\alpha = \gamma^{-2/3} \quad \beta = \gamma^{1/3} \quad \theta = \gamma^{-1}$$

Le hamiltonien (I.21) prend alors l'expression simplifiée suivante:

$$H' = \frac{p'^2}{2} - \frac{1}{r'} + \frac{1}{2} L'_z + \frac{1}{8} (x'^2 + y'^2) = E \gamma^{-2/3} = \varepsilon$$

Au lieu de dépendre de l'énergie et du champ magnétique et de L_z , les équations de mouvement associées à cet hamiltonien ne dépendent plus que de $\gamma^{1/3} L_z$ et du paramètre noté ε et qui vaut: $E\gamma^{-2/3}$. Il s'en suit que pour étudier la dynamique classique du système, il est inutile d'étudier le mouvement pour toutes les valeurs du champ magnétique et de l'énergie. On résume dans le tableau suivant les transformations de toutes les quantités physiques du problème qui laissent invariantes les équations d'évolution du système.



Position	\mathbf{r}	$\gamma^{2/3} \mathbf{r}$
Impulsion	\mathbf{p}	$\gamma^{-1/3} \mathbf{p}$
Temps	t	γt
Moment cinétique	\mathbf{L}	$\gamma^{1/3} \mathbf{L}$
Vecteur de Runge Lenz	\mathbf{A}	\mathbf{A}
Champ magnétique γ	γ	1
Energie	E	$\gamma^{-2/3} E$
Paramètre d'échelle	$\varepsilon = E \gamma^{-2/3}$	ε

Transformation d'échelle laissant invariantes les équations du mouvement.

D'après le tableau précédent, le paramètre réduit qui permet de décrire toute la dynamique classique est : $\varepsilon = E \gamma^{-2/3}$.

b. Différents régimes de dynamique classique.

L'existence de ce paramètre d'échelle permet de simplifier considérablement l'étude de la dynamique classique du système, les études numériques [DEL86b, WUN86, WEL89] présentées avec plus de détails dans la suite de ce chapitre ont été faites avec ce paramètre d'échelle. Ces études révèlent trois régimes de comportement classique distincts du système (cf figure (I.1)) correspondant aux valeurs du paramètre d'échelle suivants:

$\varepsilon < -0.54$, la dynamique classique est régulière.

$-0.54 \leq \varepsilon \leq -0.127$, selon les conditions initiales, les trajectoires classiques sont régulières ou chaotiques.

$\varepsilon > -0.127$, toute les trajectoires classiques sont chaotiques.

c. Non validité en mécanique quantique.

Cette invariance d'échelle mise en évidence en mécanique classique n'est pas valable en mécanique quantique. En effet la transformation d'échelle citée plus haut conduit à la relation de commutation suivante entre les variables d'échelle de position et d'impulsion:

$$[p'_i, q'_i] = i \gamma^{1/3} \hbar$$

La transformation d'échelle serait donc valable quantiquement si l'on définissait une nouvelle constante de Planck qui dépend de l'intensité du champ magnétique par la relation suivante $\gamma^{1/3} \hbar$. A paramètre d'échelle ε fixé déterminant le comportement classique du système, la dépendance du comportement quantique équivalent en fonction de l'intensité du champ magnétique γ pourrait être décrite en fonction de cette constante de Planck effective. Ceci est complètement aberrant puisqu' en mécanique quantique, il existe une unité naturelle de longueur (rayon de Bohr) reliée à la constante de Planck \hbar .

On peut aussi noter que les intégrales d'action $I_i = \int p_i dq_i$ ne sont pas invariantes par la transformation d'échelle, ce qui entraîne la non invariance du spectre semi-classique obtenu par la quantification W.K.B ainsi que de l'élément de volume de l'espace des phases \hbar^3 qui devient par cette transformation d'échelle dépendant du champ magnétique.

B.II. Régime de champs faibles. Dynamique classique régulière.

Dans le cas où l'interaction diamagnétique est faible devant l'interaction coulombienne ($V \ll H_0$), on peut traiter l'effet du champ magnétique de façon perturbative dans les deux formalismes classique et quantique.

B.II.1. Traitement classique.

L'existence des deux termes paramagnétique et diamagnétique dépendant du champ magnétique dans l'expression de l'hamiltonien (I.12) du système rend délicat les développements perturbatifs. L_z est une constante du mouvement du système, le terme paramagnétique $\gamma/2L_z$ est donc constant et peut être intégré dans l'énergie du système. Cela correspond à se placer dans le référentiel de Larmor, dans ce référentiel le hamiltonien du système est $H_0 + V$.

Au premier ordre en γ , le système reste partiellement dégénéré, \mathbf{L} et \mathbf{A} précessent autour du champ magnétique à la même fréquence ω_L (fréquence de Larmor). Dans ce référentiel ces deux vecteurs \mathbf{L} et \mathbf{A} sont constants au premier ordre et le mouvement de l'électron est le mouvement coulombien non perturbé.

a. Approximation séculaire.

Dans le cas où l'interaction diamagnétique est faible devant l'interaction coulombienne, on peut séparer la description du mouvement de l'électron en un mouvement rapide et un mouvement lent. On peut alors supposer que la trajectoire reste une ellipse dont les paramètres (excentricité, direction du grand axe (\mathbf{A}), plan de l'ellipse (\mathbf{L})) évoluent lentement dans le temps, c'est à dire qu'ils ne varient pas de manière appréciable pendant des intervalles de temps correspondant à plusieurs révolutions de l'électron sur son orbite [SOL81, SOL82].

Les équations d'évolution de \mathbf{L} et \mathbf{A} s'écrivent:

$$(I.22) \quad \begin{cases} \frac{d\mathbf{L}}{dt} = \{H, \mathbf{L}\} = \{H_0 + V, \mathbf{L}\} = \{V, \mathbf{L}\} \\ \frac{d\mathbf{A}}{dt} = \{H, \mathbf{A}\} = \{H_0 + V, \mathbf{A}\} = \{V, \mathbf{A}\} \end{cases}$$

où V est le potentiel diamagnétique perturbateur. ($V = 1/8 \gamma^2 (x^2 + y^2)$) et où $\{ \}$ indique les crochets de Poisson tel que :

$$\{f, g\} = \sum_i \frac{\partial f}{\partial p_i} \frac{\partial g}{\partial q_i} - \frac{\partial f}{\partial q_i} \frac{\partial g}{\partial p_i}$$

Dans le cadre de l'approximation séculaire qui consiste à appliquer la théorie des perturbations à un problème classique, les termes qui oscillent rapidement sont négligés. \mathbf{L} et \mathbf{A} varient peu durant la période de rotation de l'électron sur l'ellipse de Kepler, les membres de droite des équations (I.22) peuvent être moyennés sur cette période en considérant \mathbf{L} et \mathbf{A} comme constants au premier ordre (moyenne séculaire). Ces équations deviennent :

$$\begin{cases} \frac{d\mathbf{L}}{dt} \sim \langle \{V, \mathbf{L}\} \rangle \sim \{ \langle V \rangle, \mathbf{L} \} \\ \frac{d\mathbf{A}}{dt} \sim \langle \{V, \mathbf{A}\} \rangle \sim \{ \langle V \rangle, \mathbf{A} \} \end{cases}$$

$\langle V \rangle$ représente la moyenne temporelle de V sur une trajectoire non perturbée. Il s'exprime en fonction des composantes des vecteurs \mathbf{L} et \mathbf{A} [DEL90].

$$\langle V \rangle = \frac{\gamma^2}{-32 E_0} \left(L_z^2 + \frac{1}{-2 E_0} (1 + 4A^2 - 5A_z^2) \right) = \frac{\gamma^2}{-32 E_0} \left(L_z^2 + \frac{1 + \Lambda}{-2 E_0} \right) \text{ avec } \Lambda = 4A^2 - 5A_z^2$$

où E_0 désigne l'énergie non perturbée (c'est à dire sans terme diamagnétique). Donc $\langle V \rangle$ est une fonction des composantes de \mathbf{L} et \mathbf{A} qui sont constantes du mouvement du système non perturbé (atome d'hydrogène isolé), ceci a pour conséquence:

$$(I.23) \{ H, \langle V \rangle \} = \{ H_0, \langle V \rangle \} = 0$$

L'équation (I.23) signifie que $\langle V \rangle$ est une constante de mouvement du système valable au 4^{ème} ordre en B près décrit par l'hamiltonien H (atome + champ magnétique), par conséquent Λ l'est aussi. Λ est appelé invariant adiabatique.

L'existence de la constante du mouvement approchée Λ est tout à fait fondamentale; en effet L_z , E et Λ étant 3 constantes du mouvement qui commutent et le système étant de dimension 3, ces 3 intégrales premières indépendantes suffisent à décrire complètement le mouvement dans la limite des champs faibles [LAN69].

Les modules $|\mathbf{A}|$ et $|\mathbf{L}|$ sont reliés par:

$$\begin{cases} |\mathbf{A}|^2 = 1 - \frac{|\mathbf{L}|^2}{n^2} \\ |\mathbf{L}| > L_z \end{cases}$$

Ces deux relations impliquent l'inégalité :

$$|\mathbf{A}|^2 \leq 1 - \frac{M^2}{n^2}$$

Le vecteur \mathbf{A} est donc contenu dans une sphère centrée à l'origine de rayon $(1 - M^2/n^2)^{1/2}$. L'existence d'une borne supérieure pour le module de \mathbf{A} a une autre conséquence: les valeurs de Λ sont elles aussi bornées.

$$-1 + \frac{M^2}{n^2} \leq -A^2 \leq \Lambda \leq 4A^2 \leq 4 \left(1 - \frac{M^2}{n^2} \right)$$

Les valeurs extrémales pour Λ sont obtenues pour $M = 0$: $-1 \leq \Lambda \leq 4$

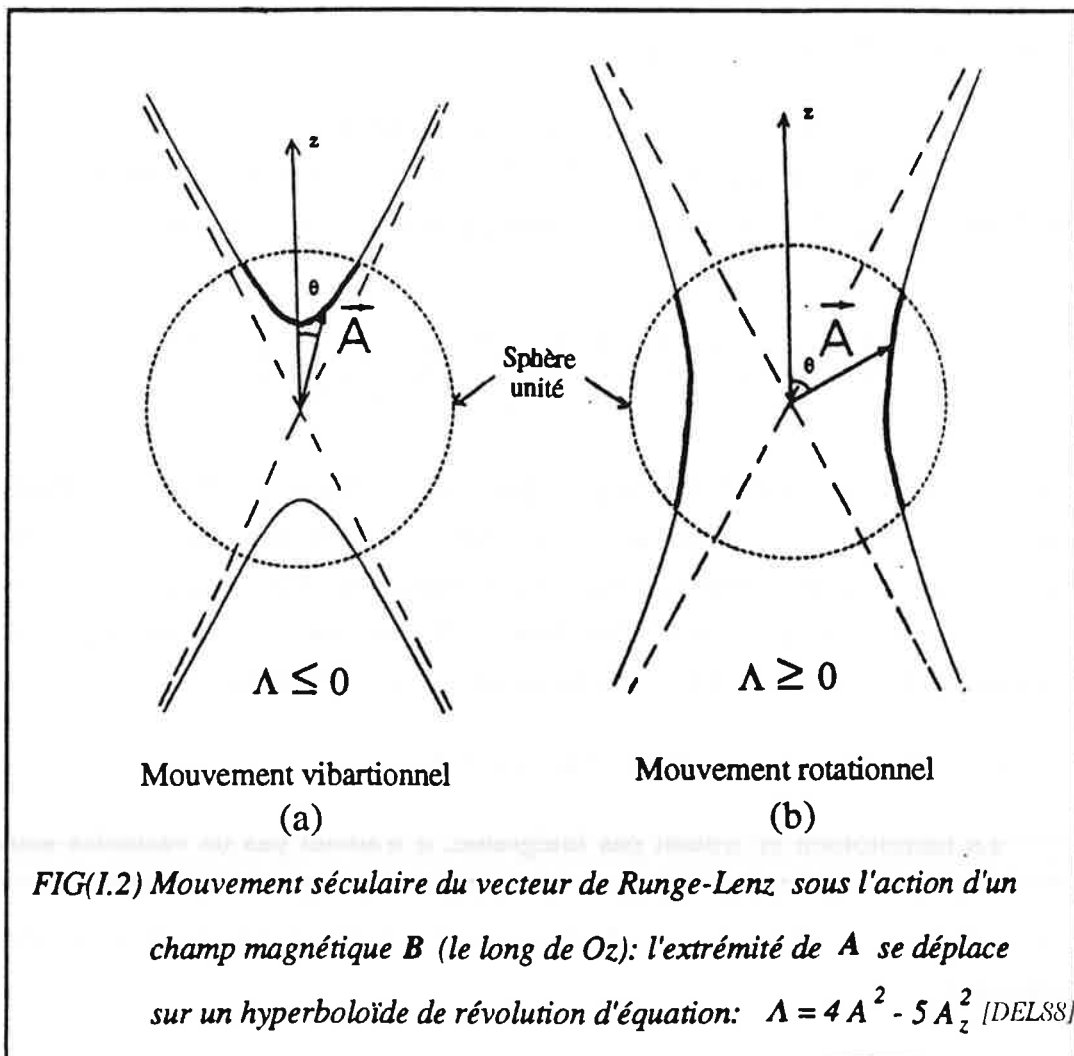
Λ étant constante; lors du mouvement séculaire, l'extrémité du vecteur de Lenz \vec{A} se déplace sur un hyperboloïde de révolution d'équation :

$$\Lambda = 4 A_x^2 - 5 A_z^2 = 4 A_x^2 + 4 A_y^2 - A_z^2 = \text{constante}$$

On distingue deux cas :

- Λ négatif : l'hyperboloïde a deux nappes symétriques par rapport au plan $z = 0$. Le vecteur \vec{A} oscille autour du champ magnétique et reste essentiellement localisé près de l'axe Oz . (figure (I.2a)). Le mouvement est du type " vibrationnel ".

- Λ positif : l'hyperboloïde a une seule nappe. Le vecteur \vec{A} oscille de part et d'autre du plan xOy perpendiculaire à l'axe du champ magnétique (figure (I.2b)). Le mouvement est dit du type " rotationnel ".



b. Coordonnées semi paraboliques. Equivalence avec deux oscillateurs harmoniques à 2D couplés.

Nous avons montré au paragraphe (A.I.2) de ce chapitre que l'atome d'hydrogène isolé est équivalent à deux oscillateurs harmoniques fictifs à deux dimensions, isotropes indépendants. Etudions ce que devient cette équivalence quand on soumet l'atome d'hydrogène à un champ magnétique intense.

Le hamiltonien du système (atome + champ magnétique) exprimé en coordonnées semi-paraboliques (u, v, ϕ) est:

$$H = H_0 + \frac{\gamma}{2} L_z + \frac{\gamma^2}{8} u^2 v^2$$

L'énergie propre E du système s'exprime comme la somme de trois termes, l'énergie du système non perturbé E_0 , l'énergie paramagnétique $E_p (= \gamma/2 L_z)$ et l'énergie diamagnétique E_d : $E = E_0 + E_p + E_d$.

Comme dans le cas d'un champ extérieur nul (cf paragraphe A.I.2), pour toute énergie E on définit H' tel que: $H' = (H - E)(u^2 + v^2) + 2$. En utilisant l'équation (I.2) qui donne l'expression de H'_0 en coordonnées semi-paraboliques, le hamiltonien H' se récrit comme suit:

$$H' = \left\{ \frac{p_u^2}{2} + \frac{L_z^2}{2u^2} - \left(E - \frac{\gamma}{2} L_z \right) u^2 \right\} + \left\{ \frac{p_v^2}{2} + \frac{L_z^2}{2v^2} - \left(E - \frac{\gamma}{2} L_z \right) v^2 \right\} + \frac{\gamma^2}{8} u^2 v^2 (u^2 + v^2)$$

Il s'en suit que en présence d'un champ magnétique d'intensité γ , l'atome d'hydrogène de moment cinétique L_z , est équivalent à une paire d'oscillateurs harmoniques à deux dimensions isotropes de moment cinétique L_z , de pulsation $(-2(E_0 + E_d))^{-1/2}$, et dont la somme des énergies propres vaut 2. Ces deux oscillateurs sont couplés par le potentiel anharmonique $V' = \gamma^2/8 [u^2 v^2 (u^2 + v^2)]$ dû à l'interaction diamagnétique.

c. Variables action angle. Cas $L_z = 0$

Le hamiltonien H' n'étant pas intégrable, il n'admet pas de variables action angle. Dans le cas particulier où $L_z = 0$, on l'exprimera [DEL90] en fonction des variables action angle (I.3) mises en évidence pour le système dans le cas d'un champ extérieur nul:

$$H' = 2 (-2 E_0)^{1/2} (I_u + I_v) + V'$$

$$(I.24) \quad V' = \gamma^2 (-2 E_0)^{-3/2} I_u (1 + \cos\theta_u) I_v (1 + \cos\theta_v) \\ \left[I_u (1 + \cos\theta_u) + I_v (1 + \cos\theta_v) \right]$$

$(I_u$ et $I_v)$, $(\theta_u$ et $\theta_v)$ représentent respectivement les énergies et les phases de chaque oscillateur.

Dans le cadre de l'approximation séculaire, on remplace la perturbation V' par sa moyenne sur une trajectoire non perturbée. Pour cela, on considère que I_u , I_v et $(\theta_u - \theta_v)$ sont constants durant la période d'une ellipse de Kepler non perturbée, tenant compte de (I.3), la moyenne temporelle de $\langle V' \rangle$ s'écrit comme suit :

$$(I.25) \quad \langle V' \rangle = \frac{\gamma^2}{8 (-2 E_0)^2} \left(1 + 2E_0(I_u - I_v)^2 \right) \left(\frac{3}{2} + \cos(\theta_u - \theta_v) \right) = \text{constante}$$

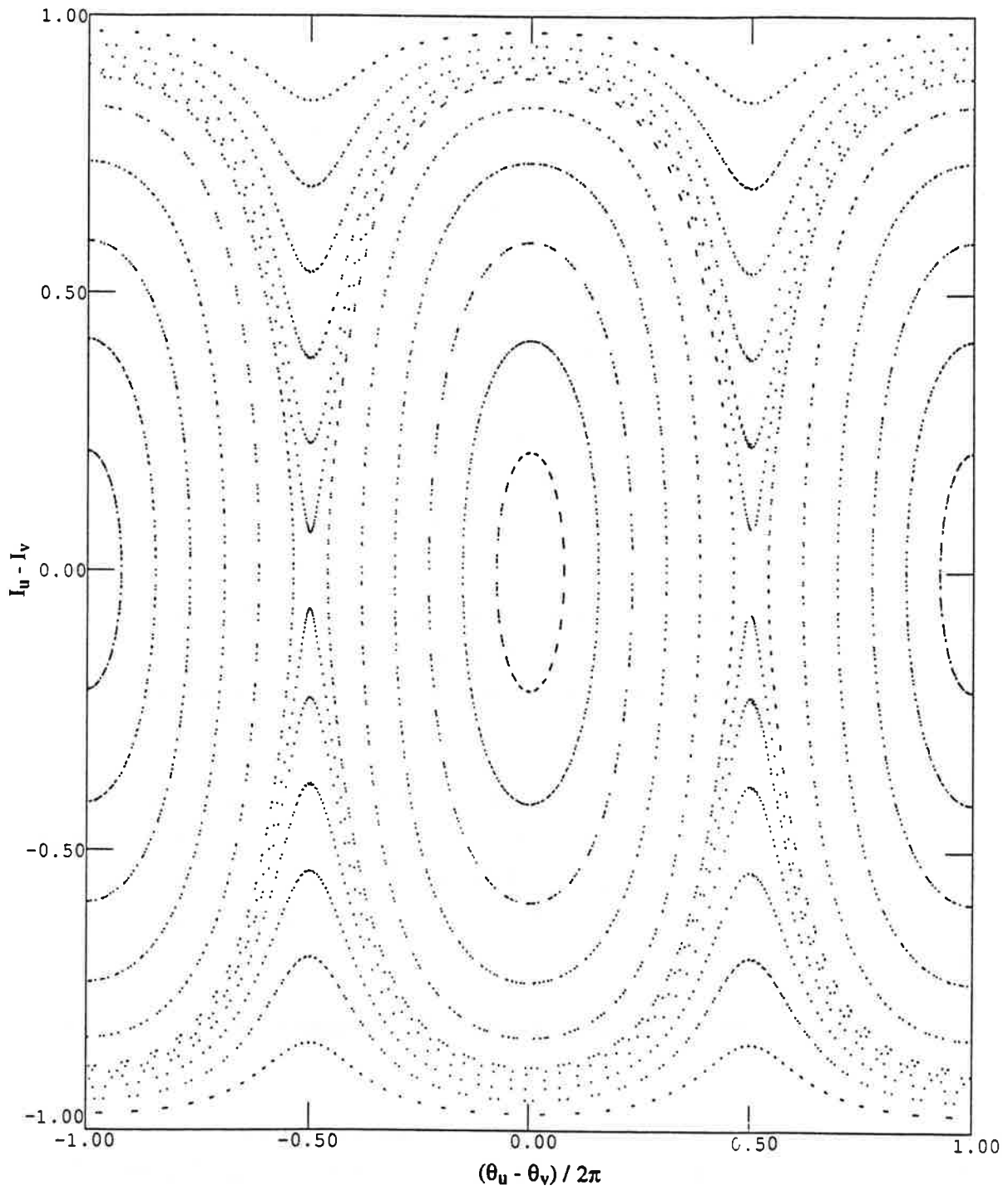
Avec cette constante de mouvement supplémentaire, le système devient intégrable. Le mouvement a lieu sur un tore invariant dont l'équation est (I.25). Sur la figure (I.3) on représente $(I_u - I_v)$ en fonction de $(\theta_u - \theta_v)$ pour différentes valeurs de la constante $\langle V' \rangle$.

$\langle V' \rangle$ est maximal quand $I_u = I_v$ et $\theta_u = \theta_v$, en ce point qui représente le point central de la figure (I.3), l'énergie est équirépartie sur les deux oscillateurs qui sont en phase. $\langle V' \rangle$ est minimal quand $(I_u - I_v) = \pm 1/(-2E_0)^{1/2}$, ces points correspondent au cas où l'énergie est entièrement sur l'un des deux oscillateurs. En ce point la corrélation entre les deux oscillateurs est minimale.

L'allure des orbites régulières dépend de leur localisation autour de ces points singuliers:

- Les orbites fermées (rotationnelles) correspondent à un mouvement autour du point central (l'énergie est équirépartie sur les deux oscillateurs). Dans l'espace réel ces orbites correspondent à un mouvement dans le plan xOy perpendiculaire à l'axe Oz du champ magnétique.

- Les orbites ouvertes (vibrationnelles) correspondent à un mouvement près d'un des points où $\langle V' \rangle$ est minimal (l'énergie est accaparée par l'un des deux oscillateurs)



FIG(1.3) $(I_u - I_v) = f(\theta_u - \theta_v)$ est représentée pour différentes valeurs de $\langle V \rangle$ dans le cadre de l'approximation séculaire.

Dans l'espace réel ces orbites correspondent à un mouvement qui a lieu selon l'axe négatif ou positif du champ magnétique.

Comme on le verra plus loin, l'utilisation des variables dynamiques $S^{(\alpha)}$ et $T^{(\alpha)}$ pour exprimer le hamiltonien effectif H' du système et l'intégration numérique des équations du mouvement correspondantes (pour des valeurs du paramètre d'échelle où la dynamique classique du système est régulière) permet de retrouver tous les résultats exposés dans ce paragraphe.

B.II.2. Traitement quantique.

Le hamiltonien en unités atomiques s'écrit :

$$H = \frac{p^2}{2} - \frac{1}{r} + \frac{\gamma}{2} L_z + \frac{1}{8} \gamma^2 (x^2 + y^2) = H_0 + V$$

La symétrie sphérique du potentiel coulombien est rompue, seule subsiste la symétrie de révolution autour de l'axe Oz du champ magnétique γ . Il s'en suit que L_z est une constante du mouvement exacte. Le hamiltonien H étant invariant par transformation d'inversion $\mathbf{r} \rightarrow -\mathbf{r}$, la parité totale π_t est aussi une constante du mouvement. A partir des constantes du mouvement L_z et π_t on peut construire une autre constante du mouvement π_z traduisant la symétrie par réflexion par rapport au plan xOy .

L'existence de la constante de mouvement L_z permet de se placer dans un sous espace de M fixé et d'isoler la dépendance en $e^{-iM\phi}$ de la fonction d'onde en utilisant une base qui diagonalise H_0 et L_z . Dans ce sous espace, le terme paramagnétique du hamiltonien n'apporte qu'un déplacement global des niveaux d'énergie ($n M$) qui sont $(n - |M|)$ fois dégénérés à l'ordre zéro. On notera que toutes les bases qui diagonalisent H_0 et L_z diagonalisent aussi le terme paramagnétique (effet Zeeman).

La diagonalisation du terme diamagnétique n'est quant à elle pas immédiate. En effet l'opérateur (x^2+y^2) ne commute ni avec L^2 ni avec A_z et n'est donc diagonal ni en base sphérique ni en base parabolique. De plus le choix d'une base hydrogénoïde en champ nul est mal adapté car les éléments de matrice du potentiel diamagnétique V ne possèdent pas de règle de sélection sur n , ce qui fait à priori intervenir dans tout calcul l'ensemble de tous les états des spectre discret et continu.

a. Equivalent quantique de l'approximation séculaire classique.

En l'absence de la perturbation V la couche n est n^2 fois dégénérée; la perturbation V va lever cette dégénérescence. Dans le régime des champs faibles, au premier ordre de la théorie des perturbations, les énergies et les fonctions d'onde s'obtiennent en diagonalisant dans le sous-espace (n, M) la restriction de la perturbation magnétique:

$$V_n = P_n V P_n$$

où P_n désigne le projecteur sur le sous espace (n, M) . Cette approche est l'équivalent quantique de l'approximation séculaire classique. L'opérateur V_n est à l'ordre le plus bas un opérateur effectif agissant uniquement dans la couche n , il s'exprime facilement en fonction des composantes des générateurs $S^{(n)}$ et $T^{(n)}$ du groupe dynamique $SO(2,2)$ dont les éléments de matrice sont faciles à calculer.

$$V' = (u^2+v^2) V = \gamma^2 \alpha^3 \left(S_1^{(\alpha)} + S_3^{(\alpha)} \right) \left(T_1^{(\alpha)} + T_3^{(\alpha)} \right) \left(S_1^{(\alpha)} + S_3^{(\alpha)} + T_1^{(\alpha)} + T_3^{(\alpha)} \right)$$

L'équation de Schrödinger se récrit alors comme suit:

$$(I.26) \left\{ S_3^{(\alpha)} + T_3^{(\alpha)} + \frac{\alpha}{2} V' - \alpha \right\} |\psi\rangle = 0$$

avec $\alpha = 1/\sqrt{-2E}$ et:

Les opérateurs $S_1^{(n)}$ et $T_1^{(n)}$ sont des opérateurs d'échelle (comme a et a^+ pour l'oscillateur harmonique), ils connectent les états propres α et $\alpha \pm 1$, alors que $S_3^{(n)}$ et $T_3^{(n)}$ sont diagonaux en α . A l'ordre le plus bas de la théorie des perturbations $\alpha_0 = n$ et l'opérateur V_n s'obtient en ne conservant dans l'expression de V' que les combinaisons d'opérateurs ne modifiant pas la valeur de $S_3^{(\alpha)} + T_3^{(\alpha)} = n$ comme par exemple $S_3^{(n)}S_+^{(n)}S_-^{(n)}$, $T_3^{(n)}(S_3^{(n)})^2$, $T_+^{(n)}T_-^{(n)}S_3^{(n)}$ qui ont des éléments diagonaux dans la couche n , on obtient alors:

$$V_n = \frac{\gamma^2 n^2}{8} \left(- (S^{(n)})^2 - (T^{(n)})^2 + 6T_3^{(n)} S_3^{(n)} + 2S_+^{(n)}T_-^{(n)} + 2S_-^{(n)}T_+^{(n)} \right)$$

Utilisant l'isomorphisme (I.17), on déduit immédiatement l'expression de V_n en fonction des composantes des moments angulaires J_1 et J_2 .

$$V_n = \frac{\gamma^2 n^2}{16} (3n^2 + 1 - 4 J_{1z}^2 - 4 J_{2z}^2 + 4 J_{1z} J_{2z} - 4 J_1^+ J_2 - 4 J_1 J_2^+)$$

ou encore en fonction du vecteur moment cinétique L et du vecteur de Runge Lenz réduit A' :

$$V_n = \frac{\gamma^2 n^2}{16} (n^2 + 3 + L_z^2 + 4 A_z'^2 - 5 A_z'^2) = \frac{\gamma^2 n^2}{16} (n^2 + 3 + n^2 \Lambda + L_z^2)$$

Au premier ordre en γ^2 , V_n est diagonal dans la base propre de l'hamiltonien H . V_n est donc une constante de mouvement approchée. Comme en mécanique classique on retrouve que à n et M fixés $\Lambda = 4A^2 - 5A_z^2$ est une constante de mouvement.

b. Le multiplet diamagnétique.

- Structure.

Pour déduire les énergies et les états propres associés aux niveaux du multiplet ($n M$), il faut diagonaliser l'opérateur V_n . La difficulté réside dans le fait que V_n ne commute ni avec L^2 ni avec A_z et n'est donc diagonal ni en base sphérique qui diagonalise L_z et L^2 ni en base parabolique qui diagonalise L_z et A'_z (ou J_{1z} et J_{2z}) ni en base "lambda" qui diagonalise L_z et λ^2 ($\lambda = A'_x, A'_y, L_z$).

En base sphérique les éléments de matrice de la perturbation diamagnétique s'écrivent:

$$\begin{aligned} \langle n l M | \frac{\gamma^2}{8} (x^2 + y^2) | n l' M \rangle &= \langle n l M | \frac{\gamma^2}{8} r^2 \sin^2 \theta | n l' M \rangle \\ &= \frac{\gamma^2}{8} \langle n l | r^2 | n l' \rangle \langle n l M | \sin^2 \theta | n l' M \rangle \end{aligned}$$

La partie radiale peut être calculée analytiquement à partir des expressions des fonctions hydrogénoïdes. La partie angulaire est calculable grâce aux relations de combinaison des harmoniques sphériques Y_l^M .

L'opérateur $(x^2 + y^2)$ étant la combinaison linéaire d'un tenseur de rang zéro et d'un tenseur de rang deux, seuls les éléments de matrice vérifiant $l' = l, l \pm 2$ sont non nuls. La sous matrice à diagonaliser est tridiagonale et on peut diagonaliser séparément les états de l pair et les états de l impair, ce qui n'est qu'une manifestation de la

conservation de la parité totale $\pi_l = (-1)^l$. La dimension des sous matrices à diagonaliser est déterminée par le nombre de valeurs de l possibles ayant la même parité et vérifiant de plus la condition $|M| \leq l \leq n-1$.

Les valeurs propres rangées par ordre décroissant **indépendamment de leur parité** sont repérées par un entier K variant de 0, pour le niveau d'énergie le plus élevé, à $K = n - |M| - 1$ pour le moins élevé. Les états propres obtenus sont des combinaisons linéaires des harmoniques sphériques $|n l M\rangle$ et sont donc aussi états propres de l'hamiltonien sans champ magnétique. Ces états sont notés $|n K M\rangle$ et leur énergie E_{nKM} .

Dans un sous espace de n , M et Π_l fixés, le spectre d'énergie est donc :

$$E_{nKM} = \frac{-1}{2n^2} + \frac{\gamma}{2} M + \frac{\gamma^2}{8} \langle \rho^2 \rangle_{nKM}$$

Les valeurs propres $\langle \rho^2 \rangle_{nKM}$ de V_n sont toutes non dégénérées. A l'ordre 2, le champ magnétique lève donc toutes les dégénérescences du spectre de l'atome d'hydrogène. L'ensemble des niveaux d'énergie à n et M fixés forment ainsi ce que l'on appellera un multiplet diamagnétique.

On montre [HER82] que les états pairs et impairs alternent dans le spectre. L'état supérieur $K = 0$ est toujours de parité $\Pi_z = +1$.

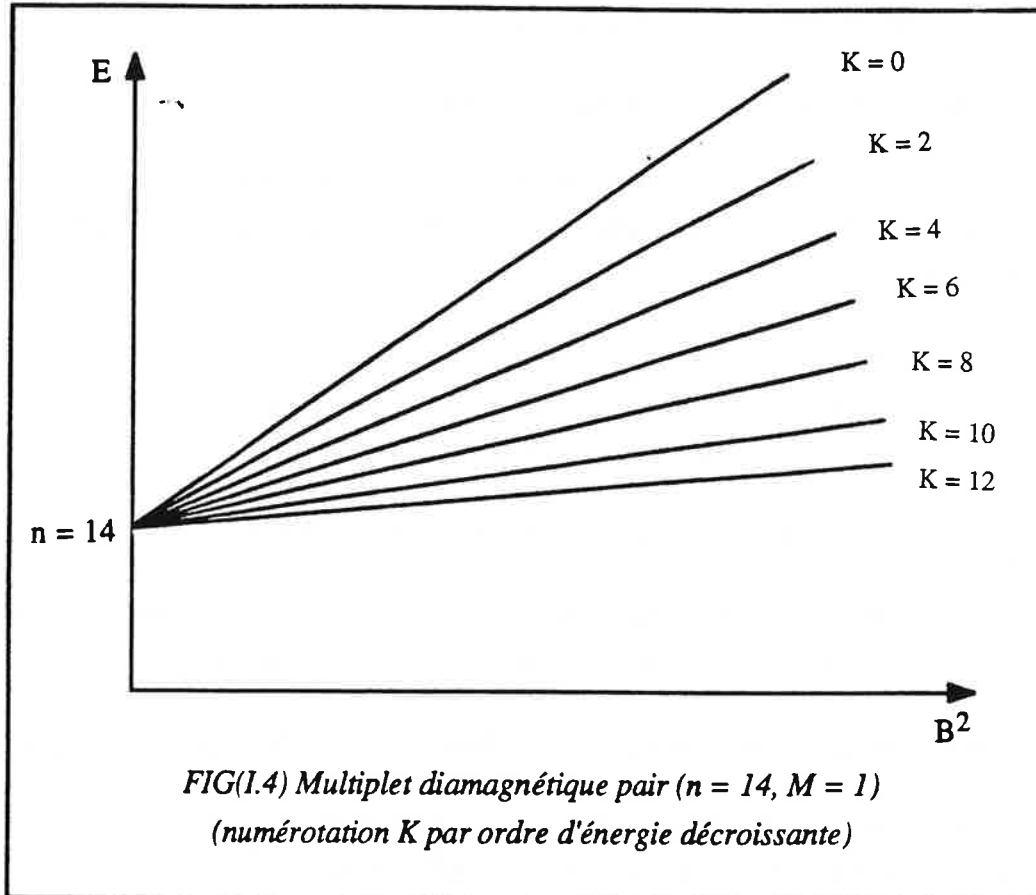
- Les états de basse énergie du multiplet dits, vibrationnels, sont associés aux valeurs négatives de Λ , ils n'existent que si la condition $\sqrt{5} |M| \leq n$ est satisfaite [CAC88]. Ils correspondent à des niveaux doublement dégénérés. Chaque doublet est constitué d'un état pair et d'un état impair.

- Les états de haute énergie du multiplet dits, rotationnels, sont associés aux valeurs positives de Λ , ils sont non dégénérés, états pairs et impairs sont alternés.

La transition entre ces deux types d'états a lieu au niveau de la séparatrice du mouvement classique.

Les états propres $|n K M\rangle$ respectent la symétrie en champ faible, ils forment la base la mieux adaptée pour décrire le régime des champs faibles, mais ces états ne peuvent être définis que de façon numérique.

La valeur moyenne $\langle \rho^2 \rangle_{nKM}$ étant indépendante de B , l'énergie du niveau K en fonction de B^2 est représentée par un droite de pente $\langle \rho \rangle^2 / 8B_c^2$. Sur la figure (I.4), on représente le multiplet ($n = 14, M = 1, \pi_t = +1$) de l'hydrogène (énergie en fonction de l'intensité du champ magnétique).



- La base parabolique et les états vibrationnels.

La projection des états propres de la perturbation diamagnétique obtenue par diagonalisation dans un sous espace à n et M fixés sur les états de la base parabolique a été calculée dans la référence [ZIM83]. Il a ainsi été montré que les états les plus profonds du multiplet diamagnétique ($\Lambda \approx -1$) sont des états paraboliques presque purs correspondant aux valeurs maximales de A_z soit :

$$|n_1 - n_2| \approx n - |M| - 1$$

En particulier pour l'état le plus bas ($K = n-1$) du multiplet diamagnétique ($n, M = 0$) le résultat est [DEL87]:

$$\langle n n_1 = 0 M = 0 | n K = n-1 M = 0 \rangle \approx 0.854$$

Ceci montre que la symétrie parabolique est bien adaptée à la description des états profonds du multiplet diamagnétique hydrogénoïde.

- La base " lambda " et les états rotationnels.

Les états du haut du multiplet sont presque des états propres de l'opérateur $A_x^2 + A_y^2$ et sont bien décrits par la symétrie rotationnelle associée au moment angulaire à 3 dimensions λ (A'_x, A'_y, L_z).

Les états du haut du multiplet sont donc presque des états λ purs [LAB81], en particulier le recouvrement entre l'état le plus haut ($K = 0$) du multiplet diamagnétique ($n, M = 0$) et l'état λ ($\lambda = n-1$) est donné dans la référence [DEL87] :

$$\langle n \lambda = n-1 M = 0 | n K = 0 M = 0 \rangle \approx 0.998$$

Cette valeur numérique montre clairement que la symétrie rotationnelle " lambda " est d'excellente qualité pour les états supérieurs du multiplet diamagnétique.

B.III. Régime de champs forts. Dynamique classique chaotique.

Dans le régime de champ fort où le terme diamagnétique de l'hamiltonien du système est comparable au terme coulombien, la méthode perturbative n'est plus valable. La constante de mouvement approchée mise en évidence en champ faible n'est plus valable. Classiquement, les équations d'évolution du système ne sont plus intégrables formellement, on a recours à des méthodes numériques d'intégration. Quantiquement, la perturbation diamagnétique relie entre eux tous les états du système (y compris ceux qui n'appartiennent pas à une même couche d'énergie n). Il faut donc diagonaliser le terme diamagnétique sur une base d'états qui comprend tous les multiplets et le continuum; pour cela il faut utiliser la base la plus complète possible, mais aussi celle où les éléments de matrice d'opérateurs usuels sont faciles à calculer.

Comme on le verra dans la suite de ce paragraphe, l'équivalence de l'atome d'hydrogène avec le système oscillateur permet l'utilisation des variables dynamiques du groupe $SO(2,2)$, ce qui facilite l'étude classique et quantique du système.

B.III.1. Traitement classique.

a. Trajectoires dans l'espace réel. Coordonnées cylindriques.

Le hamiltonien du système en coordonnées cylindriques s'écrit :

$$H = \frac{p_\rho^2 + p_z^2}{2} + \frac{L_z^2}{2\rho^2} - \frac{1}{\sqrt{\rho^2 + z^2}} + \frac{\gamma}{2} L_z + \frac{\gamma^2}{8} \rho^2$$

Il s'agit d'un système hamiltonien bidimensionnel, indépendant du temps Il appartient à la classe la plus simple des systèmes pouvant présenter une dynamique chaotique. Les équations du mouvement sont :

$$\begin{cases} \dot{\rho} = \frac{\partial H}{\partial p_\rho} \\ \dot{z} = \frac{\partial H}{\partial p_z} \end{cases} \quad \text{et} \quad \begin{cases} \dot{p}_\rho = -\frac{\partial H}{\partial \rho} \\ \dot{p}_z = -\frac{\partial H}{\partial z} \end{cases}$$

Ces équations sont intégrées numériquement [DEL88] pour déduire les trajectoires classiques du système $\rho = f(z)$ pour des valeurs fixées de l'énergie et du champ magnétique cf figures (I.5a et I.5b).

Ces trajectoires ont été calculées pour des valeurs identiques de l'énergie E et du champ magnétique B et selon des conditions initiales différentes. La sensibilité du système aux conditions initiales est bien illustrée sur ces deux figures. Sur la figure (I.5a) la trajectoire est régulière et l'électron n'explore qu'une fraction de l'espace qui lui est accessible (représenté en pointillés sur ces deux figures) compte tenu de la conservation de l'énergie. Sur la figure (I.5b) la trajectoire a un aspect complètement désordonné quoique parfaitement déterministe, l'électron explore tout l'espace qui lui est permis.

Le caractère régulier ou chaotique du mouvement est gouverné par l'existence ou l'absence de corrélations dynamiques entre la position et la direction de l'impulsion de l'électron. Dans le cas où la trajectoire est régulière l'impulsion en un point donné doit vérifier 3 équations exprimant la conservation des 3 constantes du mouvement dont l'une est mise en évidence dans l'approximation séculaire, par conséquent cette impulsion ne peut prendre que deux valeurs suivant deux directions déterminées ce qui restreint

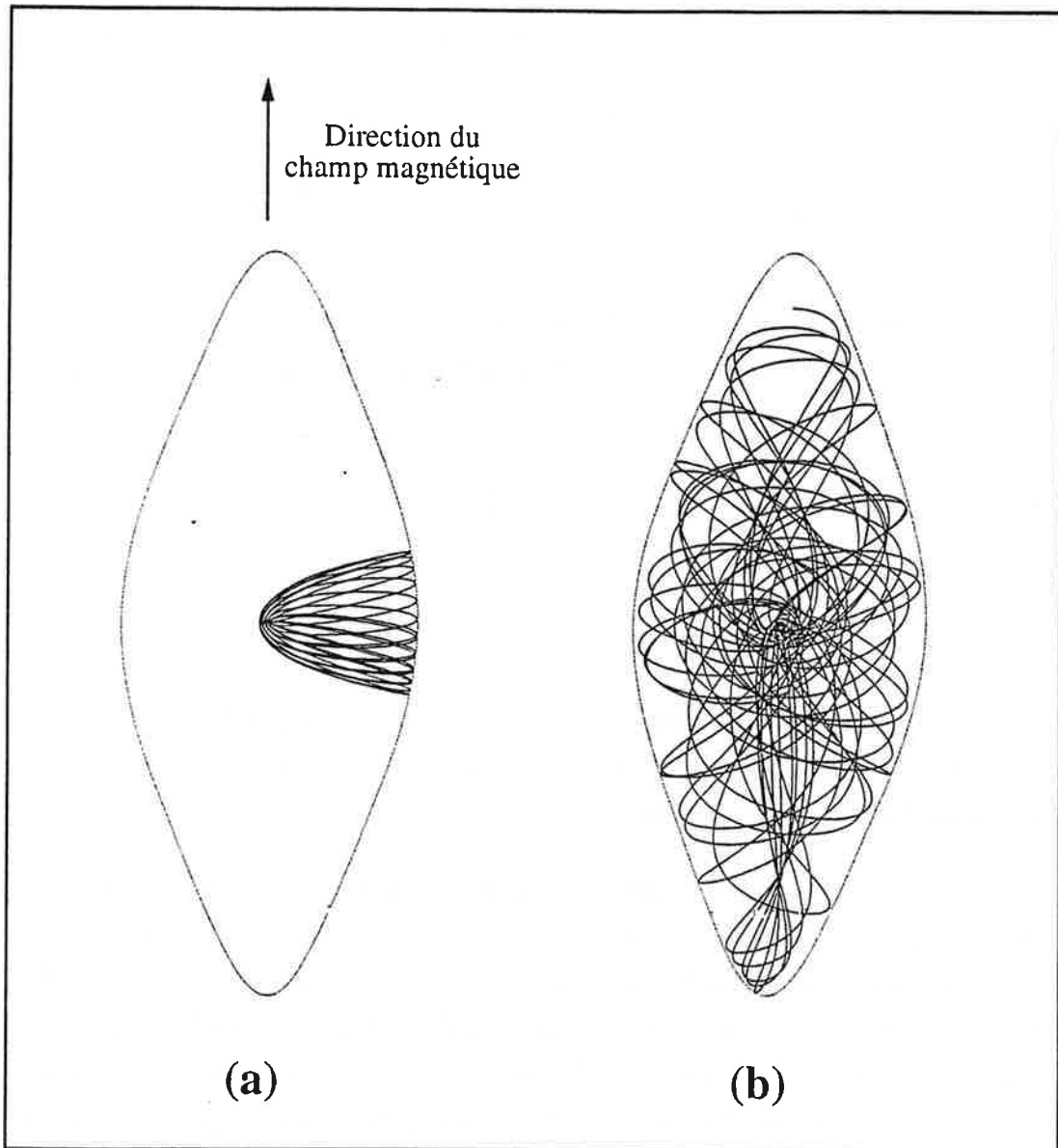


FIG (I.5) Deux trajectoires électroniques typiques régulière (a) et chaotique (b). Elles sont obtenues [D.Delande] par intégration des équations du mouvement du système pour les mêmes valeurs de l' énergie et du champ magnétique ($\epsilon \approx -0,2$) mais pour des conditions initiales différentes. En pointillé, est représentée la limite de l' espace accessible pour l' énergie (négative) considérée.

l'excursion de l'électron et qui confère aux représentations graphiques des trajectoires un caractère ordonné. Lorsque le mouvement est chaotique, la constante du mouvement mise en évidence dans l'approximation séculaire n'est plus valable et l'impulsion peut prendre une infinité de valeurs dans toutes les directions et les corrélations dynamiques entre la position et l'impulsion disparaissent, d'où le caractère apparemment désorganisé des trajectoires.

b. Variables dynamiques. Cas de $L_z = 0$.

L'atome d'hydrogène plongé dans un champ magnétique peut être étudié en utilisant son équivalence avec deux oscillateurs harmoniques couplés par le potentiel anharmonique dû à l'interaction diamagnétique. Cette étude peut se faire en utilisant le groupe dynamique $SO(2,2)$ et les variables dynamiques classiques associées $(S^{(\alpha)} T^{(\alpha)})$. Ces 6 variables possèdent l'inconvénient de ne pas être canoniquement conjuguées l'une à l'autre et de ne pas être indépendantes puisque:

$$(S^{(\alpha)})^2 = (S_3^{(\alpha)})^2 - (S_1^{(\alpha)})^2 - (S_2^{(\alpha)})^2 = \frac{1}{4}(M^2 - 1)$$

et de même pour $T^{(\alpha)}$

Les extrémités des vecteurs $S^{(\alpha)}$ et $T^{(\alpha)}$ se déplacent donc sur un hyperboloïde de révolution autour de l'axe 3. En l'absence de la perturbation V , $S^{(\alpha)}$ et $T^{(\alpha)}$ précessent à la même vitesse angulaire constante $2/\alpha = 2\sqrt{-2E}$. Dans ce qui suit on définira des variables dynamiques canoniques adaptées à la description classique du système.

- Variables dynamiques canoniques.

Pour conserver la symétrie cylindrique autour de l'axe 3, on définit à partir des composantes des générateurs $S^{(\alpha)}$ et $T^{(\alpha)}$ 4 variables notées $(\phi_u, \Delta\phi_u, U_3^{(\alpha)}, X_3^{(\alpha)})$:

$$U_3^{(\alpha)} = T_3^{(\alpha)} + S_3^{(\alpha)}$$

$$X_3^{(\alpha)} = T_3^{(\alpha)} - S_3^{(\alpha)}$$

$$\phi_u = \frac{\phi_T + \phi_S}{2}$$

$$\Delta\phi = \frac{\phi_T - \phi_S}{2}$$

avec ϕ_S et ϕ_T donnés par:

$$\left\{ \begin{array}{l} S_1^{(\alpha)} = \sqrt{\left(S_3^{(\alpha)}\right)^2 - \frac{L_z^2}{4}} \cos \phi_S \\ S_2^{(\alpha)} = \sqrt{\left(S_3^{(\alpha)}\right)^2 - \frac{L_z^2}{4}} \sin \phi_S \\ T_1^{(\alpha)} = \sqrt{\left(T_3^{(\alpha)}\right)^2 - \frac{L_z^2}{4}} \cos \phi_T \\ T_2^{(\alpha)} = \sqrt{\left(T_3^{(\alpha)}\right)^2 - \frac{L_z^2}{4}} \sin \phi_T \end{array} \right.$$

Les 4 quantités ($\phi_u, \Delta\phi_u, U_3^{(\alpha)}, X_3^{(\alpha)}$) sont des variables canoniques conjuguées de l'espace des phases. Dans notre cas particulier, $S_3^{(\alpha)}$ et $T_3^{(\alpha)}$ sont par définition positifs ou nuls, ϕ_S et ϕ_T sont par conséquent des fonctions strictement croissantes du temps. Ces quantités ont une interprétation physique simple : $S_3^{(\alpha)}$ (respectivement $T_3^{(\alpha)}$) représente l'énergie de l'oscillateur selon u (respectivement v), $X_3^{(\alpha)}$ s'interprète donc comme la différence des énergies des deux oscillateurs. ϕ_S et ϕ_T représentent les phases des deux oscillateurs, ϕ_U s'interprète comme la phase globale et $\Delta\phi$ comme le déphasage des deux oscillateurs.

Le hamiltonien effectif H' du système défini pour chaque valeur de l'énergie par $H' = (H - E)(u^2 + v^2) + 2$ s'écrit (cf paragraphe B.I.3) en fonction des variables dynamiques $S^{(\alpha)}$ et $T^{(\alpha)}$ où $\alpha = 1/\sqrt{-2E}$:

$$H' = \frac{2}{\alpha} \left(S_3^{(\alpha)} + T_3^{(\alpha)} \right) + \gamma^2 \alpha^3 \left(S_1^{(\alpha)} + S_3^{(\alpha)} \right) \left(T_1^{(\alpha)} + T_3^{(\alpha)} \right) \left(S_1^{(\alpha)} + S_3^{(\alpha)} + T_1^{(\alpha)} + T_3^{(\alpha)} \right)$$

Dans le cas où $L_z = 0$, on a $\cos(\phi_S) = S_1/S_3$ et $\cos(\phi_T) = T_1/T_3$, l'expression de H' devient (en omettant l'indice α):

$$H' = 2\sqrt{-2E} \left(S_3 + T_3 + \frac{\gamma^2}{2(-2E)^2} S_3 T_3 (1 + \cos\phi_S)(1 + \cos\phi_T) (S_3(1 + \cos\phi_S) + T_3(1 + \cos\phi_T)) \right)$$

En comparant cette expression avec l'expression de l'hamiltonien écrit en fonction des variables action angle (cf équation (I.24)) pour $L_z = 0$, on montre que les variables S_3, T_3, ϕ_S, ϕ_T ne sont en fait que les variables action angle de l'atome d'hydrogène.

- Equations d'évolution.

Au cours du mouvement H' à énergie E est constant et vaut $H' = 2$. Les équations d'évolution des variables dynamiques s'obtiennent en fonction du temps oscillateur τ . Comme on l'a déjà vu (cf paragraphe(B.I.3)) le problème possède une invariance d'échelle, la dynamique du système ne dépend que du paramètre $\varepsilon = E \gamma^{-2/3}$. L'évolution des grandeurs dynamiques d'échelle $(-2E)^{1/2} S_3$, $(-2E)^{1/2} T_3$, ϕ_S , ϕ_T ne dépend que de ε . Afin de simplifier l'écriture des équations nous supposons que $\alpha = 1/\sqrt{-2E} = 1$. Les équations d'évolution en fonction du temps oscillateur τ relié au temps réel par $dt / d\tau = 2r$ sont :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{dS_3}{d\tau} = -\frac{\partial H'}{\partial \phi_S} = \frac{1}{8\varepsilon^3} S_3 T_3 \sin \phi_S (1 + \cos \phi_T) \left(2S_3 (1 + \cos \phi_S) + T_3 (1 + \cos \phi_T) \right) \\ \frac{d\phi_S}{d\tau} = \frac{\partial H'}{\partial S_3} = 2 + \frac{1}{8\varepsilon^3} T_3 (1 + \cos \phi_S) (1 + \cos \phi_T) \left(2S_3 (1 + \cos \phi_S) + T_3 (1 + \cos \phi_T) \right) \\ \text{et les équations symétriques par échange de S et T} \end{array} \right.$$

Compte tenu de l'invariance par translation 2π selon ϕ_S et ϕ_T l'espace des phases accessible aux trajectoires de phase est tel que :

$$\left\{ \begin{array}{l} 0 \leq \phi_S, \phi_T \leq 2\pi \\ \frac{|L_Z|}{2} \leq S_3^{(\alpha)}, T_3^{(\alpha)} \end{array} \right.$$

- Méthode de résolution. Simulations numériques.

Il existe différentes méthodes pour intégrer ce système d'équations différentielles. La méthode de Runge Kutta possède l'avantage d'être efficace et simple à programmer. Elle est bien adaptée à notre problème.

L'espace des phases est de dimension 4; en tenant compte de la conservation de l'énergie il reste 3 variables indépendantes. En champ faible l'approximation séculaire est valable, il existe une constante du mouvement supplémentaire ($\Lambda = 4 A^2 - 5 A_z^2$) et le mouvement a lieu sur une surface de dimension 2 que l'on appelle " un tore invariant." [GUT91]. En champ intense cette approximation n'est plus valable et il reste 3 variables

indépendantes. La principale difficulté est de visualiser sous une forme commode les trajectoires déduites du calcul numérique.

c. Section de Poincaré.

- définition.

C'est une méthode particulièrement utile pour la visualisation des trajectoires des systèmes hamiltoniens conservatifs. Considérons le cas général d'un hamiltonien dépendant de 4 variables indépendantes $H(q_1, q_2, p_1, p_2)$. L'espace des phases pour ce système est de dimension 4 et l'équation $H(q_1, q_2, p_1, p_2) = E = \text{constante}$, définit la surface d'énergie sur laquelle s'inscrit la trajectoire de phase; cette surface est de dimension 3. La résolution de cette équation permet de déterminer une coordonnée, par exemple p_2 , en fonction des 3 autres. On définit ensuite un plan S dit section de Poincaré en fixant par exemple $q_2 = \text{constante}$ et en considérant la suite des points des intersections successives de toute trajectoire avec ce plan pour un signe donné de la vitesse, ces points appartiennent au plan (p_1, q_1) . L'application définie comme ceci est dite de Poincaré. Deux cas se présentent (cf figure (II.6)):

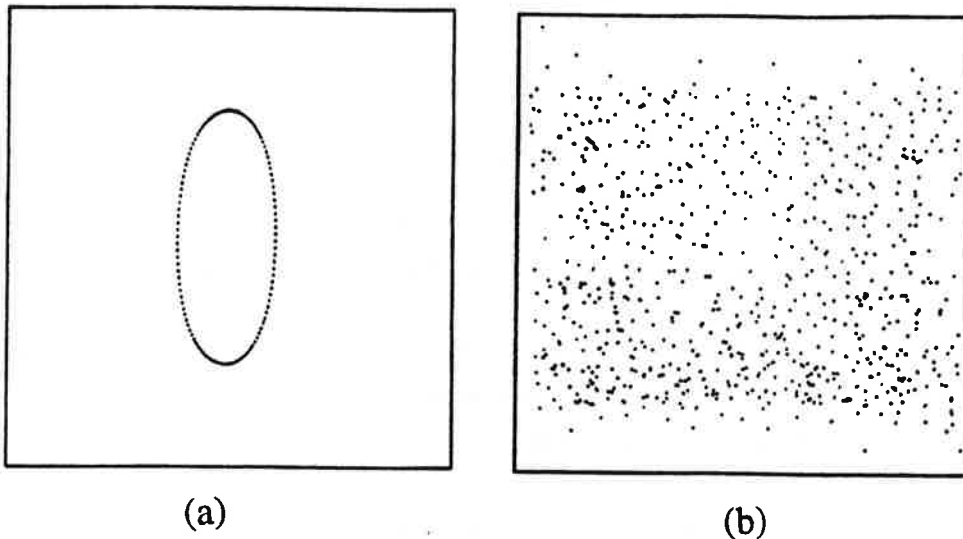


FIG (I.6) Allure d'une section de Poincaré

(a) pour un mouvement régulier

(b) pour un mouvement chaotique

- Ou bien le système possède une constante du mouvement supplémentaire C (autre que l'énergie), la dimensionnalité est alors encore réduite de 1 et le mouvement a lieu sur une surface de dimension 2 "le tore invariant". L'intersection de cette surface avec le plan de section est une courbe (de dimension 1) et les intersections successives de la trajectoire avec le plan de section s'ordonnent sur cette courbe cf figure (I.6a) (mouvement régulier) définie par :

$$\begin{cases} H(q_1, q_2, p_1, p_2) = E \\ C(q_1, q_2, p_1, p_2) = \text{constante} \\ q_2 = \text{constante} \end{cases}$$

- Si par contre il n'existe pas de constante du mouvement supplémentaire, l'intersection de la surface d'énergie (de dimension 3) avec le plan de section n'est autre qu'une portion de ce plan de section et les intersections successives de la trajectoire avec ce plan ne s'ordonnent plus sur une courbe mais paraissent recouvrir uniformément une aire finie de ce plan de section (le mouvement est chaotique) cf figure (I.6b).

Afin de visualiser sur une seule section de Poincaré l'ensemble de la dynamique, il est important de bien choisir le plan de section pour que toutes les trajectoires le coupent.

- Application à l'atome d'hydrogène en champ magnétique.

Dans notre cas particulier, S_3 et T_3 sont par définition positifs ou nuls, ϕ_S et ϕ_T sont par conséquent des fonctions strictement croissantes du temps. Afin de conserver la symétrie entre S et T il est judicieux de choisir comme plan de section le plan défini par:

$$\phi_U = \frac{\phi_S + \phi_T}{2} = \text{constante} \quad (\text{mod. } 2\pi)$$

La section de Poincaré ainsi définie est représentée dans le plan des variables canoniques conjuguées $(X_3, \Delta\phi)$. Ainsi représentée, cette section est symétrique par rapport aux axes $X_3 = 0$ et $\Delta\phi = 0$. La projection de l'espace des phases accessible sur le plan des représentations est :

$$\begin{cases} -1 \leq X_3 \leq 1 \\ -\pi \leq \Delta\phi \leq \pi \end{cases}$$

Dans la limite des champs faibles $\varepsilon \rightarrow -\infty$, ϕ_S et ϕ_T varient de 2π à chaque période. On observe donc une périodicité de π sur $\Delta\phi$, c'est à dire que les courbes régulières sont dédoublées. Ceci correspond au fait qu'une trajectoire de phase fermée coupe obligatoirement deux fois le plan de section.

On réalise des sections de Poincaré pour diverses valeurs du paramètre d'échelle ε allant de -0.8 à -0.121 (cf figure (I.7)). On distingue alors trois régimes :

$\varepsilon \leq -0.54$: Régime régulier.

Dans ce cas le mouvement de l'électron est régulier, toutes les trajectoires de phase sont fermées et leurs points d'intersection avec le plan de section s'alignent sur des courbes régulières. Ces courbes sont de deux types, les vibrationnelles (ouvertes) et les rotationnelles (fermées). Entre les deux il y a la séparatrice.

$-0.54 \leq \varepsilon \leq -0.127$: Régime mixte régulier-chaotique.

A partir de la valeur -0.54 de ε , on observe un phénomène nouveau, au lieu de se répartir sur une courbe régulière les points d'intersection de certaines trajectoires de phase avec le plan de section se répartissent uniformément dans une aire qui s'étend de plus en plus quand ε augmente. Cette situation correspond à la destruction des tores invariants de l'espace des phases: l'invariant adiabatique approché n'est plus valable et le mouvement est chaotique.

A ε donné, selon les conditions initiales, le mouvement peut être régulier ou chaotique. Les premières trajectoires chaotiques qui apparaissent sont celles dont les conditions initiales sont proches de la séparatrice, c'est à dire pour les mouvements n'ayant pas de symétrie dynamique bien déterminée. A $\varepsilon \approx -0.39$, il n'existe plus aucune trajectoire vibrationnelle régulière, alors que la dernière trajectoire rotationnelle n'est détruite qu'à partir de $\varepsilon \approx -0.127$. Ceci s'explique par le fait que la symétrie parabolique des trajectoires vibrationnelles est moins exacte que la symétrie "lambda" des trajectoires rotationnelles.

$-\varepsilon > -0.127$: Régime complètement chaotique.

Les trajectoires diffusent dans l'espace des phases: le chaos a envahi totalement l'espace des phases.

On déduit que l'apparition du chaos et l'existence des symétries dynamiques sont étroitement liées. L'existence d'une symétrie préserve de l'apparition du chaos alors que l'absence de symétrie la favorise.

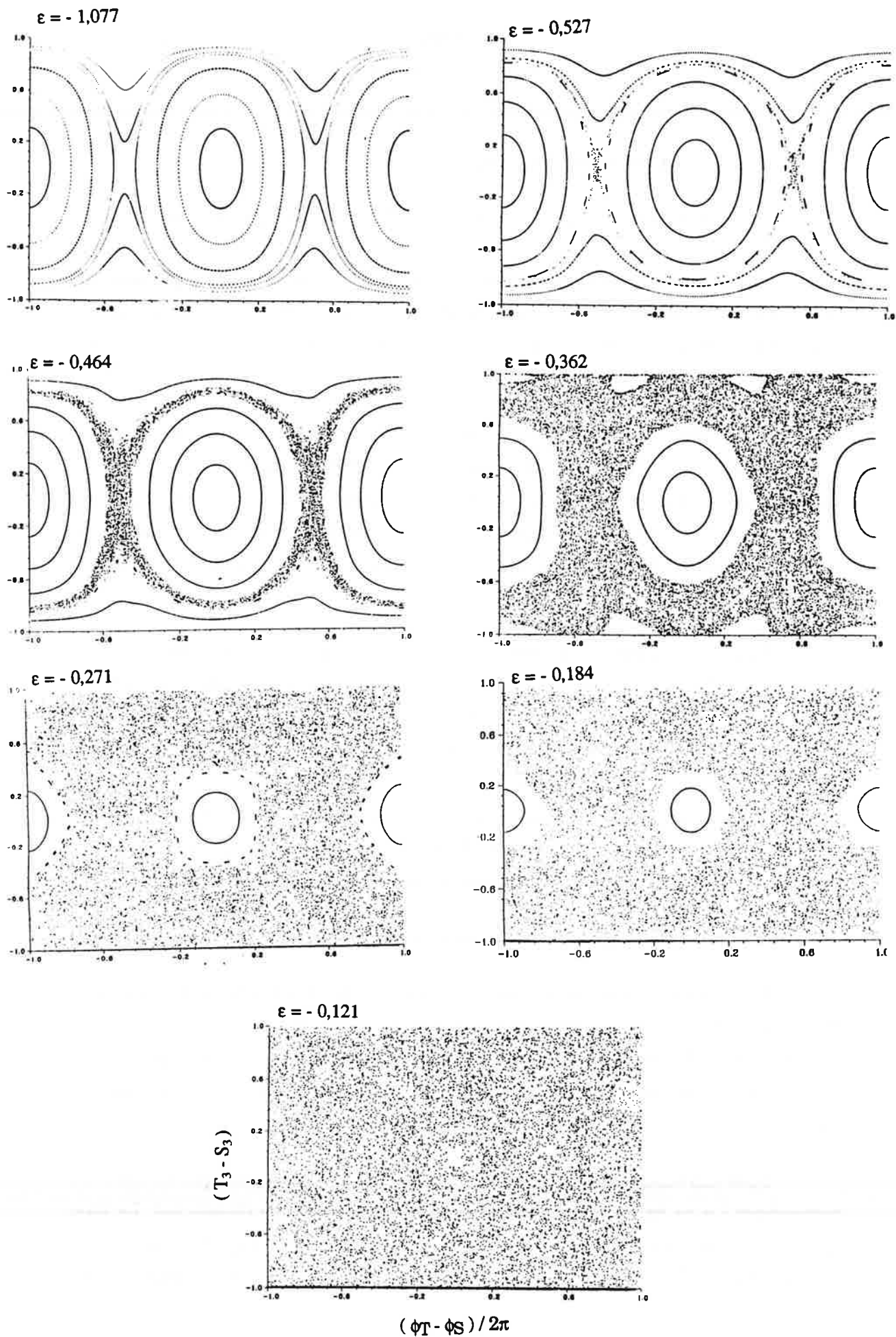


FIG (I.7) Sections de Poincaré pour différentes valeurs du paramètre d'échelle ϵ

B.III.2. Traitement quantique.

Lorsque le champ magnétique est tel que le terme diamagnétique est du même ordre de grandeur que le terme Coulombien, les multiplets diamagnétiques mis en évidence précédemment s'interpénètrent : c'est la zone dite de n-mixing. Ce régime de champ intense est atteint quand la condition $\gamma n^{7/2} \ll 1$ cesse d'être vérifiée et que $\gamma n^3 \approx 1$, cette dernière condition peut aussi s'exprimer en fonction du paramètre d'échelle : $\varepsilon \approx -0,5$.

Ce régime de champ intense s'établit dans le domaine d'énergie qui s'étend de part et d'autre de la limite d'ionisation en champ nul. Les termes coulombien et diamagnétique étant comparables tout traitement par perturbation est interdit, ce qui rend difficile les prédictions théoriques précises. La seule méthode pour accéder aux états et aux niveaux propres du système est la diagonalisation de la matrice d'interaction sur une base d'états aussi grande que possible.

Expérimentalement, les spectres observés par Garton et Tomkins en 1969 [GAR69] révèlent des structures régulières dans cette zone : l'intensité du signal présente des modulations dont la fréquence proportionnelle à ω_c , décroît régulièrement quand l'énergie croît, vaut approximativement $3/2 \hbar \omega_c$ à la limite d'ionisation en champ nul et évolue lentement vers l'écart entre deux niveaux de Landau qui est de $\hbar \omega_c$. Ces résonances ont reçu le nom de résonances de " quasi-Landau ". Ce phénomène a reçu une interprétation simple : ces résonances de quasi-Landau sont associées au mouvement de l'électron dans le plan $z = 0$ perpendiculaire au champ magnétique [GAR77].

a. Principe des simulations numériques.

On a vu que dans le régime d'inter-n-mixing il est impossible d'obtenir analytiquement les états propres du système. Pour les obtenir on a recours à la diagonalisation de l'interaction diamagnétique sur une base d'états aussi grande que possible, cette base doit contenir aussi bien les états du spectre discret que ceux du continuum.

Pour des raisons de symétrie, on peut choisir les bases sphérique $|n l M\rangle$ ou parabolique $|n n_1 n_2 M\rangle$ qui diagonalisent le hamiltonien en champ nul. La base sphérique $|n l M\rangle$ est bien adaptée aux calculs numériques en champ faible où le terme diamagnétique ne mélange que quelques valeurs de n . En régime de champ intense où les

multiplets de différents n interagissent, lors d'un calcul numérique sur une base finie plusieurs éléments de matrice étant négligés, les résultats sont médiocres. En effet en coordonnées sphériques les fonctions radiales hydrogénoïdes ne forment un ensemble complet qu'à condition de tenir compte simultanément des fonctions du spectre discret $R_{nl}(r)$ et de celles du continuum $R_{El}(r)$ ($E > 0$). Il s'avère donc que cette base est mal adaptée aux calculs numériques en champ intense.

Il existe un ensemble complet de fonctions discrètes permettant de décrire les fonctions radiales : il s'agit des fonctions " Sturmienne " décrites au paragraphe (A.III.3.c). Ces fonctions sont non orthogonales mais forment un ensemble dénombrable complet; elles permettent de prendre en compte les effets du continuum en utilisant une infinité dénombrable de fonctions d'onde. Cette base est la base propre de deux oscillateurs équivalents à l'atome d'hydrogène de pulsation $1/\alpha$. L'équation de Schrödinger à résoudre a une expression simple en fonction des générateurs ($S(\alpha)$, $T(\alpha)$) du groupe dynamique $SO(2,2)$ (cf (I.13) et (I.26)). Cette expression peut se mettre [DEL88] sous la forme suivante :

$$(I.27) \left[A^{(\alpha)} - \alpha + (-2E\alpha^2) B^{(\alpha)} + \frac{\gamma^2 \alpha^4}{2} C^{(\alpha)} \right] |\psi\rangle = 0$$

où : $A(\alpha)$, $B(\alpha)$ et $C(\alpha)$ s'expriment en fonction des composantes des générateurs $S(\alpha)$ et $T(\alpha)$:

$$\begin{cases} A^{(\alpha)} = \frac{S_3^{(\alpha)} - S_1^{(\alpha)}}{2} + \frac{T_3^{(\alpha)} - T_1^{(\alpha)}}{2} \\ B^{(\alpha)} = \frac{S_3^{(\alpha)} + S_1^{(\alpha)}}{2} + \frac{T_3^{(\alpha)} + T_1^{(\alpha)}}{2} \\ C^{(\alpha)} = (S_3^{(\alpha)} + S_1^{(\alpha)})(T_3^{(\alpha)} + T_1^{(\alpha)})(S_3^{(\alpha)} + S_1^{(\alpha)} + T_3^{(\alpha)} + T_1^{(\alpha)}) \end{cases}$$

où α est quelconque, non relié à $1/\sqrt{-2E}$.

Les éléments de matrice des ces opérateurs possèdent des règles de sélection très restrictives dans la base sturmienne sphérique $l n l M^{(\alpha)}$ et sont indépendants de α :

$$\begin{cases} \text{pour } A^{(\alpha)} \text{ et } B^{(\alpha)}, |\Delta n| \leq 1, \Delta l = 0, \Delta M = 0 \\ \text{pour } C^{(\alpha)}, |\Delta n| \leq 3, \Delta l = 0, \pm 2, \Delta M = 0 \end{cases}$$

Il s'en suit que si l'on veut générer l'ensemble du spectre du système, cette base est bien adaptée puisque les règles de sélection y sont très sévères et donc les calculs plus rapides.

En fixant 3 des 4 coefficients de l'équation (I.27) on obtient un problème généralisé aux valeurs propres (et non pas un problème réel aux valeurs propres) de la forme :

$$(M - \lambda N) |\psi\rangle = 0$$

où λ et $|\psi\rangle$ sont les valeurs propres et vecteurs propres recherchés. M et N sont des matrices carrées réelles symétriques en forme de bande c'est à dire ne possédant d'éléments non nuls que sur quelques sous diagonales de part et d'autre de la diagonale principale et ce à cause des règles de sélection citées plus haut.

En faisant les choix $\alpha = \alpha_0/(-2E)$ et en fixant le rapport $\beta = \gamma^2/(-2E)^3$ les matrices M et N prennent les expressions suivantes:

$$M = \frac{\beta\alpha_0^3}{2} C^{(\alpha)} + \alpha_0 B^{(\alpha)} - 1, \quad N = A^{(\alpha)}, \quad \lambda = \frac{2E}{\alpha_0}$$

la résolution du problème généralisé associé permet de déterminer le spectre d'énergie à β fixé. Ces simulations permettent une comparaison immédiate avec la dynamique classique qui ne dépend que de ce paramètre.

En faisant les choix $\alpha = \alpha_0$ et en fixant l'intensité du champ magnétique γ , les matrices M et N prennent les expressions suivantes:

$$M = A^{(\alpha)} - \alpha_0 + \frac{\gamma^2\alpha_0^4}{2} C^{(\alpha)}, \quad N = B^{(\alpha)}, \quad \lambda = 2E\alpha_0^2$$

La résolution du problème généralisé associé permet de déterminer le spectre d'énergie à γ fixé. Ces simulations permettent une confrontation directe avec des spectres expérimentaux enregistrés à une valeur du champ magnétique fixée.

Pour calculer les valeurs propres et éventuellement les vecteurs propres, D.Delande et J.C.Gay ont utilisé l'algorithme de Lanczos, le problème est résolu numériquement pour déduire les différentes énergies E à γ fixé, d'une façon analogue à celle exposée dans la référence [ERI80].

La convergence des énergies propres peut être testée en faisant varier la taille de la base ou la fréquence propre de la base oscillateur :

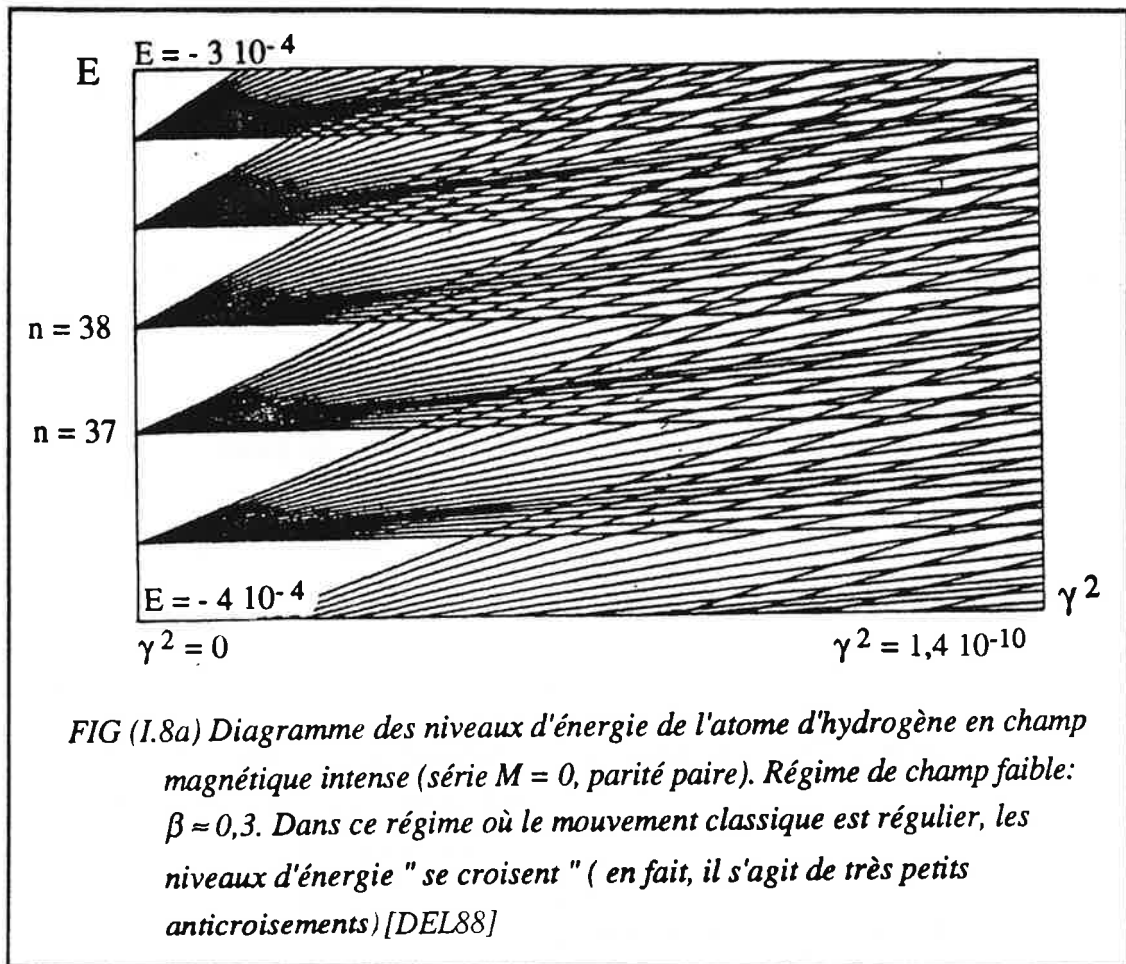
- En augmentant la taille de la base, les valeurs propres et les vecteurs propres convergent vers les valeurs exactes recherchées. En dessous de la limite d'ionisation on peut augmenter suffisamment la taille de la base pour que toutes les valeurs propres convergent. En dessus de la limite d'ionisation, les énergies ne convergent plus exactement, à cause du caractère continu du spectre.

- les valeurs exactes recherchées ne dépendent pas du paramètre α ; à taille de base fixée la fonction représentant la valeur propre en fonction de α présente un palier plus ou moins marqué autour de la valeur propre exacte. Un palier large et plat assure une convergence satisfaisante.

Valeur de ϵ	Taille de la base	Nombre de valeurs propres convergées	Durée du calcul sur station SUN
< -0.54 (champ faible)	2000 x 2000	400	2 mn
< -0.127	4000 x 4000	300	≈ 5 mn

b. Diagramme d'énergie.

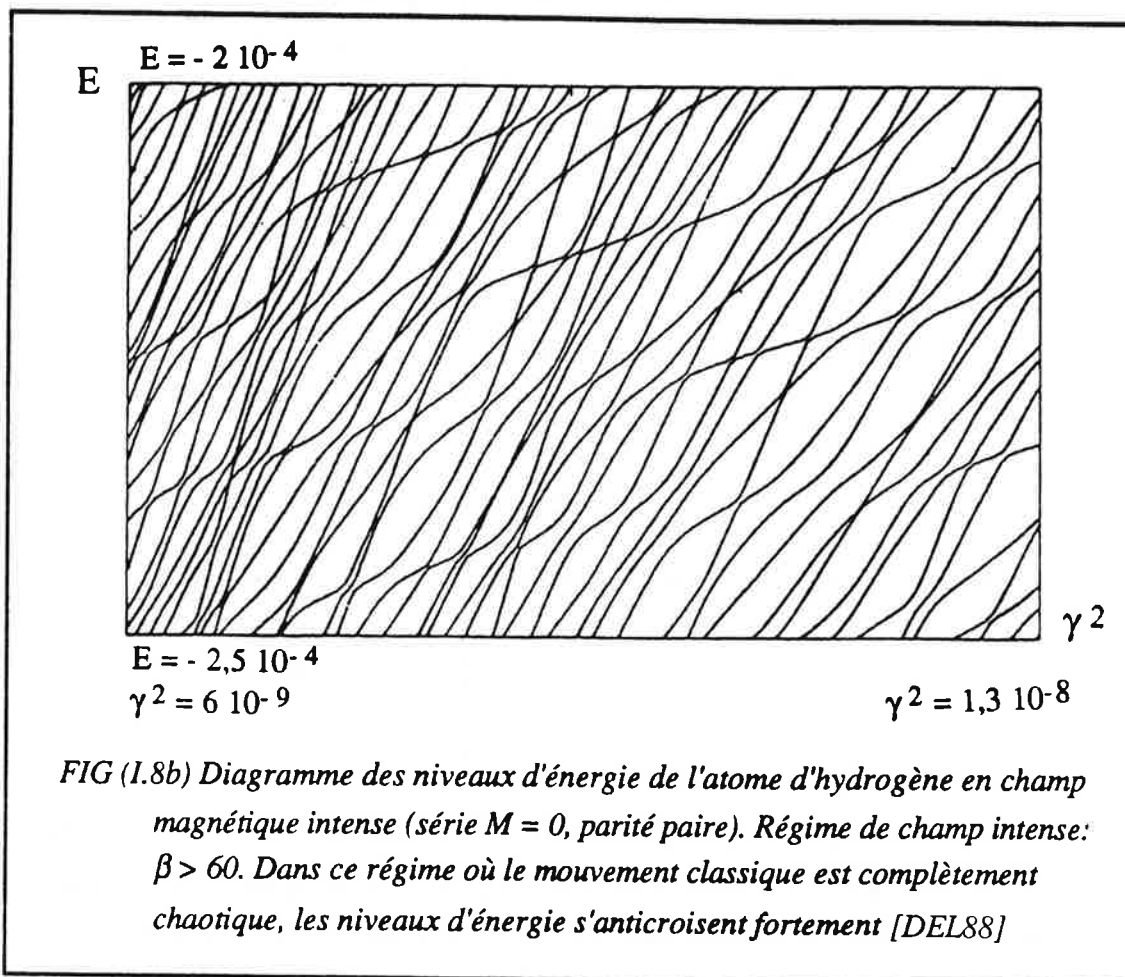
En champ faible comme le montre la figure (I.8a) [DEL88] qui représente le diagramme d'énergie $E = f(\gamma^2)$ pour des états de Rydberg $n \approx 38$ et un champ magnétique compris entre 0 et 2,8T, les multiplets interagissent très peu et s'interpénètrent sans se déformer, ce qui laisse supposer l'existence d'une symétrie supplémentaire analogue à celle qui apparaît dans le cas de l'atome d'hydrogène en présence d'un champ électrique et où les multiplets Stark se croisent.



En fait si on regarde à très petite échelle d'énergie les croisements de niveaux sont en réalité de minuscules anticroisements totalement invisibles sur la figure (I.8a). Ces anticroisements de niveaux sont liés à l'existence de termes d'ordre supérieurs couplant entre eux les différents états du système, la largeur de ces anticroisements qui est l'écart d'énergie minimal entre les deux niveaux mesure directement l'intensité de ce couplage. Cette largeur a été étudiée théoriquement par des calculs de diagonalisation dans les références [ZIM80, DEL81] pour des couples de niveaux de type $(|n, K = 0\rangle, |n + 1, K_{\text{Max}}\rangle$ ou $|n, K = 0\rangle, |n + 1, K_{\text{Moy}}\rangle$ (où K_{Max} , désigne le niveau le plus bas du multiplet et K_{Moy} , le niveau K central du multiplet). Les calculs montrent une dépendance en e^{-an} de cette largeur, a étant plus important pour le couple $|n, K = 1\rangle, |n + 1, K_{\text{Max}}\rangle$ que pour le couple $|n, K = 0\rangle, |n + 1, K_{\text{Moy}}\rangle$.

Quand le champ magnétique augmente les premiers " grands " anticroisements apparaissent dès $\epsilon \approx -0.5$ au voisinage de la séparatrice entre états rotationnels et

vibrationnels, puis à partir de $\epsilon \approx -0.3$, les états vibrationnels inférieurs des multiplets diamagnétiques subissent de larges anticroisements. Quand ϵ augmente, les larges anticroisements de niveaux sont de plus en plus nombreux et atteignent finalement (vers $\epsilon \approx -0.127$) les états rotationnels des multiplets diamagnétiques.



Dans le régime des champs intenses ($\epsilon > -0.127$) tous les niveaux d'énergie s'anticroisent fortement cf figure(I.8b). Le tableau ci dessous permet d'établir une correspondance claire entre l'apparition du chaos dans la dynamique classique et la transformation des quasi-croisements en larges anticroisements dans les diagrammes d'énergie.

Valeur de ϵ ($\epsilon = E\gamma^{-2/3}$)	Dynamique classique	Comportement quantique
$\epsilon < -0.54$	totalelement régulière	quasi croisement de niveaux
$\epsilon \approx -0.54$	début d'apparition du chaos pour les trajectoires telles que: ($\Lambda \approx -1$)	premiers larges anticroisements au niveau de la séparatrice
$\epsilon \approx -0.39$	Toutes les trajectoires telles que: ($-1 \leq \Lambda < 0$) sont chaotiques	Tous les états vibrationnels subissent de larges anticroisements
$\epsilon > -0.1273$	totalelement chaotique.	Tous les niveaux s'anticroisent fortement

Ces observations nous conduisent à conclure que l'existence de larges anticroisements dans le diagramme d'énergie signifie que la dynamique classique du système est chaotique. Semi classiquement on peut y apporter l'explication suivante : quand le mouvement est chaotique les trajectoires classiques diffusent dans tout l'espace des phases accessible, les états propres ne sont alors plus localisés autour des tores invariants, ils interagissent donc très fortement et s'anticroisent.

On conclut d'après le paragraphe précédent que le passage d'un régime de quasi croisements de niveaux à un régime d'anticroisements larges se traduit par des aspects complètement différents des diagrammes d'énergie [DEL88] (figures I.8a et I.8b). Ces propriétés qualitatives du "chaos quantique" peuvent être établies sous une forme quantitative en considérant les propriétés statistiques des niveaux d'énergie. Cette approche statistique est possible vu le grand nombre de niveaux calculés par diagonalisation numérique.

c. Statistique de niveaux.

Des histogrammes de distributions d'écart d'énergies entre niveaux successifs de l'atome d'hydrogène en champ magnétique obtenus à partir de simulations numériques sont donnés dans les références suivantes : [DEL86b, WIN87, WUN86, WEL89]. Ces histogrammes sont visualisés sur la figure (I.9) respectivement dans les régimes régulier et chaotique.

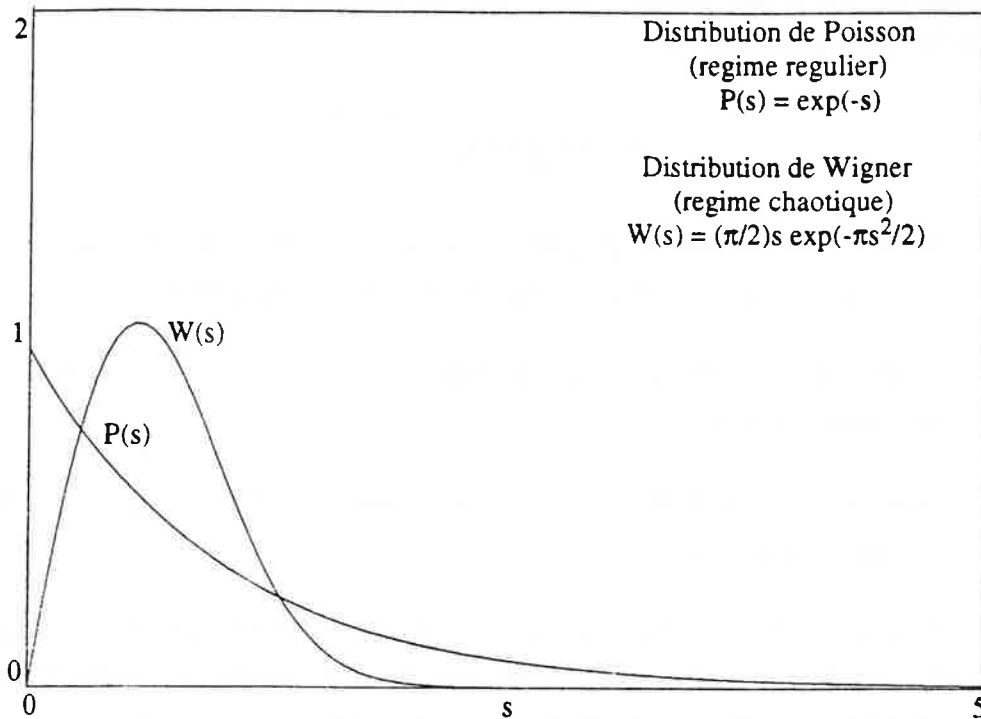


FIG (I.9) Distribution d'écarts d'énergie entre niveaux voisins dans le régime régulier et dans le régime chaotique.

Dans le cas du régime régulier l'histogramme possède un maximum pour les petits espacements, ce qui traduit l'existence de quasi dégénérescences, donc de quasi croisements. Ceci est une manifestation de l'existence d'une symétrie dynamique dans le régime de champ faible. Cet histogramme de distributions est bien reproduit par un modèle de niveaux indépendants (des niveaux qui se croisent interagissent très peu) ce qui correspond à une distribution d'espacements de Poisson (cf figure (I.9)):

$$P(s) = e^{-s}$$

Dans le cas du régime chaotique l'histogramme minimum à l'origine traduit l'absence de quasi dégénérescences et donc l'existence de larges anticroisements de niveaux par suite de la forte interaction entre états, ceci prouve la non validité de la symétrie dynamique citée précédemment. Cet histogramme est bien reproduit par un modèle de matrices aléatoires dont l'idée générale consiste à simuler le hamiltonien du système en remplaçant ses éléments de matrice par des variables aléatoires réelles indépendantes. L'ensemble de ces matrices aléatoires forme l'ensemble gaussien orthogonal (G.O.E en anglais) [BOH84] cette distribution est très proche de celle dite de Wigner (cf figure (I.9)):

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

On peut conclure que ces propriétés statistiques de niveaux d'énergie du système fournissent une caractérisation du chaos dans sa contrepartie quantique:

- Une distribution poissonnienne d'espacements est associée à un régime régulier du système classique.
- Une distribution de Wigner d'espacements est associée à un régime chaotique du système classique.

A ce jour, ce genre de statistiques de niveaux dans le régime chaotique n'a jamais été réalisé à partir d'un spectre expérimental en raison de sa complexité et de la grande densité de raies dans le région chaotique. De plus un spectre expérimental ne met en évidence que les niveaux dont la probabilité d'excitation est suffisante.

C. Conclusion du chapitre.

Dans ce chapitre, on a présenté une synthèse des études théoriques permettant de dégager l'importance primordiale des considérations de symétries dynamiques pour le traitement aussi bien classique que quantique de l'atome d'hydrogène plongé dans un champ magnétique. Toute la dynamique du système peut être étudiée en utilisant le groupe dynamique d'un système de deux oscillateurs harmoniques à deux dimensions et le spectre (quantique) peut être calculé numériquement en utilisant une base de fonctions d'ondes adaptées aux symétries dynamiques (base sturmienne).

L'allure de la section de Poincaré utilisée pour visualiser l'évolution du mouvement du système dans l'espace des phases renseigne sur le caractère régulier ou chaotique de la dynamique classique du système. Quand les points de cette section sont sur des courbes fermées, la dynamique associée est régulière. Quand ces points commencent à diffuser dans l'espace des phases et que la section présente des portions où les points sont sur des courbes et d'autres où ils sont répartis aléatoirement, la dynamique associée est mixte régulière-chaotique. Enfin quand tous les points sont répartis aléatoirement et remplissent uniformément toute la section, la dynamique associée est complètement chaotique.

Quantiquement, la distribution d'écarts d'énergie entre niveaux voisins du système présente une allure différente selon que les statistiques sont faites dans une région d'énergie du spectre où la dynamique classique associée est régulière ou chaotique. Dans le premier cas, la distribution est poissonnienne et dans le deuxième, elle est de type Wigner. Les diagrammes d'énergie présentent des allures différentes dans les deux régions d'énergie correspondant à des comportements classiques distincts (régulier ou chaotique). Ces deux régions d'énergie se distinguent par la largeur des anticroisements qui y sont présents.

Cette étude théorique de l'atome d'hydrogène plongé dans un champ magnétique renseigne sur les deux aspects de son comportement: régulier et chaotique aussi bien sous l'aspect classique que quantique. Cette étude est d'autant intéressante qu'elle traite un système (atome d'hydrogène + champ magnétique) qui a l'intérêt d'être un système réaliste pour lequel une étude expérimentale est possible.

Cette étude théorique détaillée incite ainsi à une confrontation avec une étude expérimentale qui permettrait de sonder directement le comportement du système.





Dans le premier chapitre de ce mémoire nous avons mis en évidence la non séparabilité de l'hamiltonien de l'atome d'hydrogène en présence d'un champ magnétique uniforme et indépendant du temps qui a pour conséquence l'impossibilité d'une résolution complète du problème. Une étude théorique classique et quantique du problème a été abordée.

Le but de ce présent chapitre est de dégager un critère qui permette de caractériser le "chaos quantique" différent de ceux déjà utilisés tels que la statistique des écarts d'énergie entre états [DEL86b, WIN86, WUN86] et l'analyse de spectres théoriques par transformée de Fourier [HOL86].

Nous allons mettre en évidence une méthode d'excitation réalisable expérimentalement dont le principal intérêt est de simplifier le spectre dans la zone d'énergie où la dynamique classique présente un comportement régulier. Ceci va permettre une observation **directe** des modifications du spectre liées à l'apparition de trajectoires classiques chaotiques. Nous exploiterons pour cela les propriétés de symétrie des états diamagnétiques mises en évidence en champ faible.

Le premier paragraphe de ce chapitre va montrer que l'excitation optique à partir d'un niveau profond habituellement utilisée, est inadaptée puisqu'elle conduit à un spectre trop dense où est masquée une potentielle modification du spectre liée à l'apparition du chaos. On montre ensuite la possibilité d'une excitation à partir d'une composante déterminée du multiplet diamagnétique $n = 10$ et ses implications quant à l'allure du spectre d'énergie ainsi que les contraintes expérimentales qui en découlent.

Le deuxième paragraphe sera consacré à un rappel [CAC86a] sur le comportement des atomes alcalins plongés dans un champ magnétique.

Dans les paragraphes suivants nous exposerons une idée d'expérience à trois étages sur l'atome de lithium en précisant les difficultés spécifiques au caractère non hydrogénoïde de cet atome.

Les schémas d'excitation que nous avons utilisés lors de nos expériences et les différents critères qui nous ont permis de les choisir découleront naturellement de ce chapitre.

A. Choix de l'excitation optique.

A.I. Excitation à partir d'un niveau profond.

Dans le régime où l'interaction entre les niveaux de n différents est négligeable, le terme diamagnétique ne couple que les états de même n et de l différents (régime d'inter- l mixing).

Tout état diamagnétique $|n K M\rangle$ du multiplet (n, M donné) de l'hydrogène se décompose sur la base d'états sphériques comme suit :

$$|n K M\rangle = \sum_l a_{nK}^{lM} |n l M\rangle$$

$$a_{nK}^{lM} = \langle n l M | n K M \rangle$$

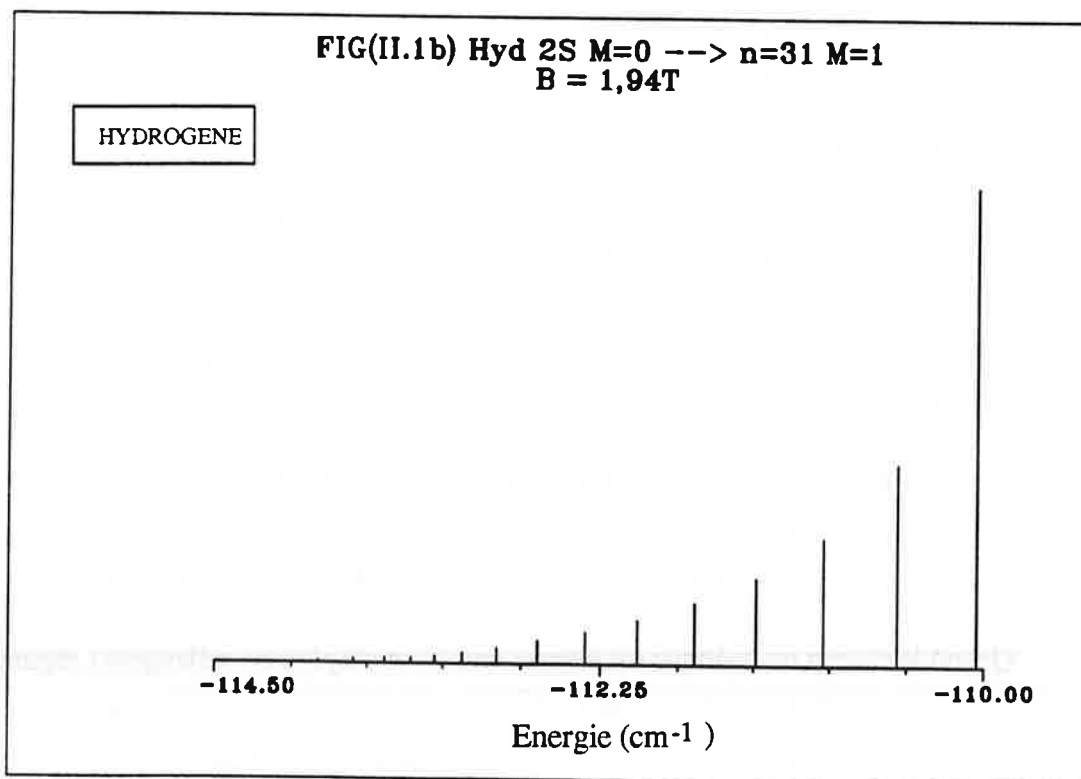
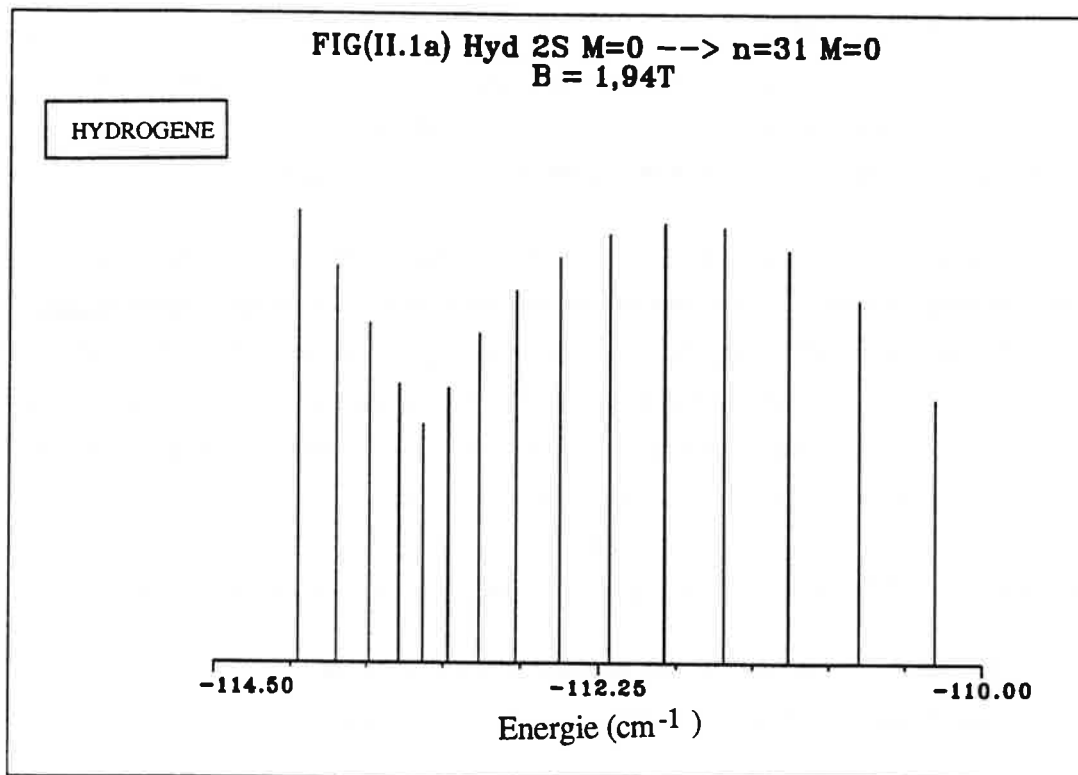
On rappelle que K numérote les niveaux diamagnétiques d'un multiplet donné par énergies décroissantes (indépendamment de leur parité). a_{nK}^{lM} est le coefficient de recouvrement de l'état diamagnétique $|nKM\rangle$ avec l'état sphérique $|n l M\rangle$, seuls les coefficients des états sphériques de même parité que l'état diamagnétique considéré sont non nuls.

Tous les états diamagnétiques d'un multiplet (n, M) donné ont un recouvrement non négligeable avec les états sphériques de même parité. Les états de basse valeur de K (rotationnels) retiennent la majeure partie des fonctions sphériques de l faible et les états de K élevé (vibrationnels) correspondent approximativement aux grandes valeurs de l .

Si l'on excite ce multiplet à partir d'un état profond non affecté par le terme diamagnétique que l'on notera $|n l' M'\rangle$, l'intensité de la raie $|n l' M'\rangle \rightarrow |n K M\rangle$, lors de l'excitation dipolaire électrique de polarisation \hat{e} s'exprime ainsi:

$$|\langle n l' M' | \mathbf{r} \cdot \hat{e} | n K M \rangle|^2 = \left| \sum_l a_{nK}^{lM} \langle n l' M' | \mathbf{r} \cdot \hat{e} | n l M \rangle \right|^2$$

Les règles de sélection dipolaire électrique sur le moment angulaire l sont: $l = l' \pm 1$. Les seules composantes sphériques de l'état diamagnétique K qui contribuent à sa probabilité d'excitation sont celles qui respectent cette règle.



La répartition de la force d'oscillateur sur les états diamagnétiques du multiplet dépend de la polarisation de l'excitation. Pour illustrer ceci, on représente sur les figures (II.1a) et (II.1b) le multiplet diamagnétique $n=31$ de l'atome d'hydrogène excité respectivement en polarisation π et σ à partir de l'état fondamental $1s$.

Le principe du calcul est de diagonaliser le hamiltonien du système sur une base d'états hydrogénoïdes. Nous avons utilisé une base de fonctions sphériques ψ_{nIM} et la diagonalisation a été effectuée dans chaque sous espace de parité Π et de valeur de M données. Les bases utilisées pour calculer les états et les valeurs propres d'un multiplet n donné, comportent tous les états ayant la parité et M , donnés appartenant aux 9 multiplets diamagnétiques consécutifs et centrés sur la valeur d'intérêt n . Les matrices à diagonaliser sont tridiagonales et sont de dimension $9(n-M)$; par exemple pour le multiplet ($n=31, M = 0$) la dimension de la matrice à diagonaliser est de 279.

La force d'oscillateur de la raie $|2s\rangle \rightarrow |n K\rangle$ est alors simplement proportionnelle au carré de la composante p du niveau $|n K\rangle$.

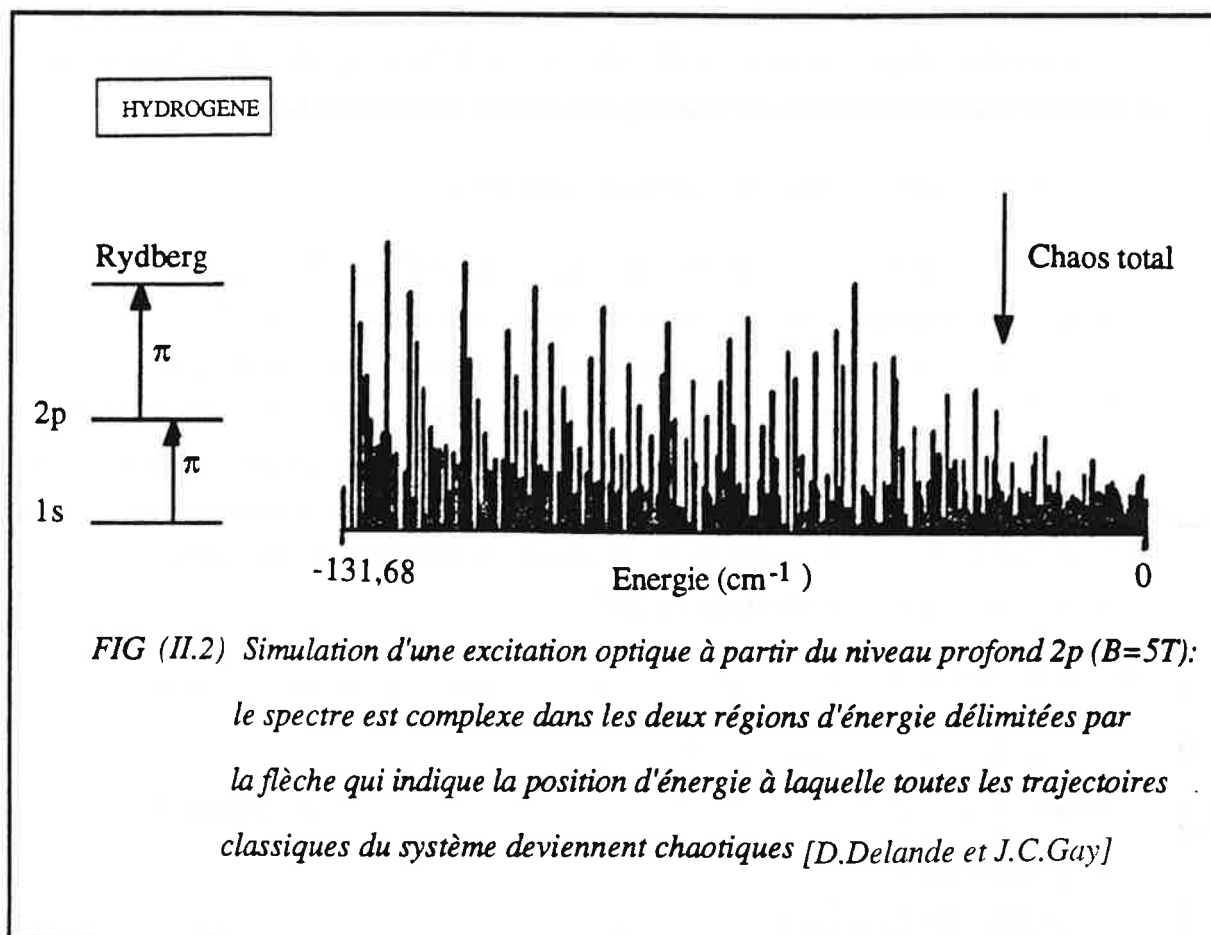
Dans le cas de l'excitation en polarisation π (cf figure II.1a), tous les états diamagnétiques du multiplet sont excités avec des forces d'oscillateur comparables: tous les états diamagnétiques ont un recouvrement important avec la composante sphérique ($n=31, l=1, M=0$) qui est responsable de cette excitation.

Dans le cas de l'excitation en polarisation σ (cf figure II.1a), les composantes rotationnelles ont des intensités beaucoup plus grandes que les composantes vibrationnelles. La composante de plus haute énergie (la plus rotationnelle) est particulièrement intense. C'est l'observation à basse résolution de cette série de raies à plus haute énergie (dans le baryum) qui est responsable des modulations de quasi-Landau [GAR69].

Dans les deux cas de polarisation π et σ , une excitation optique à partir d'un niveau profond permettrait d'exciter plusieurs états diamagnétiques (tous, dans le cas d'une polarisation π et au moins tous les rotationnels, dans le cas d'une polarisation σ).

Quand le champ magnétique est intense tous les multiplets se mélangent (régime d'inter n -mixing) [CAC88] et lors d'une excitation démarrant sur un niveau profond plusieurs états diamagnétiques de tous les multiplets sont excités. Le spectre de raies qui en résulte présente une très grande densité de raies ayant des intensités comparables.

Sur la figure (II.2) on montre un spectre de raies calculé par D.Delande et J.C.Gay pour une intensité du champ magnétique fixée (4,7T) et une énergie variant sur un domaine englobant les deux régimes de champ faible et fort et ceci selon le schéma d'excitation schématisé sur cette figure.



Ce spectre étant très complexe même dans sa zone régulière, il est difficile d'en tirer une information quelconque ou de distinguer une différence entre le régime où le système est classiquement régulier et le régime où il est chaotique. Comme le but de notre étude est justement de dégager ces différences, il est légitime d'affirmer que cette excitation optique (état profond \rightarrow multiplet diamagnétique) qui ne respecte pas les symétries dynamiques du système ne fait que compliquer une étude déjà difficile.

Pour mener notre étude il s'avère donc nécessaire de faire un choix judicieux de l'excitation optique à utiliser pour mener les atomes sur les états de Rydberg élevés tout en ayant un spectre d'excitation moins complexe dans la région où la dynamique classique du système est régulière.

A.II. Simulation d'une excitation sélective.

Dans ce paragraphe nous décrivons comment exploiter les symétries dynamiques internes du système mises en évidence en champ faible (symétrie parabolique pour les états vibrationnels et symétrie lambda pour les états rotationnels) pour réaliser un spectre d'excitation dans lequel on pourra distinguer la transition du système d'un régime où sa dynamique classique est régulière à un régime où cette dynamique est chaotique.

A.II.1. Projection sur la base Lambda.

Des simulations de spectre sont construites [DEL87] à partir de calculs numériques de diagonalisation en base sturmienne; on a ainsi accès aux fonctions d'onde de tous les états propres que l'on projette sur le sous espace engendré par les états " lambda " $\lambda = n - 1$. On trace ensuite le carré de cette projection en fonction du nombre quantique principal effectif $n^* = (-2 E)^{-1/2}$: il en résulte un spectre contenant autant de raies que d'états propres (cf figure (II.3)) [DEL87]. Ces simulations sont réalisées à $\gamma^2/(2E)^2$ fixé ($= 4,679 \cdot 10^{-2}$) pour faciliter les calculs numériques, mais des conclusions strictement identiques sont obtenues à γ fixé.

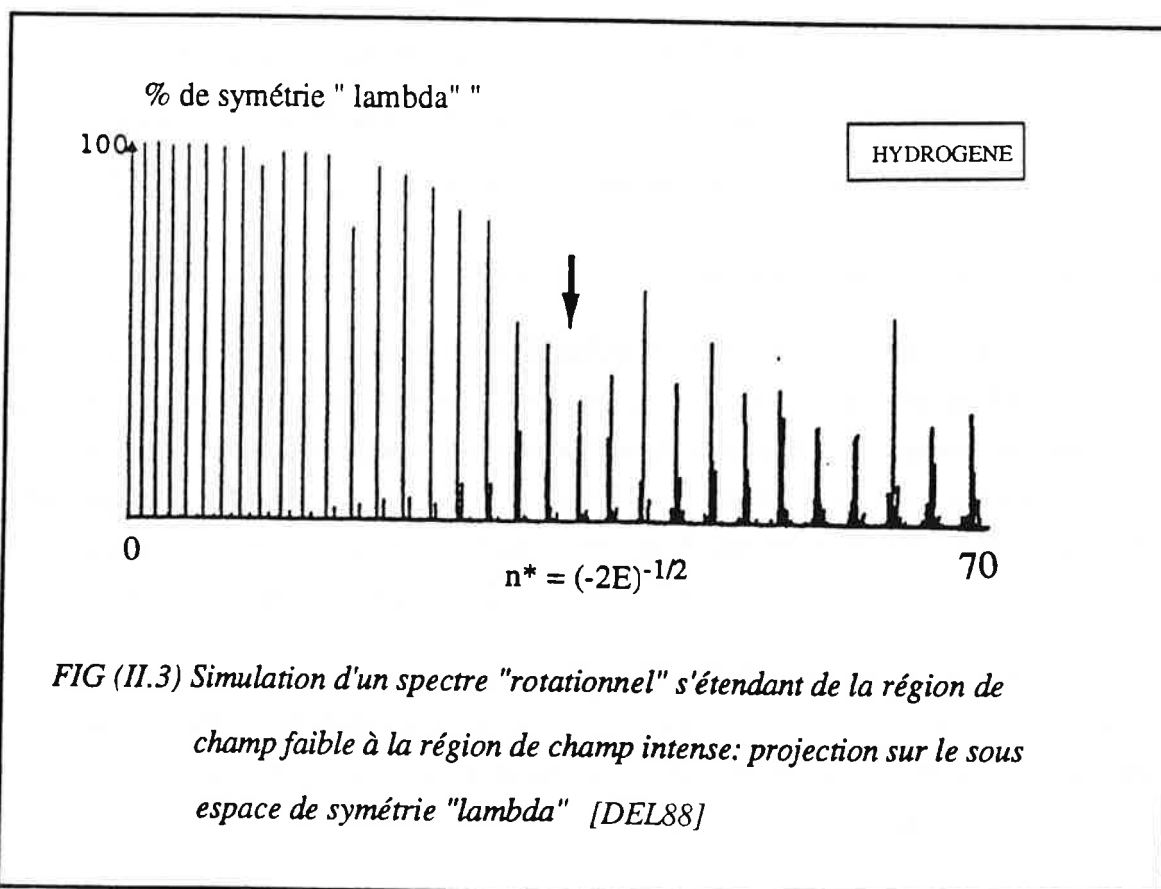


FIG (II.3) Simulation d'un spectre "rotationnel" s'étendant de la région de champ faible à la région de champ intense: projection sur le sous espace de symétrie "lambda" [DEL88]

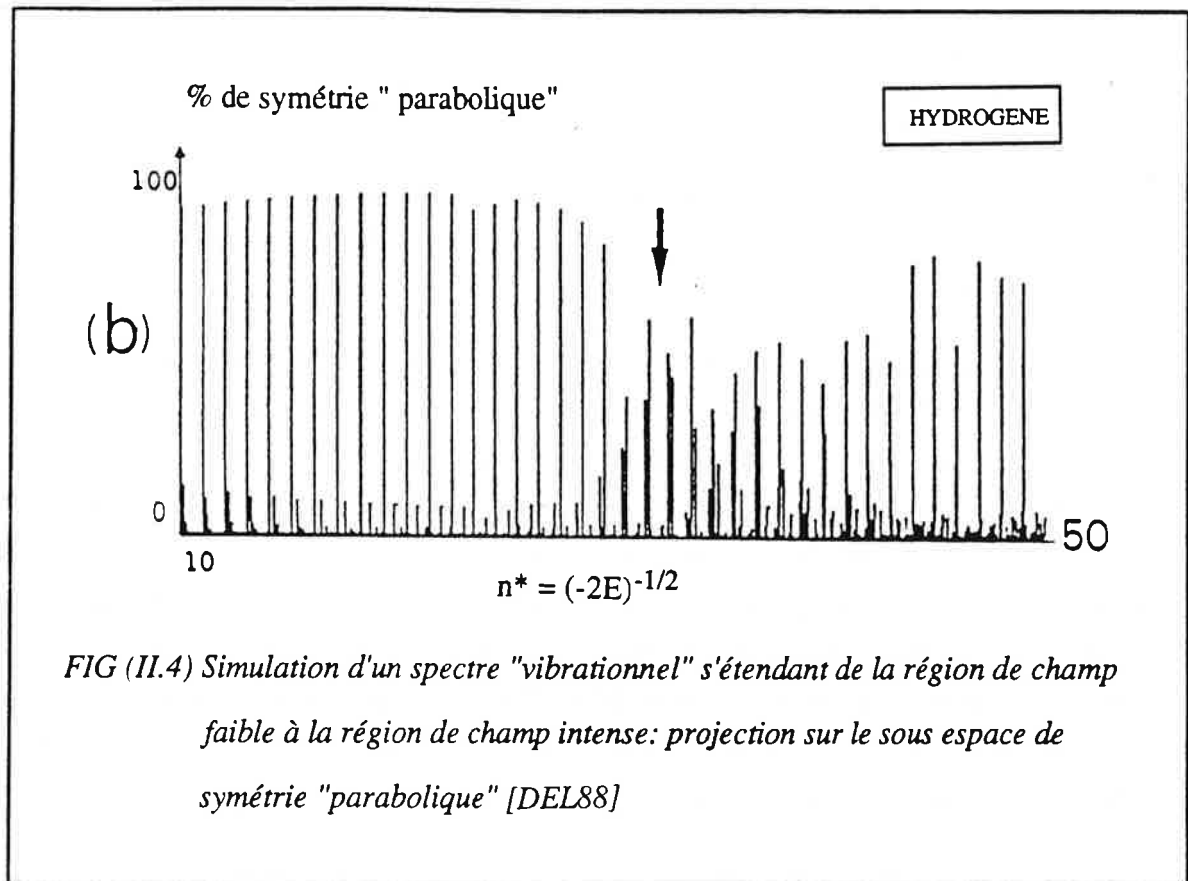
Dans la partie gauche de la figure (régime de champ faible) plusieurs des raies calculées n'apparaissent pas sur le spectre, on ne distingue qu'une seule raie par multiplet (intensité $\approx 98\%$), celle correspondant à l'état le plus rotationnel $K = 0$; on aperçoit difficilement sur le spectre des raies secondaires d'intensité très faible: entre deux raies dominantes il y a ainsi plusieurs dizaines de raies à peine visibles. Cette excellente sélectivité n'est en réalité qu'une conséquence du caractère presque exact de la symétrie dynamique lambda pour l'état le plus haut de chaque multiplet même dans la région d'inter-n-mixing.

Sur la partie droite de la figure (II.3) la flèche indique la limite d'énergie ($n^* = 36 \Rightarrow \varepsilon \approx -0,127$) où la dynamique classique du système transite d'un comportement régulier à un comportement complètement chaotique pour la symétrie rotationnelle; ceci correspond à la destruction du dernier tore invariant localisé près du plan $z = 0$. A cette valeur d'énergie l'allure du spectre change totalement: il n'existe plus d'états très nettement dominants ce qui signifie que la symétrie dynamique est détruite. Dans ce régime complètement chaotique, on observe des paquets de niveaux possédant une part importante de la symétrie rotationnelle [DEL87]. Ces paquets sont distribués dans le prolongement des raies dominantes du régime régulier et constituent un aspect extrêmement important du chaos "quantique" : la destruction des symétries dynamiques.

Cette destruction des symétries n'est pas totale; s'il en était ainsi, les intensités des différentes raies seraient très irrégulières ce qui n'est pas le cas: les différents paquets d'états sont régulièrement espacés. Le modèle des matrices aléatoires [BOH84] prévoit dans le régime complètement chaotique une distribution complètement aléatoire des intensités des différentes raies. Cette prédiction est mise en défaut à grande échelle puisqu'il est bien clair qu'il existe un ordre qui différencie le système hamiltonien d'une matrice aléatoire; elle reste cependant valable à l'échelle d'un paquet de niveaux à l'intérieur duquel la répartition des intensités sur les différentes raies est complètement aléatoire.

A.II.2. Projection sur la base parabolique.

La figure (II.4) [DEL87] montre une simulation de spectre réalisée à $\gamma^2/(2E)^2$ fixé. ($= 3,32 \cdot 10^{-3}$). Cette simulation est faite à partir des calculs de diagonalisation en base sturmienne: chaque état propre est projeté sur le sous espace engendré par les états paraboliques de nombre quantique $n_1 = 0$.



En champ faible [cf partie gauche de la figure (II.4.)], l'état inférieur $K = K_{\max}$ de chaque multiplet est largement dominant (intensité $\approx 85\%$) ce qui montre que la symétrie parabolique reste valable même dans le régime d'inter-n-mixing. Au delà de $n^* \approx 30$ ($\epsilon \approx -0,34$) [cf partie droite de la figure (II.4)], il n'existe plus d'états nettement dominants dans le spectre ce qui signifie que la symétrie parabolique est détruite; ceci correspond classiquement à la destruction du dernier tore invariant localisé le long de l'axe Oz et à la transformation des quasi-croisements de niveaux en larges anticroisements dans les diagrammes d'énergie. Encore une fois le phénomène de destruction de la symétrie dynamique est mis en évidence.

Les paquets de niveaux sur lesquels est redistribuée l'intensité sont régulièrement espacés dans le prolongement des raies dominantes du régime régulier, et

à l'intérieur de chaque paquet l'intensité est distribuée aléatoirement sur les différents niveaux. Ces paquets de niveaux constituent ce qu'on appelle des cicatrices de la symétrie dynamique parabolique [DEL87].

A.II.3. Conséquences expérimentales.

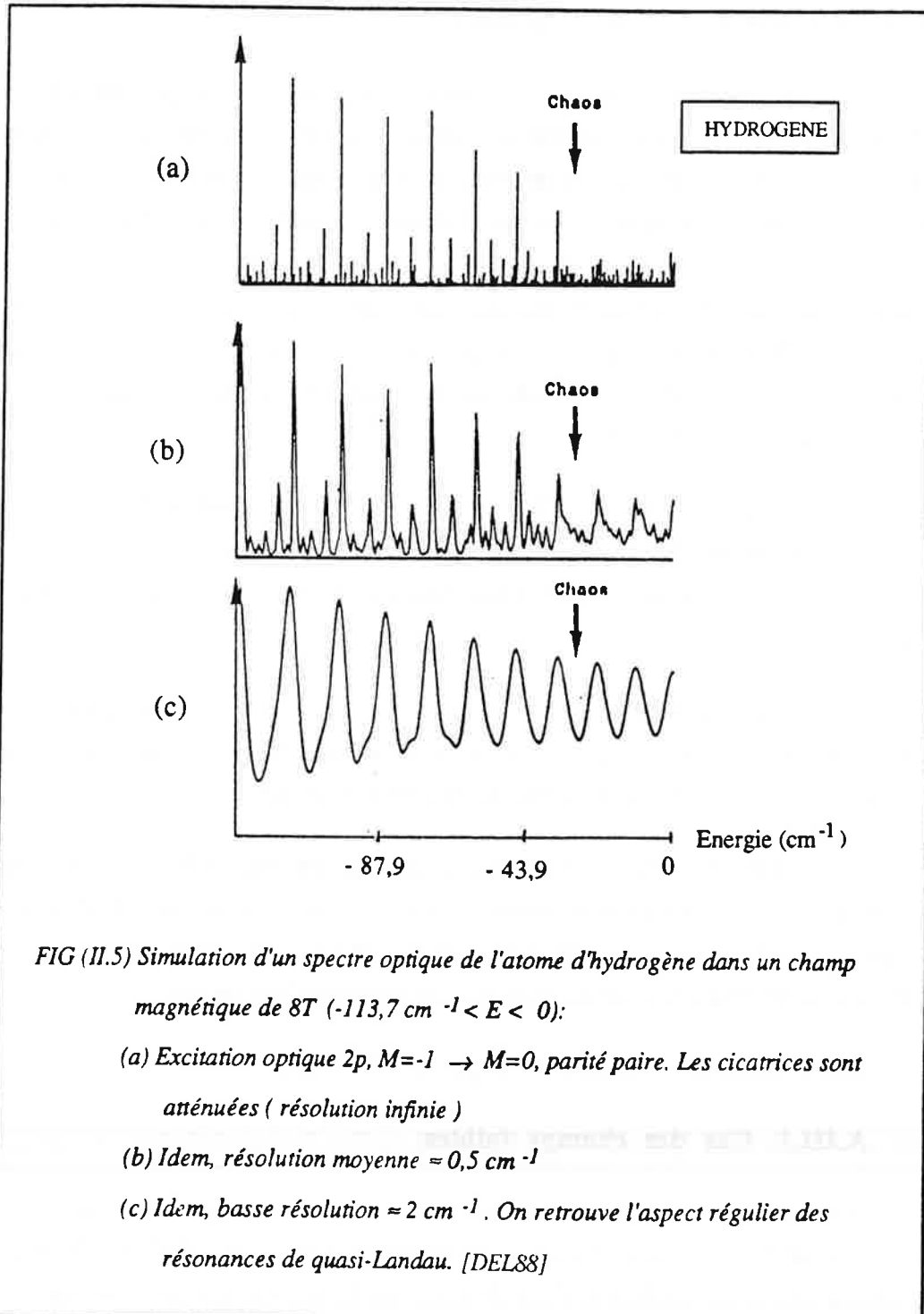


FIG (II.5) Simulation d'un spectre optique de l'atome d'hydrogène dans un champ magnétique de 8T ($-113,7 \text{ cm}^{-1} < E < 0$):

- (a) Excitation optique $2p, M=-1 \rightarrow M=0$, parité paire. Les cicatrices sont atténuées (résolution infinie)
- (b) Idem, résolution moyenne $= 0,5 \text{ cm}^{-1}$
- (c) Idem, basse résolution $\approx 2 \text{ cm}^{-1}$. On retrouve l'aspect régulier des résonances de quasi-Landau. [DEL88]

On a montré au paragraphe (I.1) de ce chapitre que l'excitation optique habituellement utilisée dans les expériences est un processus complètement inadapté aux symétries dynamiques internes de l'atome d'hydrogène en champ magnétique. Sur la figure (II.5a) [DEL87] est représenté une simulation d'un spectre expérimental de l'atome d'hydrogène dans un champ magnétique d'intensité de 8T dans le cas d'une excitation σ à partir de l'état excité ($2p, M=1$).

Dans la partie gauche de cette figure (régime de champ faible) les raies dominantes sont les plus rotationnelles de chaque multiplet, entre deux raies dominantes il y a plusieurs raies d'intensité non négligeable. On observe sur la partie droite de cette figure que les cicatrices de symétrie sont fortement brouillées, on peut redécouvrir les paquets de niveaux en imposant une résolution finie du spectre; ceci est réalisé en faisant par exemple une convolution du spectre avec une gaussienne. A moyenne résolution (0.5 cm^{-1}) (figure II.5.b) on obtient des structures régulièrement espacées et à faible résolution (2 cm^{-1}) (figure II.5.c) on observe des modulations sans discontinuité entre le régime régulier et le régime chaotique.

Ces modulations sont "les résonances de quasi-Landau" observées expérimentalement en 1969 par Garton et Tomkins [GAR69] sur le spectre d'absorption du baryum. Cette expérience constitue une mise en évidence d'un aspect "régulier" du chaos "quantique".

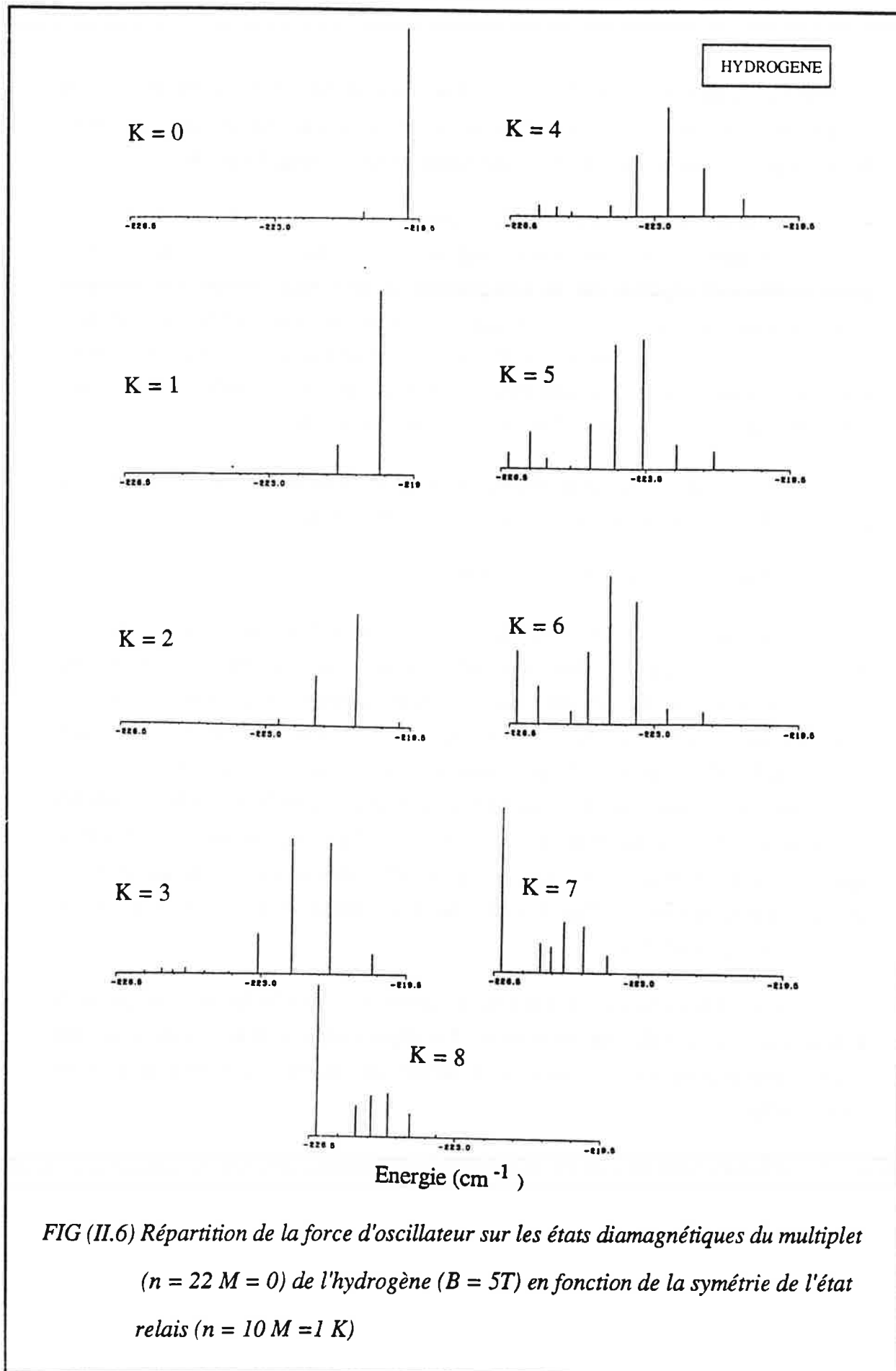
Expérimentalement pour obtenir des spectres similaires aux spectres fictifs présentés dans les deux paragraphes précédents, il faut réaliser une excitation optique des atomes qui soit en accord avec les symétries internes du système.

Dans notre expérience l'excitation utilisée est dite sélective: on démarre l'excitation sur l'état le plus rotationnel ou le plus vibrationnel d'un multiplet diamagnétique. Dans le régime de champ faible on atteint préférentiellement sur les multiplets supérieurs les états ayant la même symétrie que l'état de départ.

A.III. Excitation sélective à partir d'un état excité.

A.III.1. Cas des champs faibles.

Sur la figure (II.6) on montre l'évolution de la répartition de la force d'oscillateur sur les états diamagnétiques du multiplet ($n = 22, M = 0$) de l'hydrogène à $B = 5T$ en fonction de la symétrie de l'état de départ de l'excitation optique. Cet état



appartient au multiplet ($n = 10, M = 1$) et est noté $l_n = 10, M = 1, K > K$ étant le numéro de l'état (K numérote les niveaux d'énergie du multiplet par énergies décroissantes). Tous ces spectres ont été calculés pour une valeur du champ magnétique de 5 T.

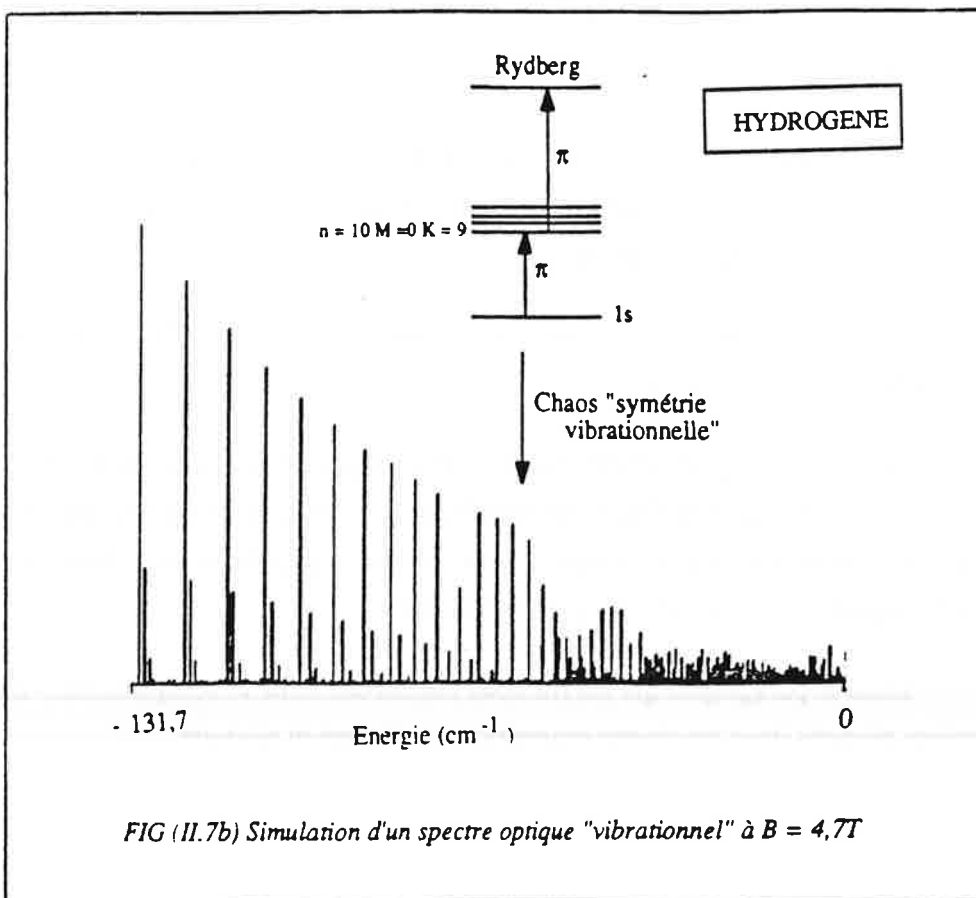
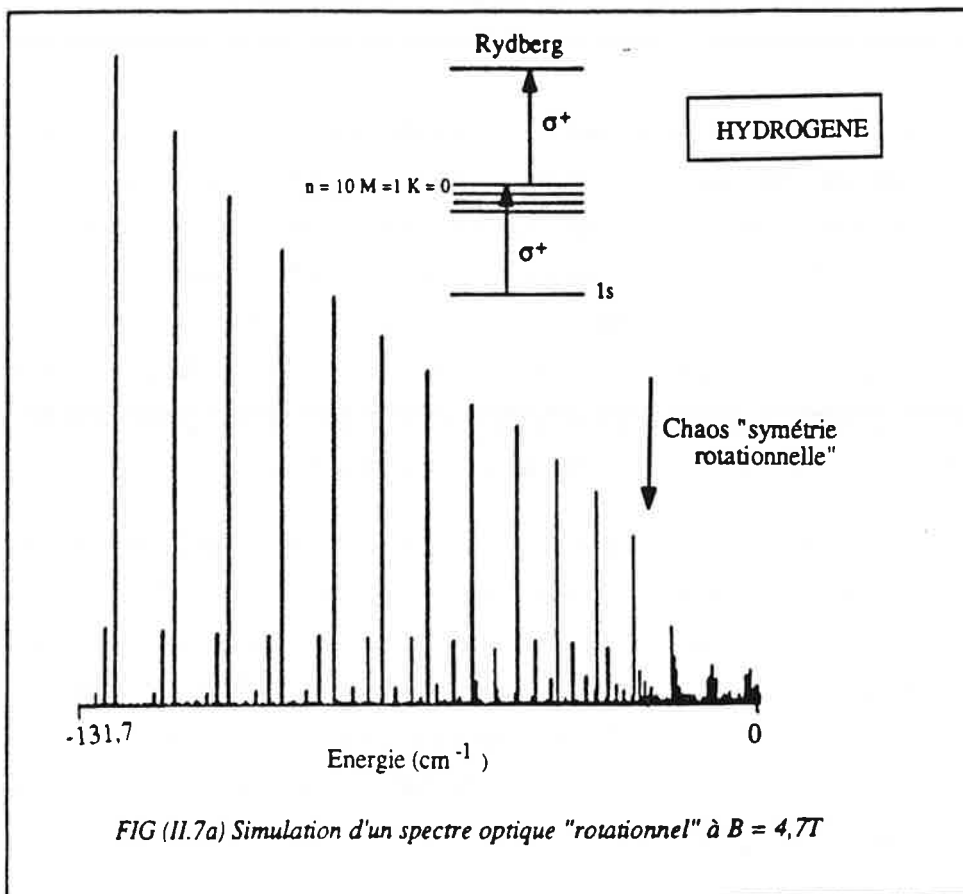
Sur la figure (II.6) l'allure des diagrammes d'énergie représentant le multiplet ($n = 22, M = 0$) transite lentement quand, k augmente, d'un cas où la force d'oscillateur est quasi totalement répartie sur la composante la plus rotationnelle du multiplet diamagnétique à un cas où elle est presque totalement concentrée sur la composante la plus vibrationnelle. Ces deux cas de figures correspondent à une excitation optique démarrant respectivement de la composante la plus rotationnelle du multiplet $n = 10, M = 1$ ($K = 0$) et de la composante la plus vibrationnelle de ce multiplet ($K = 8$).

Ceci montre de façon probante que ce genre d'excitation optique permet de peupler préférentiellement les états d'une symétrie donnée rotationnelle ou vibrationnelle.

A.III.2. Cas des champs forts.

D.Delande et J.C.Gay [DEL86c] ont réalisé un calcul équivalent au précédent dans une zone d'énergie s'étendant du régime de champ faible au régime de champ fort. Le principe de ce calcul est de diagonaliser le hamiltonien du système sur une base de fonctions sturmiennes aussi grande que possible. Les résultats des calculs sont reportés sur les figures (II.7.a) et (II.7.b). qui représentent deux spectres d'énergie s'étendant de la zone de champ faible (inter l-mixing) à la zone de champ fort (inter n-mixing) calculés pour une intensité du champ magnétique fixée (= 4,7T) en supposant une excitation optique réaliste qui démarre de l'état diamagnétique le plus rotationnel du multiplet ($n = 10, M = 1$) pour la figure (II.7.a) et de l'état le plus vibrationnel du multiplet ($n = 10, M = 0$) pour la figure (II.7.b).

Les flèches reportées sur ces deux figures indiquent la limite d'énergie où la dynamique classique du système transite d'un régime régulier à un régime chaotique respectivement pour les trajectoires de symétrie vibrationnelle et celles de symétrie rotationnelle.



Dans la région "basse énergie" (cf partie gauche des figures (II.7)), seules trois composantes par multiplet sont visibles sur le spectre; dans le cas de la figure (II.7.a) ces trois composantes sont les plus rotationnelles de chaque multiplet et dans le cas de la figure (II.7.b) ces trois composantes sont les plus vibrationnelles. Cette excitation optique permet selon la symétrie de l'état inférieur de n'atteindre sur les multiplets supérieurs que les composantes ayant la même symétrie: il est donc légitime d'affirmer que cette excitation optique est **sélective** c'est à dire qu'elle permettra de sonder la caractère de symétrie (rotationnel ou vibrationnel) des états excités.

Dans la région "haute énergie" (cf partie droite des figures (II.7)), cette sélectivité est moins efficace : dans les deux cas de figure la force d'oscillateur se redistribue équitablement sur toutes les composantes d'un multiplet donné. On distingue sur les deux figures des paquets de niveaux à l'intérieur desquels la distribution des forces d'oscillateur sur les différents niveaux est fluctuante ce qui n'est pas le cas quant à la distribution des paquets de niveaux eux-mêmes qui est régulière: il y a donc un caractère de régularité dans ce régime où la dynamique du système est irrégulière.

Cette excitation optique sélective a ainsi un double intérêt :

- Elle est expérimentalement réalisable.
- Les spectres d'énergie qui s'en déduisent sont simplifiés dans le régime où la dynamique classique du système est régulière et la transition vers un régime chaotique est clairement visualisée sur ces spectres.

L'utilisation de cette excitation optique sélective lors de nos expériences se trouve donc clairement justifiée.

Sur le plan expérimental, l'atome d'hydrogène étant difficile à exciter, l'étude sera menée sur des atomes d'alcalins pour lesquels l'électron de Rydberg est peu affecté par le coeur atomique et pour lesquels les caractéristiques de la transition vers le chaos sont identiques à celles de l'hydrogène [O'MA89].

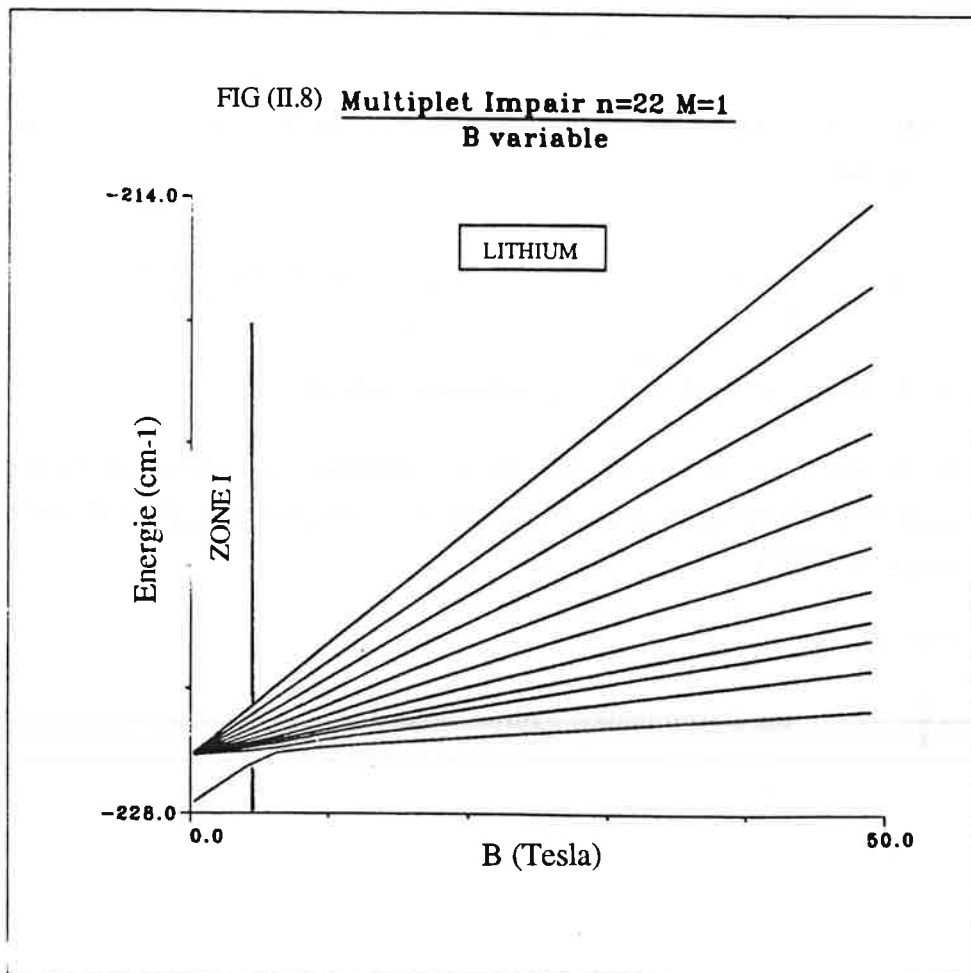
Dans le paragraphe qui suivra nous étudierons donc le comportement des atomes d'alcalins plongés dans un champ magnétique uniforme et statique.

B. Les atomes alcalins en présence d'un champ magnétique.

Pour les atomes alcalins le potentiel central n'est pas coulombien et la dégénérescence en l des niveaux en champ nul est levée. Ce potentiel de coeur est cependant à symétrie sphérique et seules les fonctions d'onde radiales sont différentes du cas de l'hydrogène.

En champ nul, les niveaux de n donné et de l différents sont non dégénérés et particulièrement les niveaux de l petit qui ont un fort défaut quantique. Dans le cas du lithium les seuls états ayant un défaut quantique significatif sont les états s , p , et d . Les états non pénétrants de forte valeur de l (en pratique $l \geq 3$), peu perturbés par le coeur atomique forment un multiplet d'états quasi dégénérés groupés au voisinage de l'énergie hydrogéoïde $E = -1/2n^2$. Dans la suite on nommera ce multiplet : "multiplet incomplet".

L'évolution de la structure du multiplet ($n=22$ $M=1$) de l'atome de lithium en fonction des valeurs croissantes de l'intensité du champ magnétique est représentée sous la forme d'un diagramme du plan (E,B) sur la figure (II.8).



B.I. Champ magnétique très faible.

Ce régime de champ magnétique est visualisée sur la zone I de la figure (II.8). C'est dans ce régime que les effets du coeur atomique du lithium sont les plus importants. On peut appliquer la théorie des perturbations si la correction en énergie apportée par le champ magnétique est plus faible que l'écart entre deux niveaux de l différents :

$$\frac{\gamma^2 n^4}{8} \ll \frac{|\delta_{nl} - \delta_{n'l}|}{n^3} \quad l \text{ et } l' \text{ étant de même parité.}$$

Contrairement à l'atome d'hydrogène, les niveaux de mêmes valeurs de n et M et de valeurs distinctes de l ne sont pas dégénérés. Nous appliquons donc la théorie des perturbations au 1^{er} ordre sur un niveau non dégénéré. On a alors (en oubliant le terme paramagnétique):

$$E = -\frac{1}{2n^{*2}} + \frac{\gamma^2}{8} \langle n^* M | \rho^2 | n^* M \rangle$$

où $n^* = n - \delta_l$ (δ_l est le défaut quantique de l'état l). Le calcul de l'élément de matrice donne [DEL81]:

$$E = -\frac{1}{2n^{*2}} + \frac{\gamma^2}{4} n^{*2} [5n^{*2} + 1 - 3l(l+1)] \frac{l^2 + l - 1 + M^2}{(2l-1)(2l+3)}$$

B.II. Zone d'inter l-mixing (champ faible)

En présence d'un champ magnétique, le hamiltonien de l'atome de lithium dans l'approximation de champ faible peut être écrit à l'intérieur d'un multiplet n donné sous la forme suivante [CAC89]:

$$H = H_0 + H_p(n) + H_d(n) + \Delta V(n)$$

$$H_0 = \frac{p^2}{2} - \frac{1}{r} \quad \text{est le hamiltonien hydrogénoïde.}$$

$H_p(n) = \frac{1}{2} \gamma L_z$ est le hamiltonien paramagnétique.

$H_d(n) = \frac{1}{8} \gamma \rho^2$ est le hamiltonien diamagnétique.

$\Delta V(n) = \sum_1 |nLM\rangle \frac{\delta_1}{n^3} \langle nLM|$ représente les effets non coulombiens exprimés dans la base non perturbée $|nLM\rangle$.

Quand l'effet diamagnétique devient comparable à la distance entre le niveau considéré et un autre niveau de même parité, on doit diagonaliser la matrice d'interaction sur l'ensemble du sous espace à n fixé. En particulier les niveaux de l élevés (ayant des défauts quantiques faibles $\ll 1$) sont presque dégénérés en champ nul; il suffit donc d'un champ magnétique très faible pour les mélanger au multiplet diamagnétique incomplet. Nous devons donc diagonaliser le terme diamagnétique dans le sous espace quasi-dégénéré.

La méthode de diagonalisation numérique utilisée est identique à celle décrite au paragraphe (I.1) de ce chapitre. Les parties angulaires des fonctions d'onde sont les mêmes que celles de l'hydrogène, mais les fonctions radiales R_{nl} sont spécifiques au lithium car on tient compte des défauts quantiques ($\delta_{l<2} \neq 0$). De plus, la diagonalisation effectuée tient compte de la modification des intégrales radiales diamagnétiques $\langle n l | r^2 | n' l' \rangle$ sous l'effet de ces défauts quantiques. Pour avoir ces fonctions radiales on résout l'équation de Schrödinger dans un potentiel central déterminé par la méthode du potentiel paramétrique [KLA71].

L'approximation des champs faibles valable si $H_d(n) \ll \Delta V(n)$ s'exprime de façon différente selon que le multiplet étudié est pair ($\pi_t = 1$) ou impair ($\pi_t = -1$) [CAC89]:

$$- \pi_t = +1, H_d(n) \ll \Delta V(n) \Rightarrow B \ll B_{ns} = \left(\frac{24}{5} \frac{\delta_s}{n^7} \right)^{1/2} B_c$$

$$- \pi_t = -1, H_d(n) \ll \Delta V(n) \Rightarrow B \ll B_{np} = \left(8 \frac{\delta_p}{n^7} \right)^{1/2} B_c$$

où B_{ns} (respectivement B_{np}) est la valeur de l'intensité du champ magnétique à laquelle la composante sphérique ns (respectivement np) se mélange au multiplet diamagnétique incomplet.

Dans le cas du lithium les états impairs ont un très faible caractère non hydrogénoïde compte tenu de la valeur de δ_p . Pour les niveaux $n = 22$, l'état $22p$ rejoint le multiplet diamagnétique incomplet dès que l'intensité du champ magnétique devient supérieure à 3,09 T. Par contre pour les états $M = 0$ pairs, les effets dus au coeur sont très importants, l'état $22s$ ne rejoint le multiplet incomplet que pour des champs d'intensité supérieure à 6,43 T.

Il est donc préférable d'étudier les multiplets incomplets impairs ($\pi_t = -1$) du lithium pour lesquels l'effet non hydrogénoïde est essentiellement du à l'état p .

Pour un champ magnétique inférieur à 3,09T, l'état $l = 1$ ne rentre pas dans la composition des états diamagnétiques. Le multiplet incomplet ($n = 22$ $M=1$) n'est alors constitué que de n_{hyd} états. La structure de ce multiplet est identique à celle de l'hydrogène, il comporte toujours deux parties distinctes.

- Les états profonds de symétrie vibrationnelle au nombre de $0,3n_{hyd}$ (n_{hyd} étant le nombre d'états du multiplet incomplet) sont doublement dégénérés; chaque doublet comporte un état pair et un état impair. L'écart entre deux composantes du doublet qui dans ce cas présent est de l'ordre de $5 \cdot 10^{-3} \text{ cm}^{-1}$ est toutefois bien supérieur à la valeur correspondante attendue dans l'hydrogène ($< 10^{-6} \text{ cm}^{-1}$).

- Les effets de coeur sont responsables de l'existence dans le haut du multiplet de paires d'états (au nombre de $0,7n_{hyd}$) de parités opposées et possédant la symétrie rotationnelle (dans l'hydrogène les états rotationnels de parités opposées sont approximativement également espacés).

Quand le champ magnétique devient supérieur à 3,09T, l'état $l = 1$ se mélange avec le multiplet incomplet. Quand le terme diamagnétique devient très grand devant l'écart d'énergie entre l'état p et le multiplet incomplet, on se retrouve dans un cas proche de celui de l'atome d'hydrogène (les états rotationnels sont de parités alternées et les états vibrationnels sont quasi dégénérés par paires).

B.III. Zone d'inter n-mixing (champ moyen)

Dans cette zone tous les niveaux de n et l différents interagissent, comme dans le cas de l'hydrogène le spectre prend une allure complexe.

On tient compte dans ce cas, dans la diagonalisation, de la perturbation due au défaut quantique des niveaux concernés. Cette perturbation ne modifie pas la nature chaotique de la dynamique. En conséquence, la transition vers le chaos subsiste pour la dynamique de l'électron de Rydberg d'un atome alcalin en présence d'un champ magnétique intense. Les différents seuils de transition sont peu affectés par l'effet du potentiel de coeur.

Dans la référence [O'MA89] il a été montré que l'allure générale des spectres simulés dans le cas de l'atome de lithium excité en polarisation π sur des niveaux de Rydberg à partir du niveau profond est la même que celle des spectres simulés pour l'hydrogène, mais les intensités des raies sont différentes. D'autre part il a été montré sur ces simulations que les caractéristiques du spectre quand la dynamique classique est chaotique sont identiques à celles obtenues pour l'atome d'hydrogène. En particulier, les fluctuations spectrales sont bien décrites par un modèle de matrices aléatoires.

Cependant, pour éviter les difficultés de calcul dans le cas des atomes alcalins, les expériences doivent être de préférence entreprises sur des états quasi hydrogénoïdes si l'on veut n'étudier que les effets propres au champ magnétique et en particulier du terme diamagnétique sur le spectre atomique.

C. Principe d'une expérience à trois étages sur le lithium:

Justification des choix.

C.I. Le lithium.

L'étude expérimentale sur l'atome d'hydrogène étant technologiquement difficile, on peut la tenter sur les atomes alcalins qui n'ont qu'un seul électron sur leur couche externe et qui ont un comportement assez proche de l'hydrogène. Cependant l'excitation optique ne permet d'atteindre que les états de moments angulaires faibles qui possèdent des défauts quantiques importants et qui sont par conséquent non hydrogénoïdes. Dans le but de se rapprocher le plus possible du cas hydrogénoïde nous avons choisi d'étudier l'alcalin qui présente les plus faibles défauts quantiques, en l'occurrence l'atome de lithium. Cet atome comporte trois électrons et sa configuration

dans l'état fondamental est : $1s^2 2s$. A l'état naturel, il se trouve sous la forme d'un mélange de deux isotopes : Li_3^7 et Li_3^6 dans les proportions suivantes de 92,6 % et 7,4 %. L'étude expérimentale sera menée sur l'isotope 7 dont la limite d'ionisation est de $43487,19 \text{ cm}^{-1}$ [Table de C.Moore]. Les niveaux d'énergie sont donnés à partir de la limite d'ionisation par:

$$E_{n,l} = - \frac{\text{Ryd}}{(n - \delta_l)^2}$$

où: Ryd est la constante de Rydberg corrigée par le terme de masse:

$$\text{Ryd} = 109728,7 \text{ cm}^{-1}.$$

δ_l est le défaut quantique du niveau l.

$$\delta_s = 0,399 \quad \delta_p = 0,047 \quad \delta_d = 0,002 \quad \delta_{l \geq 3} \approx 0$$

Les états de moment cinétique $l > 2$ peuvent être considérés comme parfaitement hydrogénoïdes.

C.II. Le jet atomique.

L'utilisation d'une cellule conduit à trois causes d'élargissement spectral nuisible pour notre expérience:

- Les collisions.

- L'effet Doppler: il est le principal responsable de l'élargissement des raies. Les expressions des largeurs Doppler du 1^{er} et du 2^{ème} ordres sont données respectivement par (1) et (2):

$$\Delta v_D^{(1)} = 2 \left(\frac{2kT}{mc^2} \ln 2 \right)^{\frac{1}{2}} v_0 \quad (1)$$

$$\Delta v_D^{(2)} = 0,66 \frac{v_0}{c^2} \left(\frac{2kT}{m} \right) \quad (2)$$

où: k représente la constante de Boltzmann, T la température du gaz dans la cellule
m la masse moléculaire du gaz, c la célérité de la lumière et v_0 la fréquence laser.

Dans le cas du lithium, pour une température de 600°C et une fréquence d'excitation laser ν_0 ces deux largeurs Doppler sont estimées respectivement à :

$$\Delta\nu_D^{(1)} \approx 8 \cdot 10^{-6} \nu_0 \quad \text{et} \quad \Delta\nu_D^{(2)} = 1.5 \cdot 10^{-11} \nu_0$$

- Le champ électrique motionnel : il est perpendiculaire au champ magnétique \mathbf{B} qui en est la cause et son expression est donnée par :

$$\mathbf{F} = \mathbf{v} \wedge \mathbf{B}$$

\mathbf{v} représente la vitesse de translation de l'atome.

La présence de ce champ supplémentaire d'intensité variable suivant l'orientation et le module de la vitesse de l'atome peut élargir fortement les niveaux excités. En effet, évaluons l'ordre de grandeur du champ électrique motionnel dans l'hypothèse où la direction du champ magnétique est perpendiculaire à celle de \mathbf{v} et dans le cas où l'on peut assimiler \mathbf{v} à la vitesse de translation des atomes du jet ($v = 1915$ m/s pour $T = 600^\circ\text{C}$), le champ électrique motionnel est d'environ 80 V/cm pour une intensité du champ magnétique de 5T.

Pour éviter ces trois inconvénients nous avons choisi de réaliser notre expérience sur un jet atomique, ce qui nous permet de sélectionner une direction particulière de la vitesse des atomes :

- En excitant les atomes du jet perpendiculairement à sa direction, l'élargissement Doppler du 1^{er} ordre est quasiment supprimé, il n'en subsiste plus qu'un léger élargissement dû à la collimation du jet estimé à :

$$\Delta\nu = \frac{v}{c} \frac{\alpha}{2} \nu_0 \approx 1,06 \cdot 10^{-8} \nu_0$$

où :

$v \approx 1915$ m/s est la vitesse des atomes du jet.

$\alpha \approx 1/300$ rad est l'angle de divergence du jet.

ν_0 est la fréquence du laser exciteur

L'élargissement Doppler du second ordre est estimé à $1.5 \cdot 10^{-11} \nu_0$. La somme de ces deux élargissements ($\approx 0,4$ MHz) est très faible devant la largeur en fréquence (quelques centaines de MHz) du laser exciteur ($\lambda \approx 10 \mu\text{m}$) utilisé dans notre expérience.

- Le champ électrique motionnel peut être diminué très fortement en choisissant la direction du champ magnétique parallèle au jet atomique, ce qui est le cas de notre expérience. Il ne subsiste plus qu'une distribution de champ électrique motionnel due à la collimation du jet centrée à $F = 0\text{V/cm}$ et de largeur à mi-hauteur: $v B \alpha/2 \approx 160\text{mV/cm}$ (où v : est la vitesse de translation du jet = 1915m/s , α : son angle de divergence = $1/300$ rad et B : l'intensité du champ magnétique = 5T).

Notre choix de travailler sur un jet atomique offre ainsi plusieurs avantages, mais aussi un inconvénient qui est la faiblesse de la densité des atomes ($10^7 / \text{cm}^3$ pour une température de la cellule de 600°C) par rapport au cas de la cellule ($\approx 3,3 \cdot 10^{14} / \text{cm}^3$ pour une température de la cellule de 600°C et une pression de vapeur saturante de $\approx 3 \cdot 10^{-2} \text{ Torr} = 4,2 \text{ Pa}$). Pour compenser cet inconvénient, il est nécessaire d'avoir une excitation des niveaux et une détection très efficaces. Il faut donc choisir judicieusement les sources laser, et le système de détection.

C.III. La détection.

La méthode de détection par ionisation par champ électrique est la mieux adaptée dans le cas particulier de l'étude expérimentale des états de Rydberg utilisant un jet atomique et une excitation pulsée. En effet les atomes de Rydberg créés dans le faisceau laser sont très instables vis à vis des perturbations extérieures (tel qu'un champ électrique) et s'ionisent à tout coup, de plus les ions et les électrons ainsi créés sont détectables avec un excellent rendement.

Après l'impulsion laser qui excite les atomes sur des états de Rydberg élevés, on applique donc une impulsion de champ électrique sur les plaques de condensateur de la zone d'interaction pour ioniser les atomes excités.

Pour une expérience en champ magnétique fort, la détection des ions est difficile faute de détecteur insensible au champ magnétique; on a donc opté pour la détection des électrons. Les électrons libérés lors de l'ionisation des atomes excités sont détectés par une diode à barrière de surface empruntée à la technologie de la physique nucléaire. Ce détecteur est insensible au champ magnétique mais nécessite une accélération préalable des électrons par une haute tension ($\approx 10 \text{ kV}$).

C.IV. L'excitation à 3 étages.

Dans le but d'exciter les atomes de lithium en présence d'un champ magnétique sur des états de Rydberg élevés de symétrie préférentielle rotationnelle ou vibrationnelle, l'état de départ doit être lui même sélectionné avec la même symétrie. Cet état doit donc appartenir à un multiplet affecté par le diamagnétisme. Ce multiplet est choisi selon deux critères:

- Son nombre quantique principal n doit être assez grand de façon à ce que le terme d'énergie diamagnétique prenne de l'importance devant le terme coulombien et ceci dans le but de bien séparer les composantes diamagnétiques du multiplet.

- Son énergie doit être telle que la longueur d'onde du laser nécessaire pour porter l'atome de cet état vers l'état de Rydberg élevé soit située dans une plage de longueurs d'onde accessible à un laser monofréquence balayable continûment sur un grand domaine spectral.

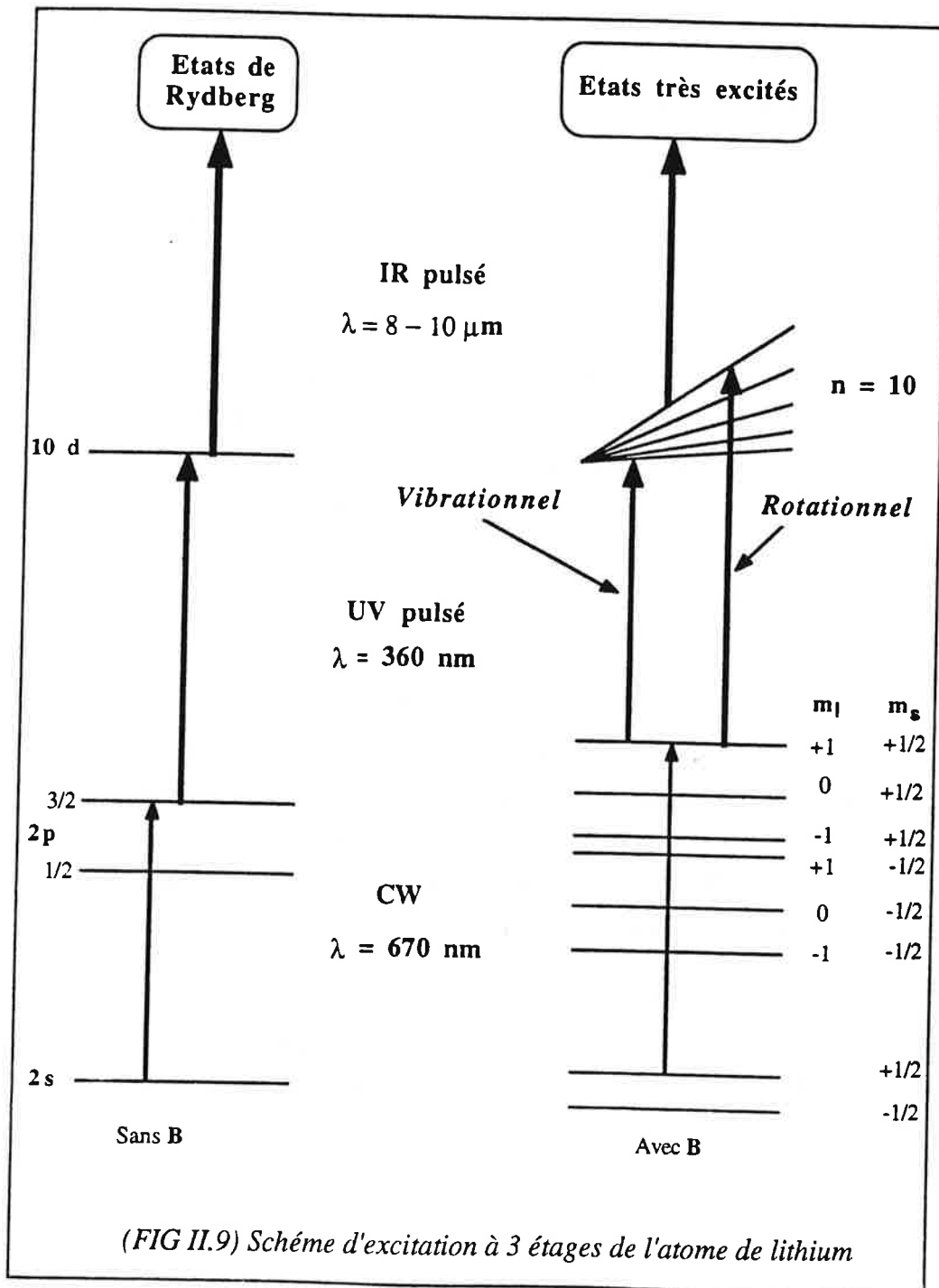
Pour satisfaire ces deux critères notre choix de l'état intermédiaire s'est porté sur l'état le plus rotationnel ou le plus vibrationnel du multiplet diamagnétique ($n = 10$, M donné). L'excitation de l'atome sur des états de Rydberg élevés à partir de cet état nécessite un rayonnement laser de longueur d'onde d'environ $10 \mu\text{m}$. Ce rayonnement est obtenu grâce à la diffusion Raman stimulée de la molécule d'hydrogène, engendrée par un laser pompe pulsé de longueur d'onde rouge d'environ 740 nm ou par mélange de fréquences de deux impulsions laser rouges (690 nm et 780 nm) dans un cristal d'AgGaS₂.

Pour amener l'atome de lithium de son état fondamental sur l'état intermédiaire choisi on réalise une excitation optique à deux photons ayant pour état relais l'état excité $2p$. Les règles de sélection dipolaire électrique permettent ainsi d'atteindre la composante $10d$ du multiplet ($n = 10$, M donné). Cette composante est plus hydrogénoïde que celle atteinte lors d'une excitation à un photon ($10p$).

Pour réaliser l'excitation de l'état intermédiaire choisi à partir de l'état relais ($2p$, $M = 1$) de l'atome, on utilise un rayonnement laser de longueur d'onde 360 nm obtenu par doublage de fréquence d'un rayonnement laser pulsé à 720 nm de longueur d'onde.

Les atomes de lithium sont portés de l'état fondamental 2s sur l'état excité 2p grâce à un rayonnement laser continu de longueur d'onde 670,7 nm asservi sur la fluorescence de la raie de résonance (2p \rightarrow 2s).

Le schéma d'excitation à 3 étages de l'atome de lithium est présenté sur la figure (II.9) dans les deux cas d'excitation, en champ nul et en présence d'un champ magnétique.



C.V. Calibration.

C.V.1. Energie.

La calibration absolue en nombre d'onde de nos spectres expérimentaux est obtenue par l'enregistrement simultané du spectre d'absorption de l'iode moléculaire. Expérimentalement ceci est réalisé en séparant une fraction du faisceau laser rouge continu issu du système laser à colorant du 3^{ème} étage d'excitation cf figure (5) en deux faisceaux d'intensité égales; dont l'un sert de référence et l'autre traverse une cellule à iode. Deux photodiodes placées respectivement l'une devant le faisceau de référence et l'autre à la sortie de la cellule à iode délivrent des signaux respectivement proportionnels aux puissances des deux faisceaux. Ces deux signaux sont envoyés sur une carte analogique-digitale et leur différence (qui représente un signal proportionnel à la puissance absorbée dans la cellule) est enregistrée simultanément avec le spectre.

La correspondance entre la fréquence ν_i repérée sur le spectre grâce à l'atlas de l'iode [GER78] et la fréquence IR (produite par effet Raman) utile pour l'excitation sélective du niveau intermédiaire ($n = 10$, M donné) sur un état de Rydberg élevé est donnée par :

$$\nu_{IR} = \nu_i - 3\nu_R$$

ν_R est la fréquence Raman, dans notre cas, elle correspond à la fréquence de la transition moléculaire vibrationnelle pure ($\nu = 0, J = 1 \rightarrow \nu = 1, J = 1$) de l'hydrogène et vaut $4155,29 \text{ cm}^{-1}$ [HER50].

Les valeurs d'énergie absolue sont données à partir de la limite d'ionisation en champ nul (origine d'énergie). La précision du résultat dépend de l'erreur sur le pointage des raies à partir du spectre de l'iode.

C.V.2. Champ magnétique.

Le champ magnétique créé au centre des bobines supraconductrices est proportionnel au courant qui les parcourt. La courbe d'étalonnage $B = f(I)$ fournie par le constructeur avec l'aimant supraconducteur donne une valeur absolue du champ magnétique à environ 10% près. L'homogénéité du champ magnétique dans la zone d'interaction est de $\Delta B/B \approx 10^{-4}$ dans 1 cm^3 . Il est donc nécessaire de connaître à un

courant d'intensité donnée la valeur exacte du champ magnétique, ceci pour des comparaisons plus fiables avec les calculs théoriques.

Pour réaliser cette calibration, l'atome constitue la meilleure sonde : en excitation σ , la superposition des deux composantes σ^+ et σ^- décalées de $\hbar\omega_c$ permet de calculer la valeur du champ magnétique régnant dans la zone d'interaction à partir d'une mesure de fréquence.

Ceci peut être fait sur la dernière excitation, la résolution du spectre est alors limitée par la largeur du laser pulsé. Une meilleure résolution est obtenue en enregistrant le spectre de la première transition, puisque elle est réalisée grâce à un laser continu. Il faut alors tenir compte lors du dépouillement du spectre (voir chapitre IV) des effets de spin orbite et hyperfin en plus de l'effet du champ magnétique. L'incertitude relative obtenue à 5 T est d'environ 10^{-3} .

D. Etude détaillée des transitions mises en jeu.

Dans ce qui suivra nous étudierons plus en détails chacune des transitions du schéma d'excitation donné sur la figure (II.9) ainsi que les différents critères qui nous ont permis de les choisir.

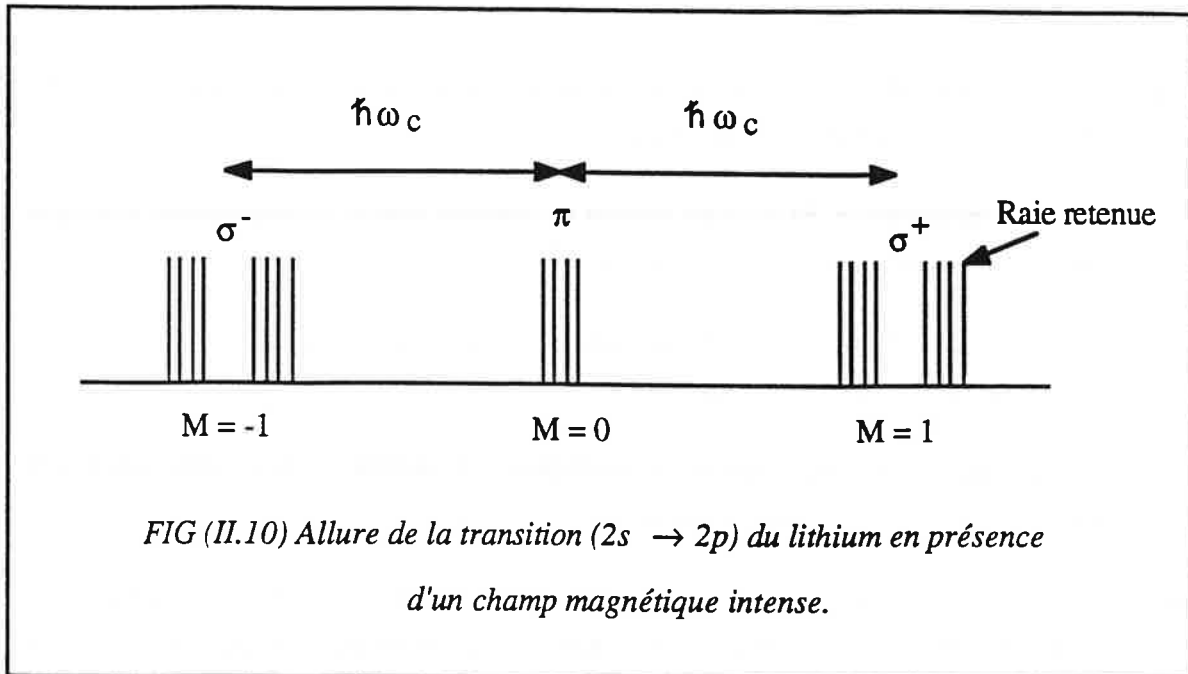
D.I. La transition $2s \rightarrow 2p$.

L'intensité du champ magnétique utilisé lors de nos expériences est d'environ 5 T ce qui nous place dans le domaine de champ fort pour les états $2s$ et $2p$ du lithium. Le spectre d'énergie de la transition $2s \rightarrow 2p$ en champ magnétique fort est schématisé sur la figure (II.10). Suivant la polarisation du champ exciteur on a des raies π , σ^+ ou σ^- . Les deux transitions π ont même fréquence, il existe par contre un écart dû à la structure fine entre fréquences des deux types de transitions σ^+ et entre celles des deux types de transitions σ^- . Chaque transition π , σ^+ ou σ^- est constituée de quatre raies ($2I + 1 = 2(3/2) + 1 = 4$) dont la levée de dégénérescence est due au terme de structure hyperfine.

L'intervalle moyen entre le doublet σ^+ et la raie π (ou entre la raie π et le doublet σ^-) est égal à $\hbar\omega_c$.

La transition retenue lors de nos expériences est celle qui correspond à l'excitation σ^+ la plus bleue. L'intensité de la raie est suffisamment grande ce qui rend

possible la détection de sa fluorescence par un photomultiplicateur et l'asservissement de la fréquence laser sur sa fréquence.



D.II. La transition intermédiaire 2p → n=10.

L'approximation des champs faibles valable si $H_d(n) \ll \Delta V(n)$ s'exprime de façon différente selon que le multiplet étudié est pair ($\pi_t = 1$) ou impair ($\pi_t = -1$) (cf paragraphe (II.2) de ce chapitre). Dans le cas du multiplet ($n = 10$) qui nous intéresse on trouve :

$$B_{ns} \approx 101.6 \text{ T}$$

$$B_{np} \approx 48.8 \text{ T}$$

où B_{ns} (respectivement B_{np}) est la valeur de l'intensité du champ magnétique à laquelle la composante sphérique ns (respectivement np) se mélange au multiplet diamagnétique incomplet.

Pour les champs magnétiques réalisables en laboratoire l'approximation de champ faible reste donc toujours valable dans le cas du multiplet $n = 10$. Dans le cadre de cette approximation le terme diamagnétique lève la dégénérescence du niveau d'énergie n,

on obtient un multiplet diamagnétique dont on dira qu'il est incomplet puisque son extension n'inclut pas les composantes non hydrogénoïdes s, p et d très fortement affectées par le terme non coulombien.

- Le multiplet ($n, M = 0$) du lithium ne contient que $n-3$ composantes alors que dans le cas de l'hydrogène il en contient n .

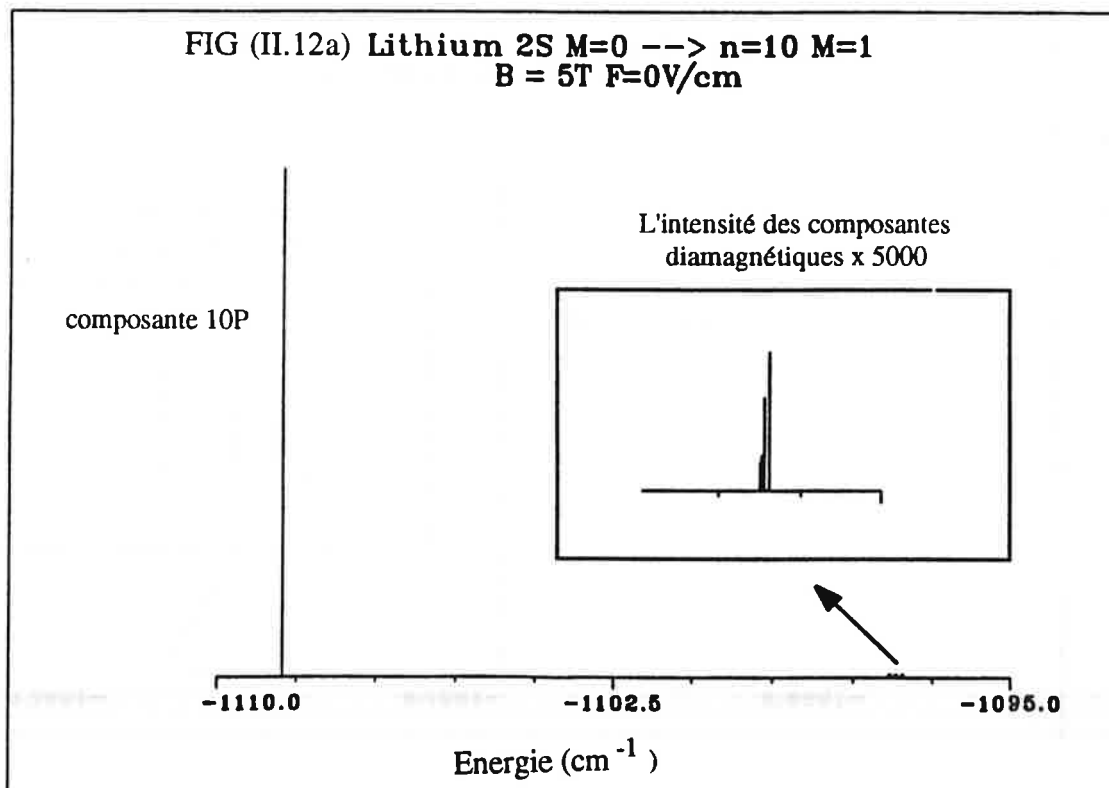
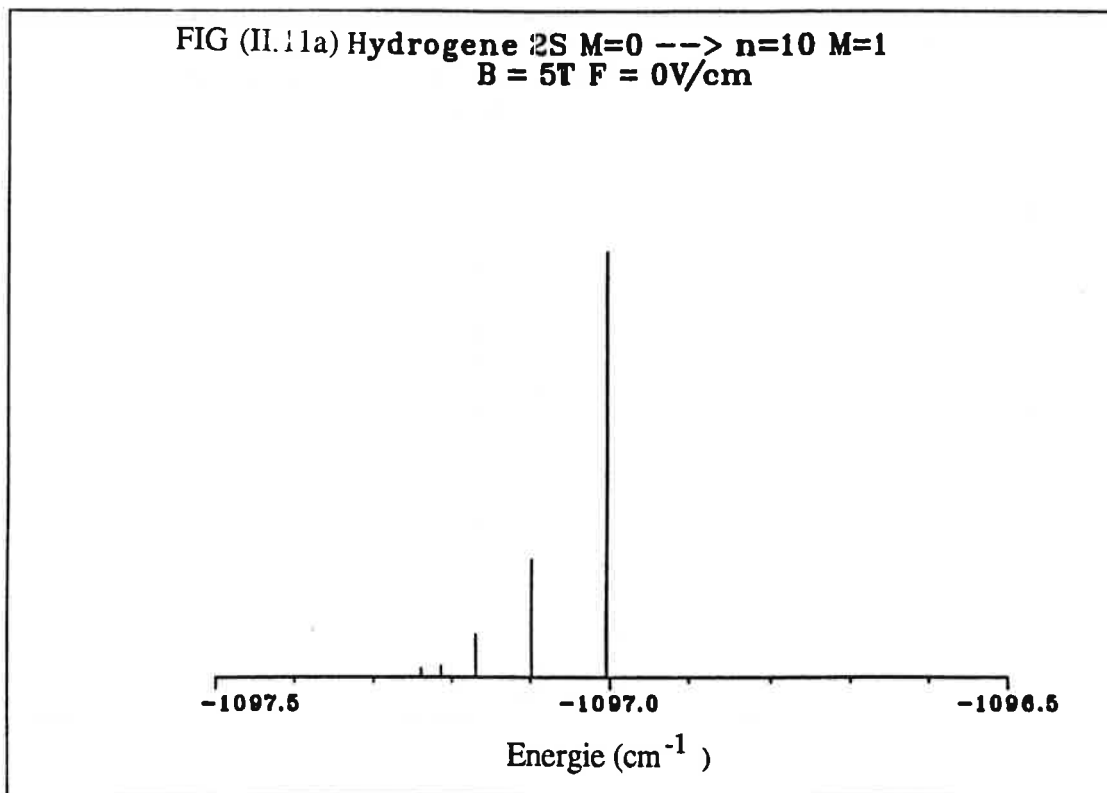
- Le multiplet ($n, M = 1$) du lithium ne contient que $n-3$ composantes alors que dans le cas de l'hydrogène il en contient $n-1$.

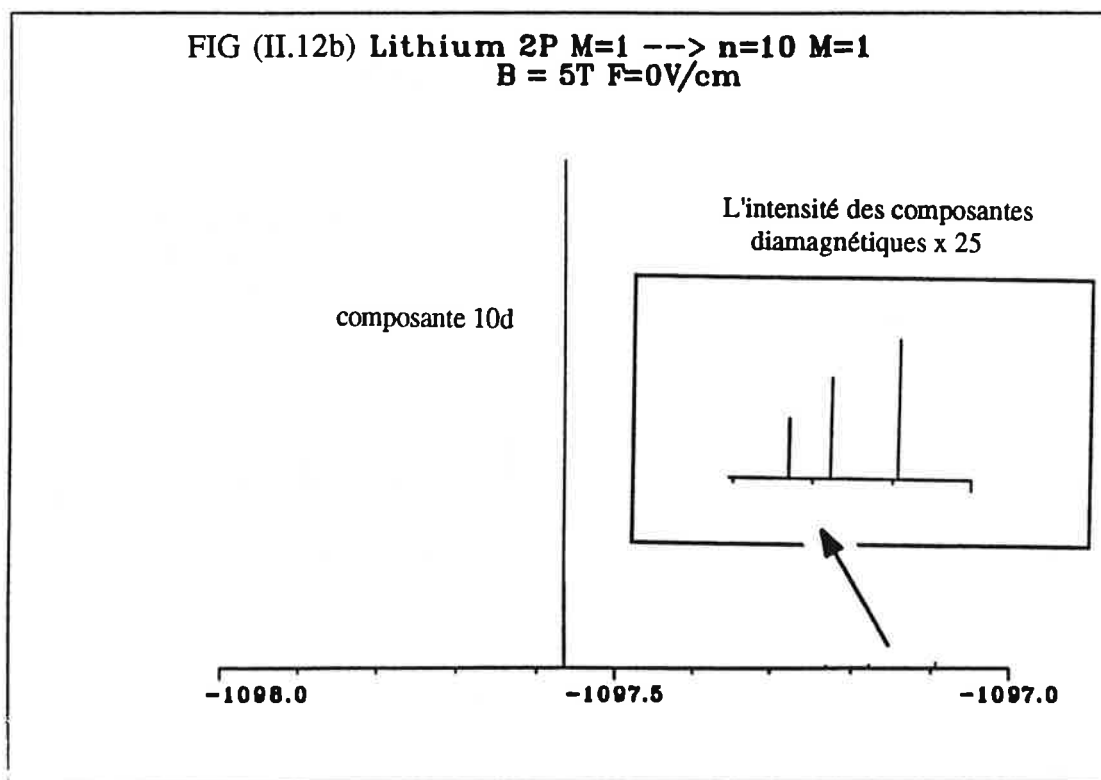
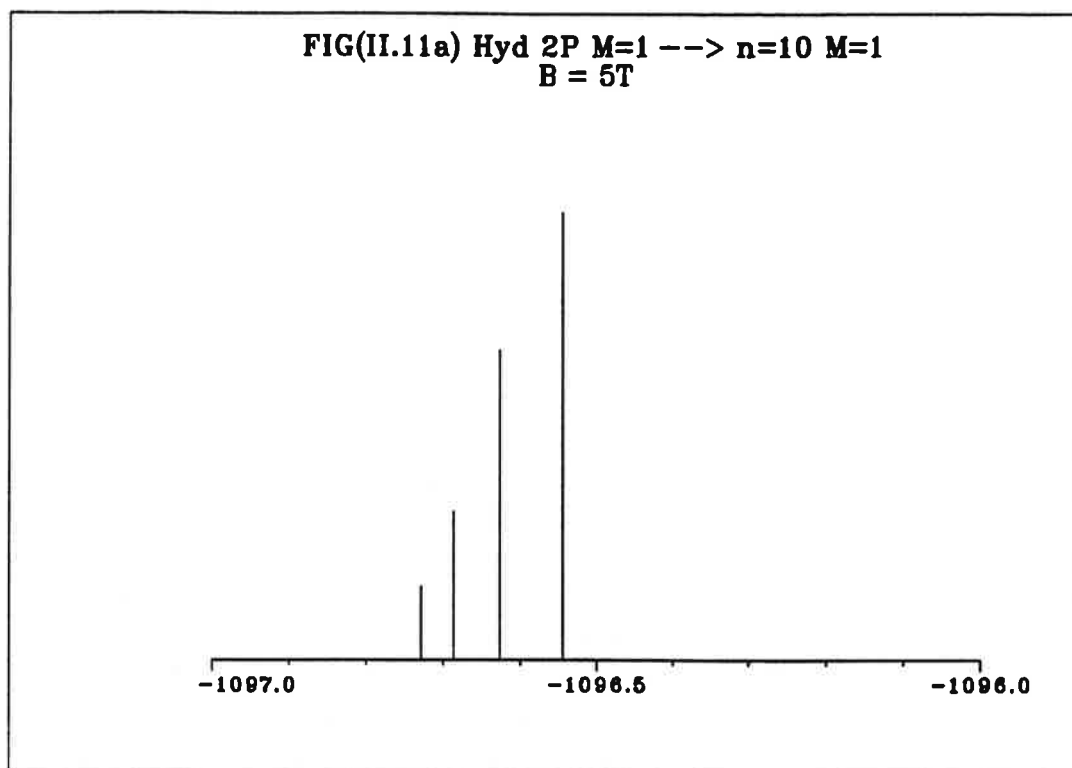
- Le multiplet ($n, M = 2$) du lithium ne contient que $n-3$ composantes alors que dans le cas de l'hydrogène il en contient $n-2$.

Les états diamagnétiques de ces multiplets incomplets ont des composantes très faibles pour les états sphériques ayant pour $l = 0, 1$ ou 2 .

Sur les figures (II.11) et (II.12) on montre respectivement l'allure du multiplet incomplet ($n = 10, M = 1$) calculé pour un champ magnétique de 5T respectivement dans le cas de l'hydrogène et du lithium et ce lors d'une excitation démarrante sur l'état ($2s, M = 0$) (figures II.11a et II.12a) ou sur l'état ($2p, M = 1$) (figures II.11b et II.12b). Dans le premier cas, seules les composantes impaires du spectre sont excitées et dans le deuxième cas seules les composantes paires le sont.

Les spectres calculés pour l'hydrogène montrent que les forces d'oscillateur sont réparties sur l'ensemble des raies du multiplet de façon sensiblement uniforme. Pour le lithium dans les deux cas de figures, une raie du spectre reste très en dehors du multiplet incomplet et accapare la quasi totalité de la force d'oscillateur. En effet les règles de sélection dipolaire électrique n'autorisent que l'excitation optique des états du spectre ayant une forte composante sur l'état sphérique $|n=10, l=M=1\rangle$ tel que $l' = l \pm 1$, l étant le moment cinétique de l'état de départ : dans le cas de la figure (II.12a) (respectivement (II.12b)), les états de forte composante $10p$ (respectivement $10d$) sont les seules atteintes lors de l'excitation. $B = 5T$ étant inférieur à B_{10p} , les états $10p$ et $10d$ ne rentrent presque pas dans la composition des fonctions d'onde des états diamagnétiques du





multiplet incomplet qui se retrouvent par conséquent avec des forces d'oscillateur presque nulles.

Pour exciter les états diamagnétiques du multiplet incomplet avec des forces d'oscillateur raisonnables, il faut trouver pour une intensité du champ magnétique identique (= 5T) un artifice qui permette de mélanger la composante 10p (respectivement 10d) au reste du multiplet diamagnétique.

D.II.1. Effet d'un champ électrique appliqué parallèlement au champ magnétique.

Quand un champ électrique F est appliqué parallèlement au champ magnétique B les deux types d'états (rotationnels et vibrationnels) mis en évidence en champ électrique nul sont préservés et le régime d'inter l-mixing ($\gamma^2 n^7 \ll 1$) persiste tant que [CAC88]:

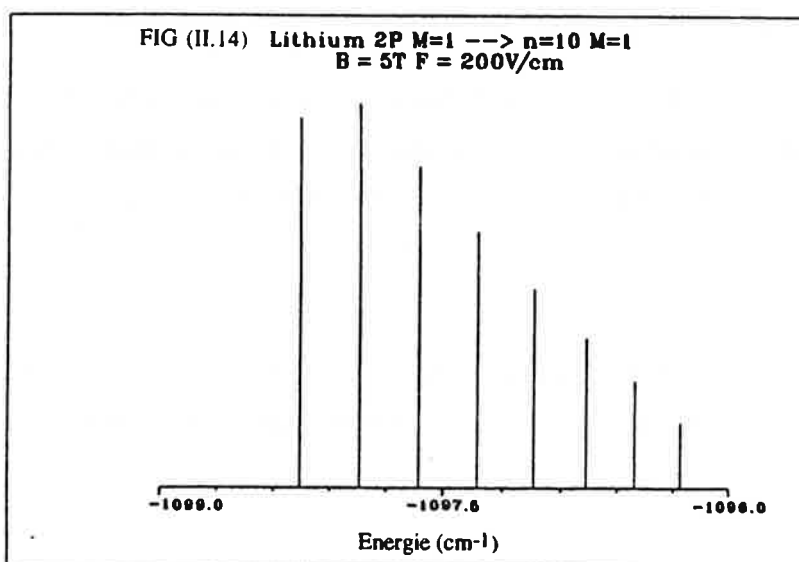
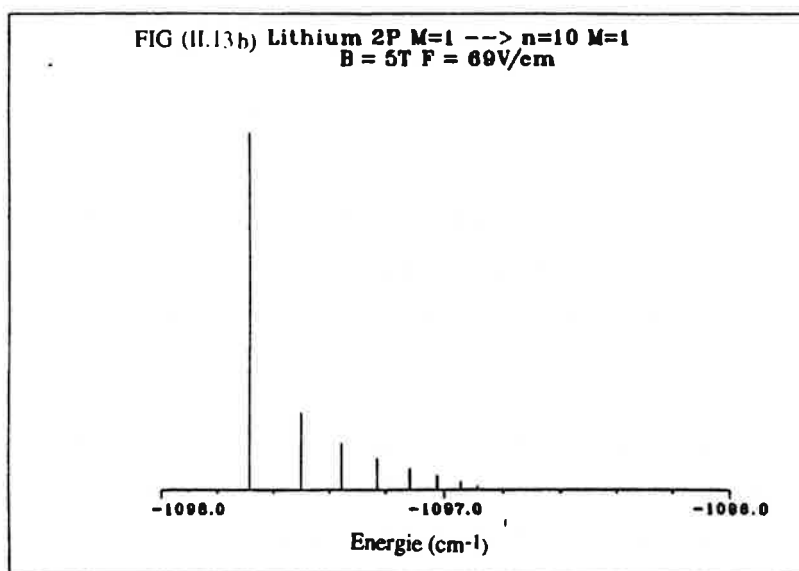
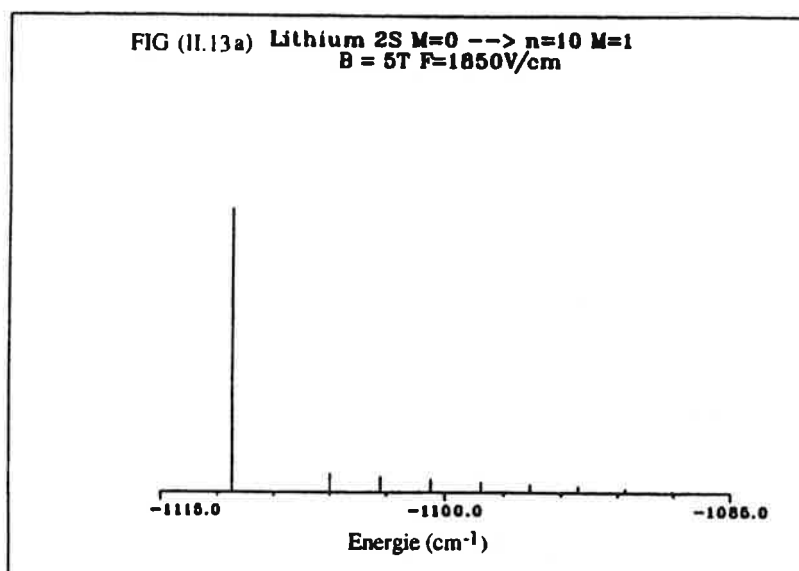
$$fn^5 \ll 1 \quad f = \frac{F}{F_c} \quad F_c = 5.14 \cdot 10^9 \text{ V/cm}$$

Les champ électrique et magnétique étant parallèles M est un bon nombre quantique. L'interaction due au champ électrique a pour effet de mélanger deux états de parités totales différentes. Le spectre d'un multiplet ($n M$) donné comporte donc $(n - |M|)$ composantes.

Dans le cas de l'atome d'hydrogène, les états vibrationnels diamagnétiques dégénérés par paires (en absence de champ électrique) présentent un effet Stark linéaire (perturbation d'un niveau dégénéré). Par contre, la théorie des perturbations au second ordre d'un niveau dégénéré appliqué aux états rotationnels non dégénérés (états pairs et impairs alternent) montre qu'ils présentent un effet Stark quadratique.

Dans le cas de l'atome de lithium, les états non hydrogénoïdes étant non dégénérés, présentent un effet Stark quadratique et les états du multiplet diamagnétique réagissent comme dans le cas de l'atome d'hydrogène (effet Stark linéaire pour les états vibrationnels et quadratique pour les états rotationnels).

En présence du champ magnétique de 5T, l'état non hydrogénoïde n_l de l'atome de lithium ne pénètre dans le multiplet incomplet que pour une valeur de l'intensité du champ électrique supérieur à F_{nl} , pour cette valeur la position en énergie de l'état non



hydrogéoïde n_l est identique à celle de la composante la plus vibrationnelle du multiplet incomplet (n à $\mathbf{B} \parallel \mathbf{F}_{nl}$) c'est à dire que [CAC88]:

$$\frac{1}{2(n - \delta_l)} = \frac{1}{2n^2} + \frac{5}{8} \gamma^2 n^4 \beta \quad \text{avec: } \beta = \frac{12}{5} \frac{f_{nl}}{\gamma^2 n^2}$$

$$\Rightarrow F_{nl} = \frac{2 \delta_l}{3 n^5} F_c$$

La composante non hydrogéoïde (n_l) du spectre rejoint le multiplet incomplet; ainsi comme on le montre sur la figure (II.13a) (respectivement (II.13b)) la composante $10p$ (respectivement $10d$) ne pénètre dans le multiplet incomplet ($n = 10$ $M = 1$) que pour une valeur du champ électrique supérieure ou égale à $E_{10p} \approx 1850\text{V/cm}$ (respectivement $E_{10d} \approx 69\text{V/cm}$).

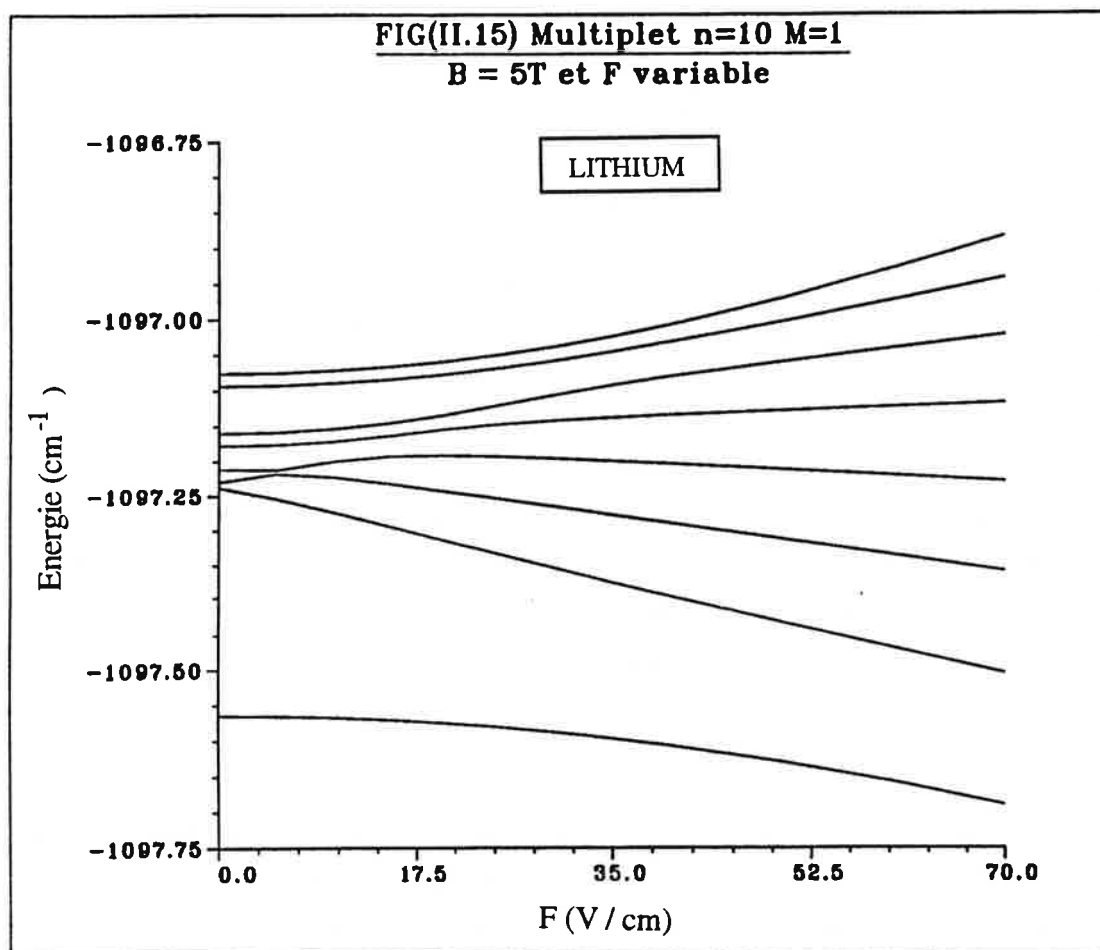
Contrairement au cas du champ magnétique seul, toutes les composantes paires et impaires du multiplet ont des forces d'oscillateur raisonnables. La répartition d'intensité sur les différents états est de type Stark et les états sont équidistants. Une répartition plus équitable de cette force d'oscillateur sur l'ensemble des états du multiplet est possible si on augmente l'intensité du champ électrique de façon à ce que la composante $10d$ se répartit sur tous les états du multiplet [cf figure (II.14)]. Sur cette figure l'état $10d$ n'existe plus.

Au terme de ce paragraphe on s'aperçoit qu'un artifice possible pour exciter la composante la plus vibrationnelle ou la plus rotationnelle du multiplet diamagnétique ($n=10$ M) avec une intensité raisonnable consiste à appliquer parallèlement au champ magnétique un champ électrique d'intensité $\approx 200\text{V/cm}$. Ce champ doit être annulé adiabatiquement avant l'arrivée de la dernière impulsion laser [cf figure (II.9)] qui sert à porter les atomes sur les états de Rydberg élevés. Cette méthode est dite: méthode de débranchement adiabatique du champ (en anglais Stark switching method).

D.II.2. La méthode de débranchement adiabatique du champ.

L'évolution de la structure du multiplet ($n=10$, $M=1$) de l'atome de lithium en présence d'un champ magnétique de 5T en fonction des valeurs croissantes du champ électrique est présentée sous la forme d'un diagramme du plan E, F sur la figure (II.15). La composante $10p$ n'est pas représentée sur cette figure puisqu'elle est très éloignée de

la composante du multiplet incomplet qui lui est la plus proche (à 5T et $F=100\text{V/cm}$, elle est à $\approx 11\text{cm}^{-1}$).



En champ électrique nul, la composante 10d est franchement en dehors du multiplet; quand F croît le caractère non hydrogénoïde disparaît progressivement car l'interaction Stark devient prédominante et la composante 10d rejoint le multiplet incomplet. L'interaction non coulombienne est responsable des anticroisements qui apparaissent sur cette figure, leur largeur non négligeable est attribuée aux effets de coeur malgré la faible valeur du défaut quantique de l'état d qui intervient.

Lors de nos expériences l'intensité du champ électrique appliqué parallèlement au champ magnétique est d'environ 200V/cm . L'évolution d'un état du système qui présente un anticroisement étroit avec un autre état dépend de façon critique du temps T nécessaire pour faire décroître le champ électrique de sa valeur initiale à zéro.

Sous l'action du champ électrique $F(t)$ le hamiltonien du système s'écrit :

$$H = H_0 + H_f(t)$$

où H_0 contient la contribution des termes: - coulombien.

- non coulombien.

- paramagnétique.

- diamagnétique.

$$H_f(t) = - e z F(t)$$

e étant la charge de l'électron et z la projection du vecteur position de l'électron sur l'axe du champ électrique.

$$\text{à } t = t_0 \quad H = H_0 - e z F_0$$

$$\text{à } t = t_0 + T \quad H = H_0$$

On travaillera par la suite avec des intensités de champ électrique telles que le terme $H_f(t) \ll H_0$. Pour que le système qui se trouve à l'instant t_0 dans un état propre du hamiltonien $H_0 - ezF_0$ ($F_0 = 200\text{V/cm}$) passe au temps $t_0 + T$ dans l'état propre de H_0 qui s'en déduit par continuité, il faut que le passage se fasse suffisamment lentement ou en d'autres termes adiabatiquement. Dans ce qui suit nous établirons la condition d'adiabaticité sur l'évolution temporelle dF/dt du champ électrique. L'évolution du système induit par le champ électrique sera caractérisée par le coefficient α_{ij} défini par [MES64]:

$$\alpha_{ij} = \frac{\langle \psi_i | \frac{dH_f}{dt} | \psi_j \rangle}{\hbar \omega_{ij}}$$

ψ_i et ψ_j sont deux états propres perturbés.

$\hbar \omega_{ij} = \hbar (E_j - E_i)$ est la différence d'énergie entre ces deux états.

En absence de perturbation le système évolue naturellement à la fréquence ω_{ij} et sous l'effet de la variation de champ $H_f(t)$ cette évolution est caractérisée par le coefficient α_{ij} .

La condition d'adiabaticité peut être reformulée de la façon suivante : pour que le système évolue sous l'action de la perturbation adiabaticquement de l'état ψ_i à l'état ψ_j il faut que cette évolution soit plus lente que l'évolution naturelle du système [MES64] et donc :

$$\alpha_{ij} \ll \omega_{ij}$$

$$\Rightarrow \left| \langle \psi_i | e z \frac{dF}{dt} | \psi_j \rangle \right| \ll \hbar \omega_{ij}^2$$

Cette condition doit être vérifiée à tout instant tout au long de la décroissance de F .

Lors de nos expériences les deux états qui nous intéressent sont respectivement le plus rotationnel et le plus vibrationnel du multiplet ($n=10, M=1$) notés respectivement $K=0$ et $K=6$ sur la figure (II.15). La condition d'adiabaticité est plus restrictive pour l'état vibrationnel puisqu'il anticroise avec l'état diamagnétique $K=5$ à $F \approx 0V/cm$ et donc $\hbar \omega_{ij}$ qui représente la largeur minimale de l'anticroisement à $F \approx 0V/cm$ est très faible. Dans ce qui suivra on établira la condition d'évolution adiabatique de ce état entre un temps t_0 où $F(t_0) = 200V/cm$ et un temps $t_0 + T$ où $F(t_0 + T) = 0 V/cm$, condition qui assurera automatiquement une évolution adiabatique de l'état le plus rotationnel $K=0$ pour le même intervalle de temps. La condition s'écrit:

$$e \frac{dF}{dt} \Big|_{F=0} \left| \langle \psi_i | z | \psi_j \rangle \right| \ll \hbar \omega_{ij}^2$$

$$d'où : \frac{dF}{dt} \Big|_{F=0} \ll \frac{\hbar \omega_{ij}^2}{e \left| \langle \psi_i | z | \psi_j \rangle \right|}$$

$$|\psi_i\rangle = |n=10, M=1, K=6\rangle \text{ à } B = 5T \text{ et } F = 0V/cm$$

$$|\psi_j\rangle = |n=10, M=1, K=5\rangle \text{ à } B = 5T \text{ et } F = 0V/cm$$

$$\hbar \omega_{ij} = E_j - E_i (\approx 0.0083 \text{ cm}^{-1})$$

Les états propres et les énergies propres ainsi que l'élément de matrice $\langle \psi_i | z | \psi_j \rangle$ sont calculés numériquement. On obtient :

$$\left. \frac{dF}{dt} \right|_{F=0} \ll 3.46 \text{ V/cm par ns}$$

Pour assurer l'évolution adiabatique de l'état vibrationnel et de l'état rotationnel entre les deux instants t_0 et $t_0 + T$ il faut que la décroissance du champ électrique de sa valeur initiale de 200V/cm à sa valeur finale nulle se fasse en un temps T vérifiant la condition suivante :

$$T \gg 58 \text{ ns}$$

Lors de nos expériences le temps de décroissance T est d'environ 200 ns, il vérifie largement la condition d'adiabaticité tout en étant suffisamment faible devant la durée de vie des états considérés ($n=10, M, K$) qui est d'environ $1\mu\text{s}$.

L'impulsion de champ électrique de "Stark switching" est schématisée en parallèle avec les impulsions laser et l'impulsion de champ électrique ionisante sur la figure (II.16).

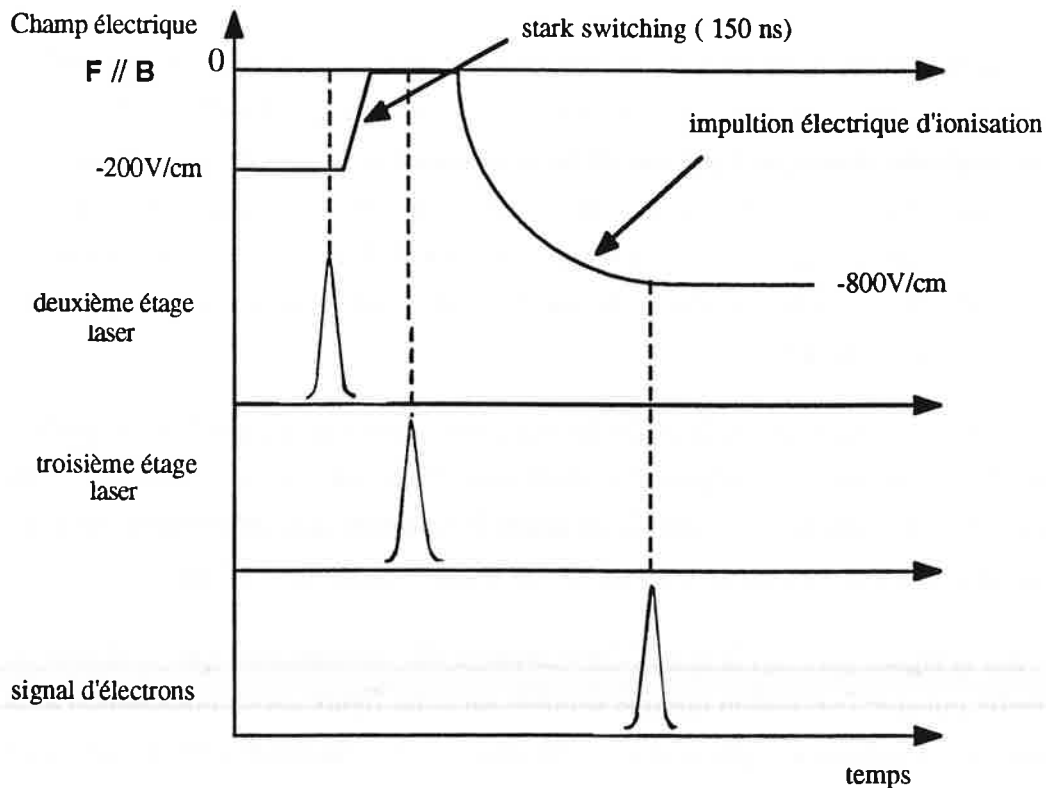


FIG (II.16) Schéma temporel.

La méthode de débranchement adiabatique du champ constitue donc un artifice qui permet d'augmenter les intensités très faibles des raies ($2p \rightarrow n=10, M, K, \pi_t = +1$) en mélangeant aux fonctions d'ondes des états diamagnétiques la composante $10d$. Cette méthode permet aussi de rendre possible les transitions ($2p \rightarrow n=10, M, K, \pi_t = -1$) interdites par les règles de sélection dipolaire électrique et ceci en mélangeant les fonctions d'onde de parités opposées grâce au champ électrique.

E. La transition finale ($n=10 \rightarrow$ état de Rydberg).

E.I. Régime de champ faible.

E.I.1. Transition sélective.

Comme dans le cas de l'atome d'hydrogène l'excitation dipolaire électrique de l'atome de lithium conserve assez bien la symétrie de l'état de départ. Sur la figure (II.17a) (respectivement (II.17b)) on représente de la même manière que sur la figure (II.6) l'évolution de la répartition de la force d'oscillateur sur les composantes du multiplet $n=22, M=1$ en fonction de la symétrie de l'état de départ ($n=10, M=1, K$) (respectivement ($n=10, M=0, K$)).

Sur les deux figures (II.17) les deux derniers spectres correspondent respectivement à une excitation demarrant sur l'état $10d$ et $10p$. Ces états sont très en dehors du multiplet diamagnétique ($n=10, M=1$) à cause des effets de coeur et ne sont donc pas contaminés par l'interaction diamagnétique, ceci explique le manque de sélectivité dans l'excitation du multiplet supérieur ($n=22, M=1$) à partir de cet état: la force d'oscillateur se répartit d'une façon équitable sur toutes les composantes diamagnétiques du multiplet.

Comme la sélectivité sur le multiplet supérieur dépend de la pureté de la symétrie de l'état diamagnétique de départ, la sélectivité (rotationnel \rightarrow rotationnel) où (vibrationnel \rightarrow vibrationnel) est meilleure quand l'excitation optique démarre sur l'état diamagnétique $n=10$ le plus rotationnel ($K=0$) ou le plus vibrationnel ($K=6$).

Sur la figure (II.17a); la sélectivité vibrationnelle est meilleure que la sélectivité rotationnelle puisque l'excitation optique simulée sur cette figure est en polarisation π , et que dans ce cas l'opérateur z qui intervient favorise les états localisés près de l'axe z en l'occurrence les états vibrationnels.

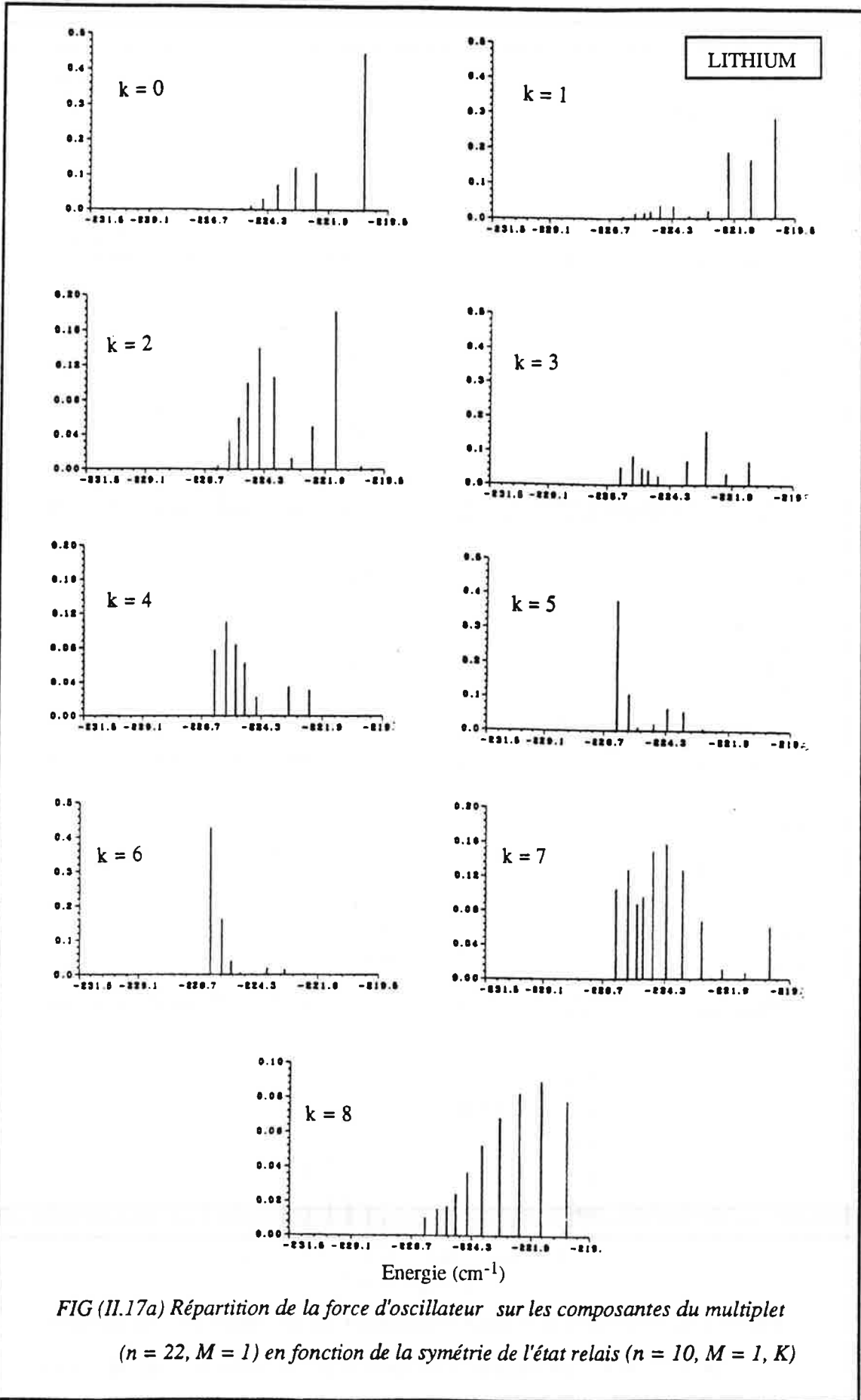
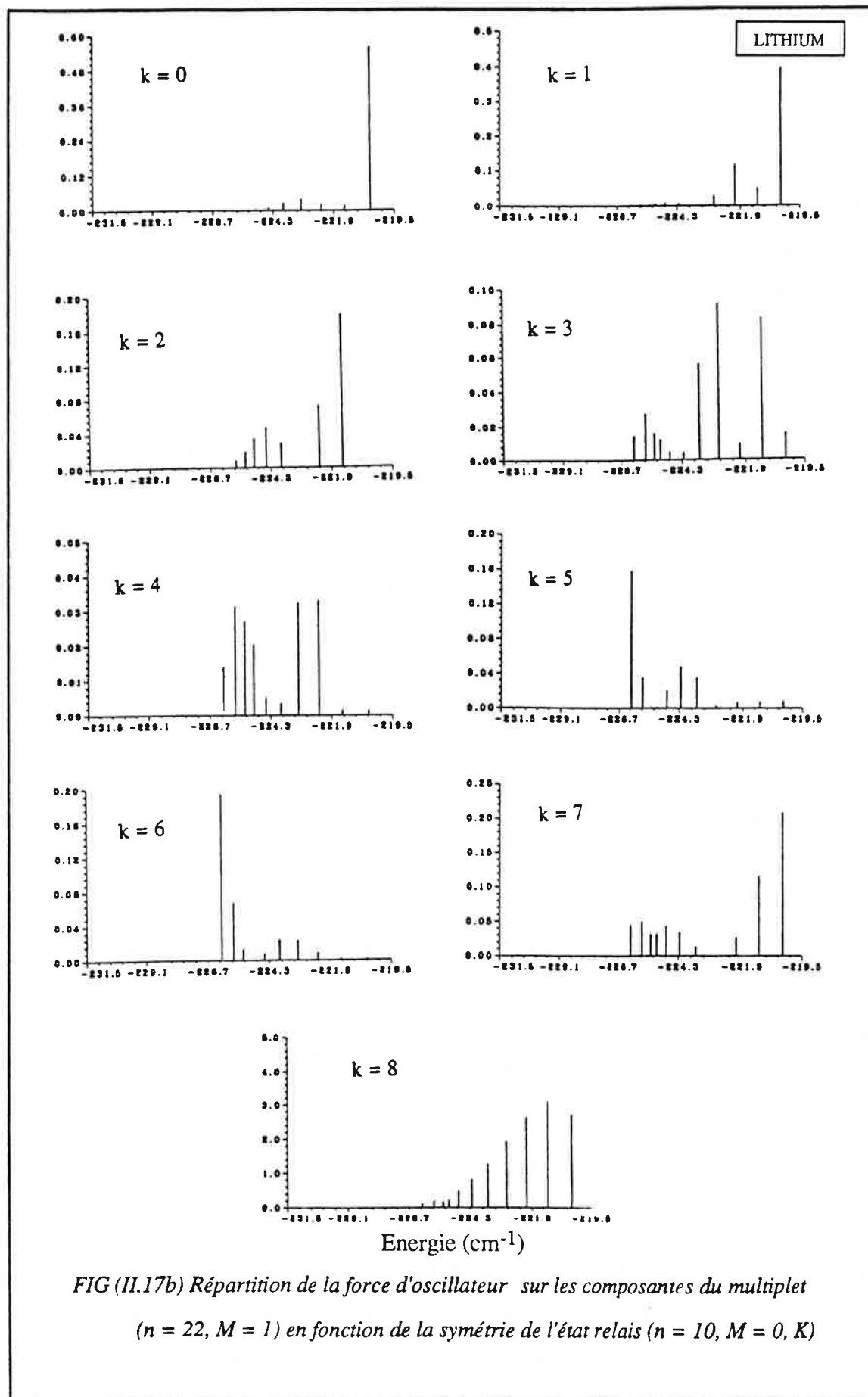


FIG (II.17a) Répartition de la force d'oscillateur sur les composantes du multiplet ($n = 22, M = 1$) en fonction de la symétrie de l'état relais ($n = 10, M = 1, K$)



Sur la figure (II.17b); la sélectivité rotationnelle est meilleure que la sélectivité vibrationnelle puisque l'excitation optique est de polarisation σ^+ et donc l'opérateur de transition qui intervient est l'opérateur $(x+iy)/\sqrt{2}$ qui favorise les états localisés près du plan $z=0$ en l'occurrence les états rotationnels.

E.I.2. Choix des polarisations.

Dans ce paragraphe on discutera les différents critères qui nous ont permis de choisir la polarisation de l'excitation sélective ($n=10 M K \rightarrow n=22 M'$) dans le cas vibrationnel puis rotationnel.

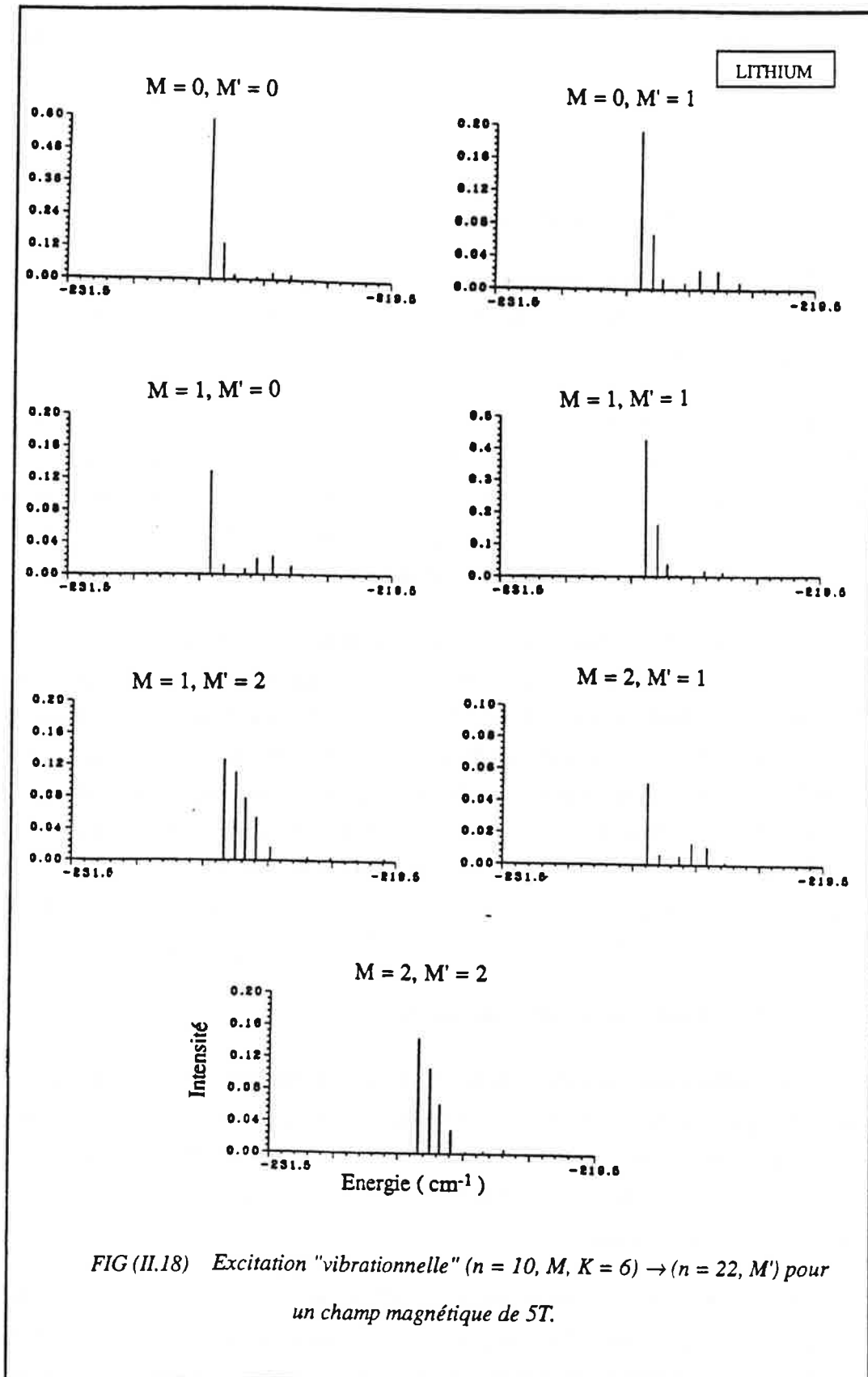
Les valeurs de M possibles sur l'état relais ($n=10 M K$) sont 0, 1 ou 2 selon que son excitation à partir de l'état ($2p M=1$) est polarisée σ^- , π ou σ^+ . A cause des règles de sélection sur la parité, les états relais diamagnétiques impairs ne peuvent pas être atteints à partir de l'état impair ($2p M=1$). Cependant comme on l'a vu au paragraphe (), la méthode de débranchement adiabatique du champ rend possible cette excitation.

Dans la suite de ce paragraphe le choix de la polarisation de la dernière excitation sélective se fera à partir de simulations numériques de spectres d'excitation représentant les transitions ($n=10 M \Pi_t K \rightarrow n=22 M' \Pi_t =(-1) K'$) ou $K=0$ pour la transition rotationnelle et $K=6$ pour la transition vibrationnelle. Pour chaque valeur possible de M (0, 1 ou 2) il y a trois possibilités pour M' correspondant chacune à une polarisation différente de l'excitation optique (σ^- , π ou σ^+). Le spectre correspondant à la transition ($n=10 M=0 \Pi_t K \rightarrow n=22 M'=-1 -\Pi_t$) étant identique à celui où $M'=1$ si ce n'est son décalage en énergie de $2\hbar\omega_c$ dû au terme paramagnétique, il ne sera pas représenté sur les deux figures (II.18) et (II.20) qui ne comprennent par conséquent que 8 spectres.

E.I.2.a. Excitation vibrationnelle.

Le multiplet diamagnétique $n=10 M$ ne contient des états vibrationnels ($\Lambda < 0$) que si $M \leq n_{\text{hyd}} / \sqrt{5}$, n_{hyd} étant le nombre d'états du multiplet hydrogénoïde incomplet du lithium pour $M \leq 2$, $n_{\text{hyd}} = 7$. Pour $M=0$ et 1 il n'y a que deux états diamagnétiques vibrationnels de parités opposées quasi dégénérés en énergie et pour $M=2$ il n'en subsiste plus qu'un seul de parité impaire.

Sur les 8 spectres vibrationnels ($n=10 M K=6 \rightarrow n=22 M'$) possibles représentés sur la figure (II.18) il n'apparaît que les raies vibrationnelles du multiplet supérieur. Quant la sélectivité est bonne comme dans le cas ($M=0 \rightarrow M'=0$) seules les



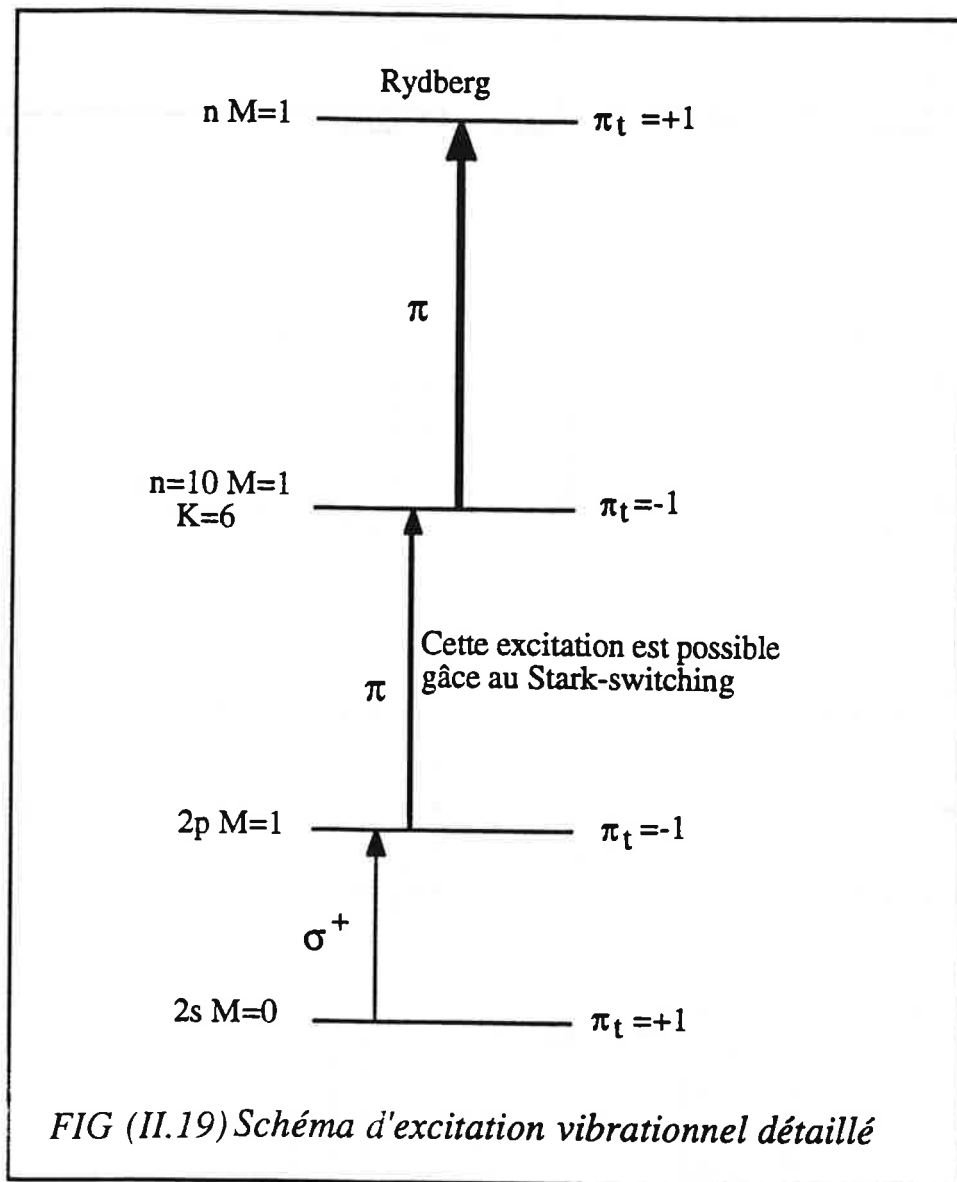
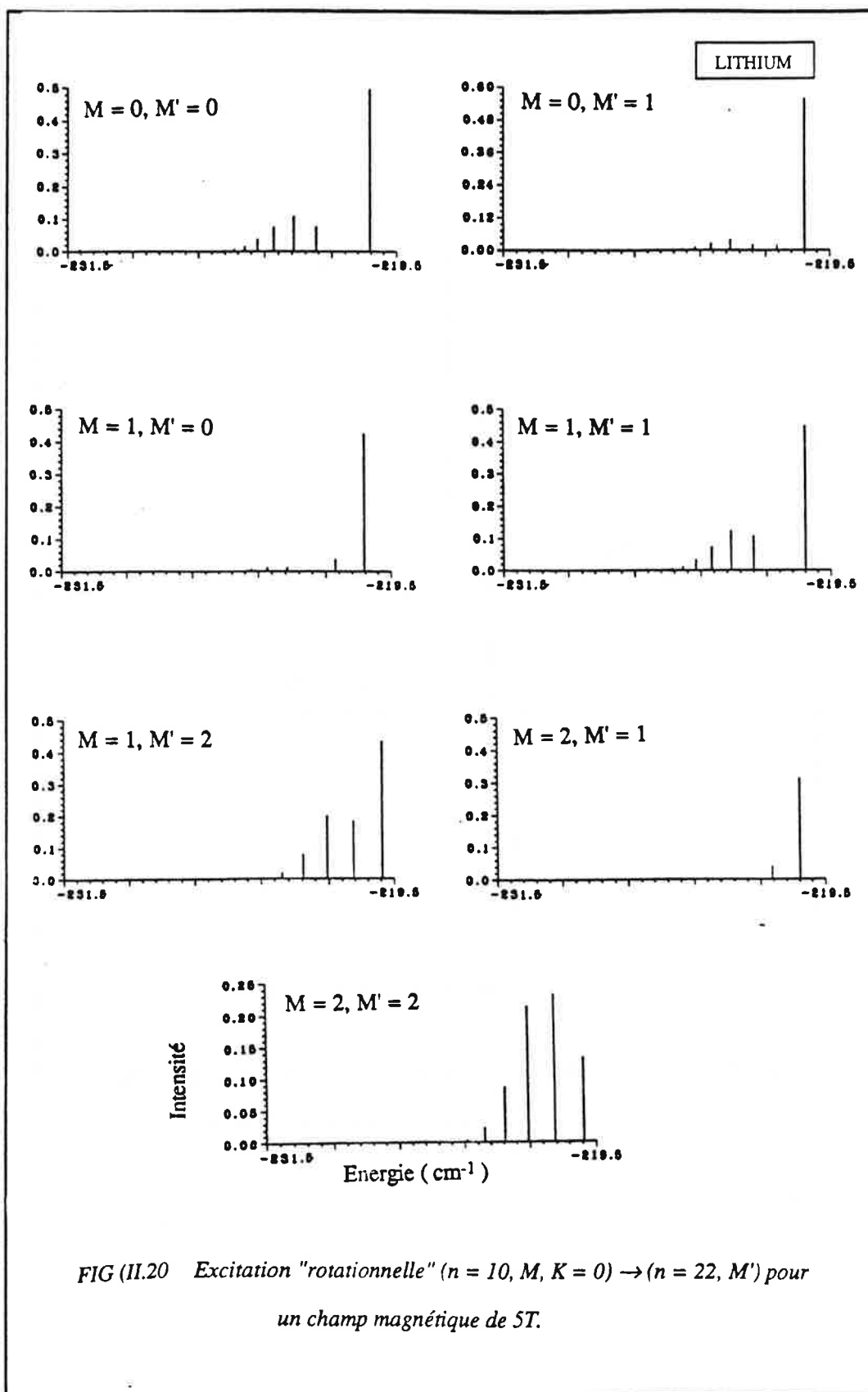


FIG (II.19) Schéma d'excitation vibrationnel détaillé



raies les plus basses en énergie et donc possédant une forte symétrie vibrationnelle sont excitées.

Les spectres où la sélectivité est la meilleure sont ceux où l'excitation optique dipolaire électrique est en polarisation π c'est à dire ($M=0 \rightarrow M=0$), ($M=1 \rightarrow M=1$) et ($M=2 \rightarrow M=2$) : L'opérateur de transition z qui intervient dans les calculs des forces d'oscillateur favorise les états localisés selon l'axe Oz c'est à dire les états vibrationnels. Cependant pour cette même polarisation π , la sélectivité est meilleure quand $M=M'$ est faible, ainsi le spectre $M=M'=0$ est le meilleur parmi les trois cités précédemment. Il est cependant comparable au spectre $M=M'=1$, car sur les deux, seules trois raies ont des forces d'oscillateur raisonnables: Lors de nos expériences on a opté pour ce dernier; le schéma d'excitation détaillé est représenté sur la figure (II.19).

E.I.2.b. Excitation rotationnelle.

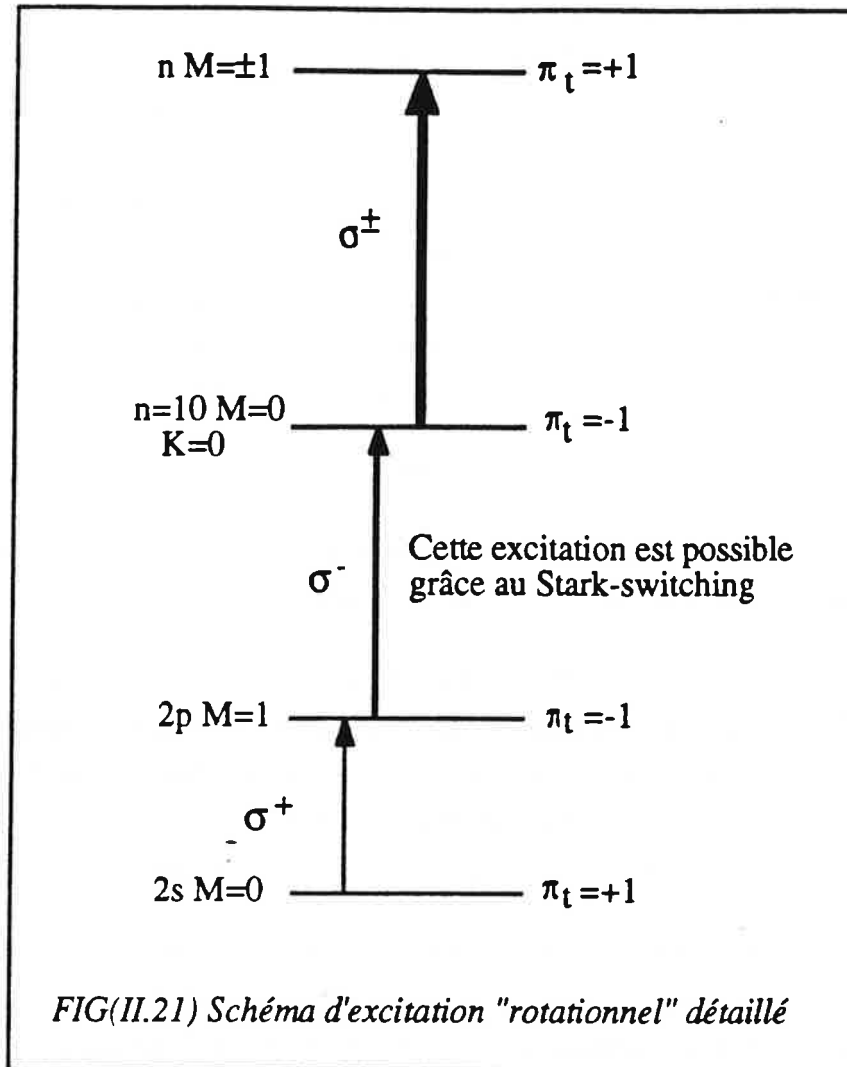
Les états rotationnels sont de parité alternée, ils sont au nombre de 7 (respectivement 6) pour le cas ($n=10 M=0$ ou 1) (respectivement ($n=10 M=2$).

Les huit spectres possibles ($n=10 M K=0$) \rightarrow ($n=22 M'$) sont représentés sur la figure (II.20), les raies qui apparaissent sur ces spectres sont toutes rotationnelles, leur nombre est relié à la qualité de la sélectivité : ce nombre est faible quand l'excitation est polarisée σ , ceci est dû à ce que l'opérateur de transition $(x \pm iy)/\sqrt{2}$ qui intervient favorise les états localisés dans le plan xOy c'est à dire les états rotationnels.

Dans notre configuration expérimentale les excitations σ^+ et σ^- ne sont pas dissociées et lors d'une excitation à partir d'un état de M donné, on observe simultanément les états supérieurs de $M'=M+1$ et $M'=M-1$. Le nombre M étant un nombre quantique exact, deux états de M différents n'interagissent pas, c'est pourquoi apparaît dans les spectres expérimentaux la simple superposition des deux spectres décalés en énergie de la quantité $2\hbar\omega_c$. Dans le cas où $M=-M'$ les deux spectres décalés sont identiques et l'interprétation s'en trouve simplifiée.

Le choix d'une excitation optique polarisée σ et du spectre $M=0$ et $M'=1$ auquel se superpose le spectre $M=0$ et $M'=-1$ décalés en énergie de $2\hbar\omega_c$ se trouve ainsi justifié. Sur ces deux spectres une seule raie correspondant à l'état pair le plus rotationnel du multiplet supérieur accapare la majeure partie de la force d'oscillateur, les raies rotationnelles avoisinantes n'ont qu'une faible fraction de cette force d'oscillateur. Le

schéma d'excitation détaillé utilisé lors de nos expériences est schématisé sur la figure (II.21).



Les états de Rydberg diamagnétiques ($n \ M = \pm 1$) atteints lors de cette excitation sont de parité impaire selon Oz ($\pi_z = (-1)^M \pi_t$), ce qui signifie que les fonctions d'onde qui décrivent ces états ont une localisation nulle dans le plan xOy perpendiculaire au champ magnétique ($\psi(z) = -\psi(-z) \Rightarrow \psi(z=0) = -\psi(-z=0) \Rightarrow \psi(z=0) = 0$). Pour pouvoir faire un parallèle entre l'étude quantique et l'étude classique des trajectoires localisées dans le plan xOy, il serait judicieux de mener l'étude sur des états ayant une localisation non nulle dans ce plan. Il serait donc intéressant d'étudier aussi l'excitation de ces états à partir du deuxième état rotationnel du multiplet ($n = 10 \ M = 0 \ K = 1$) de parité totale paire.

E.II. Régime de champ intenses.

Les excitations sélectionnées pour le lithium dans le cas vibrationnel et rotationnel permettent une grande simplification des spectres de raies dans la zone d'énergie correspondant au régime de champ faible. Ceci a pour principal intérêt de rendre directe l'observation de la modification qui survient dans un spectre de raies entre les deux régions d'énergie (champ faible et champ fort) qui correspondent à des comportements classiques du système différents (régulier et chaotique).

Les figures (II.22) et (II.23) représentent des spectres de raies simulés par D.Delande et J.C.Gay pour l'atome d'hydrogène en présence d'un champ magnétique de 4,7 T. Ces spectres ont été réalisés pour une excitation équivalente à celle choisie pour le lithium dans le cas vibrationnel et rotationnel. Ils couvrent les deux régions d'énergie qui correspondent à des dynamiques classiques du système distinctes (régulière et chaotique). Les flèches portées sur les figures (II.22) et (II.23) indiquent la position d'énergie pour laquelle la dynamique classique du système transite d'un régime régulier à un régime chaotique.

Dans la partie droite de la figure (II.22) (respectivement (II.23)), seules les 5 raies (respectivement les 4) les plus vibrationnelles (respectivement les plus rotationnelles) de chaque multiplet sont visibles. Les flèches portées sur ces deux figures marquent un changement brutal dans l'allure du spectre; la densité de raies augmente subitement, il n'y a plus de raies franchement dominantes. Toutes les raies ont des intensités comparables.

La sélectivité vibrationnelle (respectivement rotationnelle) reliée à l'existence de l'invariant adiabatique approché Λ dans le régime de champ faible n'est plus valable dans le régime de champ intense. Comme conséquence, toutes les raies du spectre de la zone d'énergie correspondant à ce régime ont des intensités comparables.

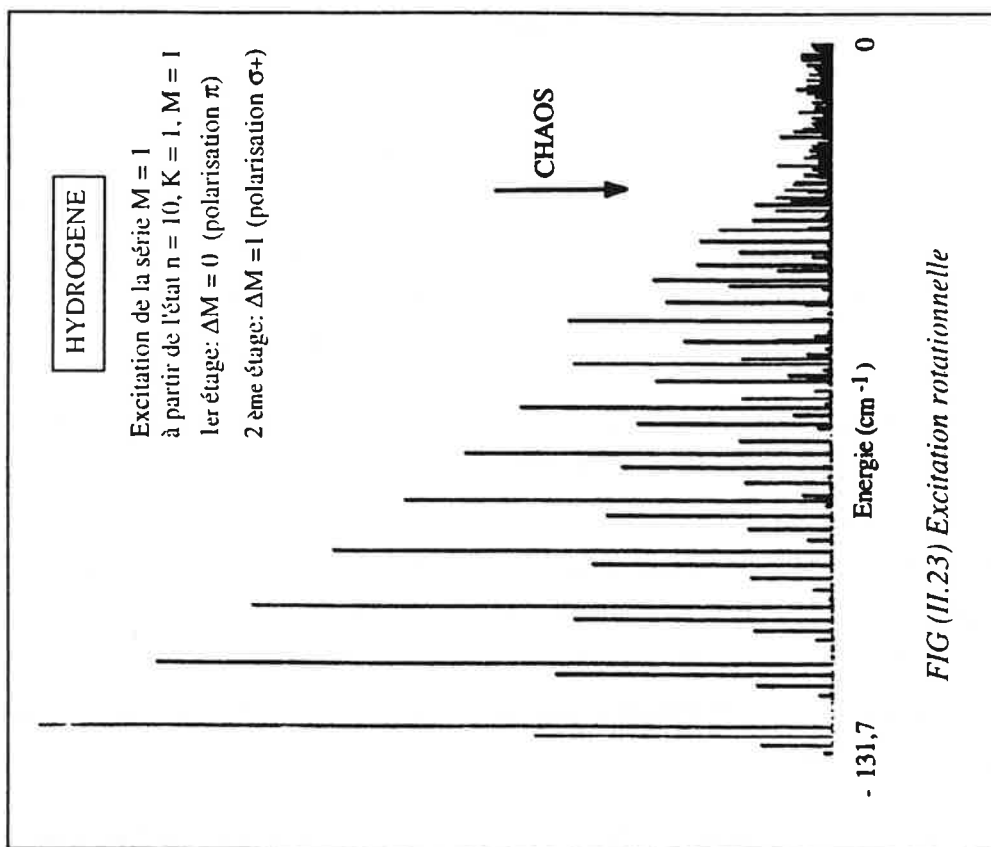


FIG (II.23) Excitation rotationnelle

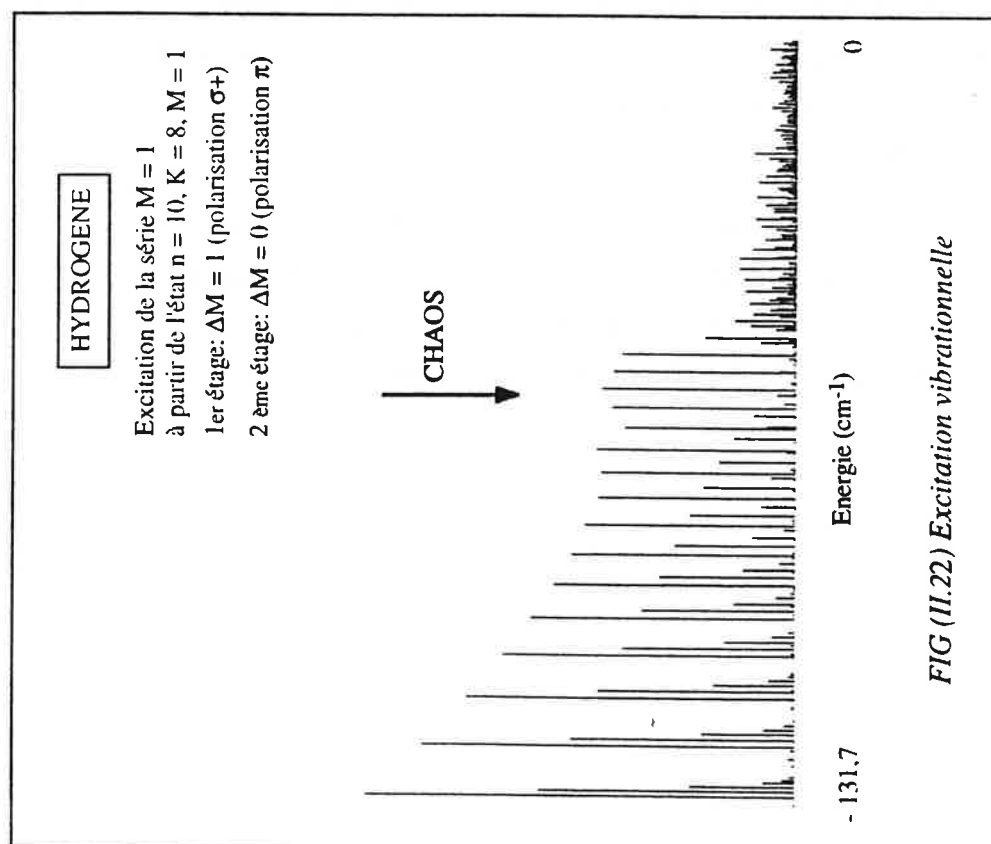
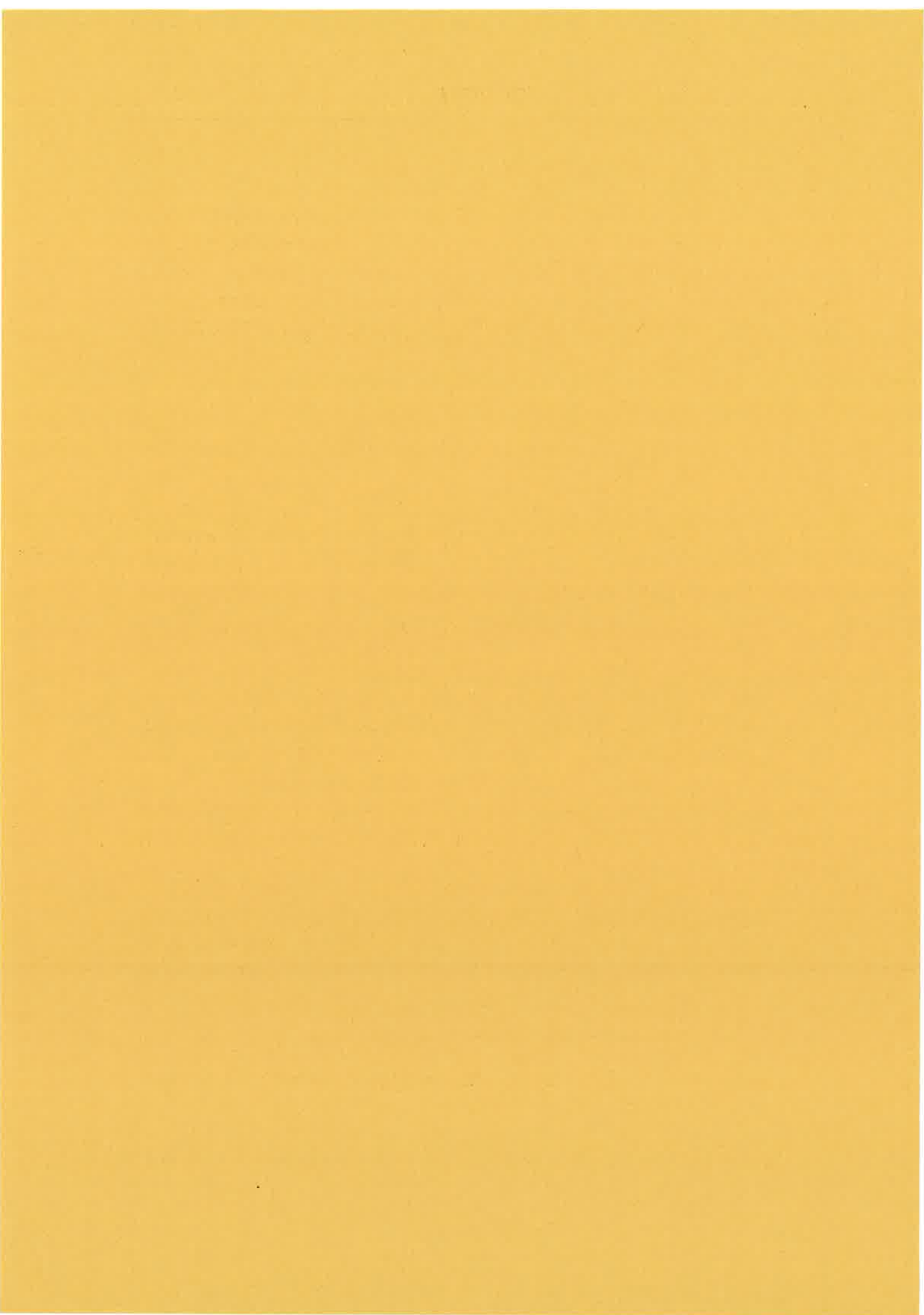


FIG (II.22) Excitation vibrationnelle





Notre expérience est menée sur un dispositif expérimental conçu depuis l'année 81 pour l'étude des atomes alcalins très excités en présence de champs électriques ou électromagnétiques [FEN 82, TAI 82]. Au fil des ans, ce dispositif a été amélioré et a subi des changements, particulièrement pour y inclure l'aimant supraconducteur dans le but d'étudier les atomes alcalins en présence d'un champ magnétique [CAC 84, THO 88, FEN 77, CAC 86].

Les expériences effectuées sur les états de Rydberg d'atomes alcalins ont été prolongées par une étude systématique de l'atome le plus simple, l'hydrogène pour lequel un traitement théorique complet est possible dans la majorité des cas.

Contrairement aux alcalins, pour lesquels l'excitation du premier niveau de résonance peut en général se faire aisément à partir de l'état fondamental de l'atome, l'excitation de la transition Lyman α de l'hydrogène est très difficile. Elle nécessite un laser VUV ($\lambda = 122 \text{ nm}$) accordable et fin spectralement. Ceci a conduit à construire un deuxième système laser semblable à celui qui avait été mis au point auparavant [CAC 86, CAC 92].

Cette expérience n'était que le début d'une opération: " Etude de l'atome d'hydrogène excité près de la limite d'ionisation dans des champs électrique et (ou) magnétique intenses ". Cependant, les problèmes de reproductibilité du signal rencontrés lors de cette expérience, et la nécessité de rajouter au dispositif expérimental un troisième étage laser accordable, fin spectralement et de forte puissance pour réaliser l'excitation sélective à trois étages de l'hydrogène, nous ont conduit à revenir à l'étude de l'atome de lithium au lieu de l'hydrogène.

Les principaux éléments rajoutés au montage pour mener cette étude sont : le four à lithium, le premier étage laser continu (à colorant ou à diode) et son système d'asservissement, le générateur de l'impulsion de champ électrique de débranchement adiabatique du champ et le système non linéaire de génération du rayonnement I.R (cellule Raman et mélange de fréquence dans un cristal d'AgGaS₂).

Un schéma d'ensemble du dispositif expérimental dans sa version la plus récente est donné sur la figure (III.1).

Les éléments de notre montage sont placés dans une enceinte à vide qui se décompose en deux parties pompées séparément.

- La partie four.
- La partie zone d'interaction et détection.

Les atomes de lithium sont préparés sous la forme d'un jet atomique formé à partir d'un four chauffé à 600°C. Ce jet traverse deux plaques planes et parallèles formant un condensateur plan et délimitant la zone d'interaction où règne un champ magnétique uniforme et statique, de direction parallèle à celle du jet et produit par deux bobines supraconductrices en position de Helmholtz. Dans cette zone les atomes du jet sont excités perpendiculairement par trois rayonnements laser. Les deux plaques de condensateur permettent l'application des champs électriques nécessaires à la préparation et à l'ionisation des états de Rydberg formés.

Les électrons ainsi obtenus sont accélérés sous une forte tension vers un détecteur à barrière de surface. L'impulsion électrique qui en résulte est traitée par un oscilloscope numérique échantillonneur couplé à un micro ordinateur.

A. Le jet atomique.

A.I. Le pompage.

Pour faire de la spectroscopie haute résolution sur jet atomique, il est bon de travailler dans les meilleures conditions possibles de vide c'est à dire vers 10^{-7} Torr (1Pa = $0,75 \cdot 10^{-2}$ Torr) ou au dessous.

La partie four de l'enceinte est maintenue dans un vide d'environ $3 \cdot 10^{-7}$ Torr par une pompe à diffusion d'huile assortie d'un piège à azote liquide. A cela on rajoute un écran percé d'un trou placé à la sortie du four, refroidi à l'azote liquide (77 K) pour piéger les particules par condensation ce qui améliore la vitesse de pompage surtout pour les molécules lourdes.

Dans la partie zone d'interaction-détection le pompage par une pompe à diffusion d'huile assurant un vide d'environ $3 \cdot 10^{-7}$ Torr ne suffit pas pour éliminer les décharges Penning sur le détecteur dues à la présence simultanée, dans cette partie de l'enceinte, de forts champs magnétiques et électriques. Pour éliminer cette difficulté expérimentale nous avons opté pour un pompage cryogénique qui assure un vide meilleur estimé dans notre cas à quelques 10^{-8} Torr.

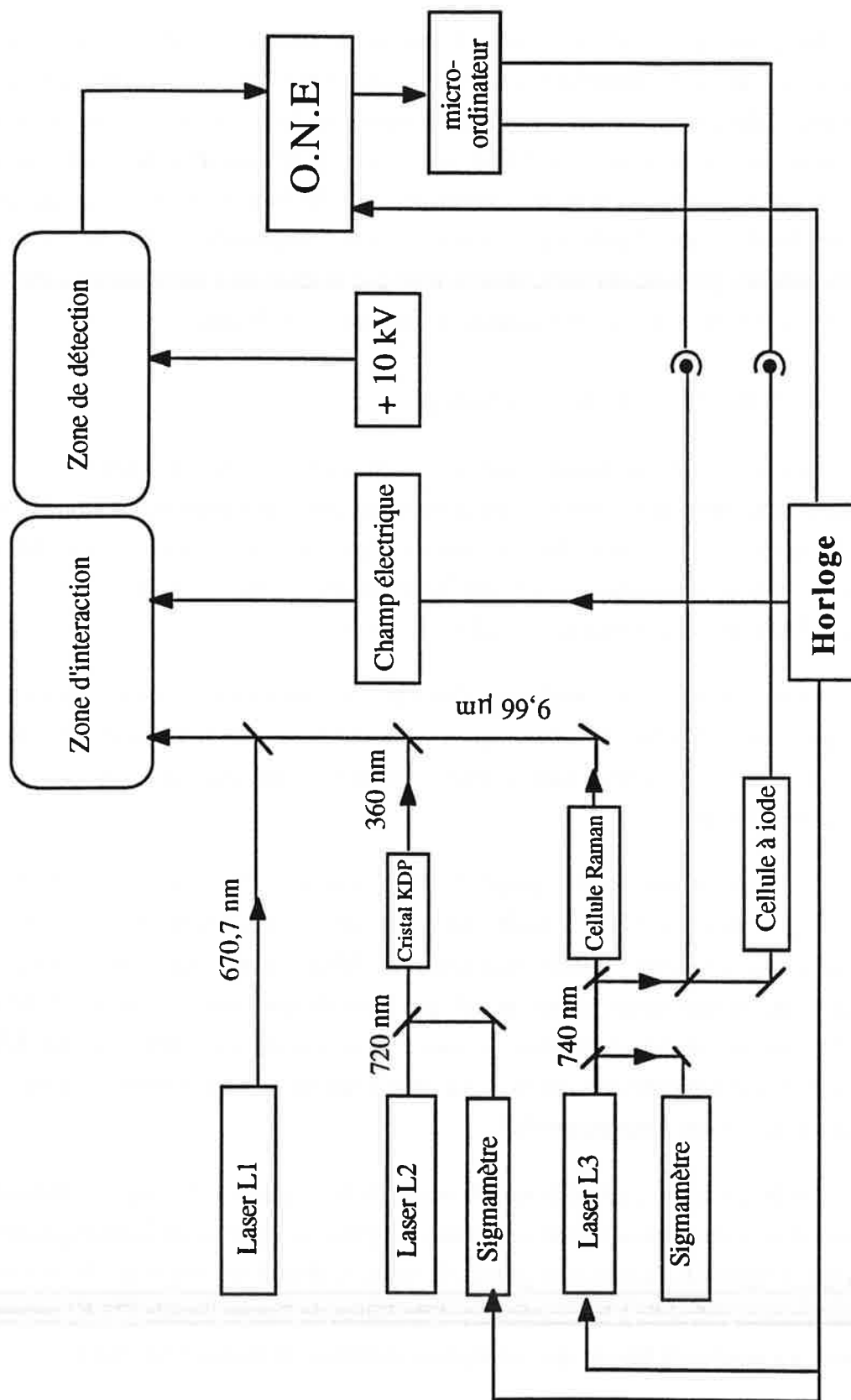


Fig (III.1) Vue d'ensemble du dispositif expérimental

Ce pompage différentiel assuré par deux groupes de pompage distincts communiquant par une vanne facilite les interventions sur l'une de ces enceintes (zone-four ou zone-interaction, détection) sans perturbation de l'autre. Cette possibilité est très intéressante surtout pour la zone d'interaction, où l'obtention d'un bon vide est très important. Cette zone étant placée à l'intérieur du cryostat isolé thermiquement est quand même très froide, et tend à piéger par condensation de la vapeur d'eau difficile à pomper; cela nécessite des précautions particulières, telle que la mise sous atmosphère d'azote de la zone d'interaction, lors des interventions à pression atmosphérique.

A.II. Production du jet atomique.

Le lithium à haute température réagit fortement avec l'alliage acier-cuivre qui constitue habituellement les fours. Il est donc nécessaire, pour produire le lithium sous forme de vapeur atomique de réaliser un four dans un matériau inerte vis à vis du lithium à la température de fonctionnement de 600°C, le molybdène par exemple. Ce matériau a cependant l'inconvénient d'être assez difficile à usiner.

Le four se présente sous forme d'un cube compact avec, au centre, une cavité cylindrique d'environ 3 cm³ de volume, pour recueillir le lithium. Un trou de diamètre $d_1 = 1\text{ mm}$ ($r_1 = 0,5\text{ mm}$) percé dans la partie supérieure du four, permet à la vapeur atomique de s'échapper.

Le four peut être chauffé jusqu'à 600°C par des enroulements spiralés de fils de tantale (de résistance 11Ω) glissés dans des tubes en céramique creux isolant électriquement, eux mêmes glissés dans des trous cylindriques percés dans la masse du four. Le contrôle des températures se fait par deux thermocouples, l'un situé dans la masse du four, l'autre près de l'orifice de sortie, au niveau de la vapeur atomique. L'une de ces mesures est utilisée dans un système de régulation de température qui permet de maintenir le four à une température fixe.

Un écran mobile, placé devant la sortie du four, permet de couper à volonté le jet. A une dizaine de centimètres de cet écran, on a placé un système de deux diaphragmes D_1 et D_2 (cf figure III.2) en cuivre percés de trous de diamètres respectifs 10 et 4 mm. Ces diaphragmes refroidis à la température d'ébullition de l'azote liquide (77 K) servent à condenser les atomes de lithium qui n'ont pas la direction de vitesse convenable.

Au niveau de la zone d'interaction située à $D = 40\text{cm}$ du four, le jet a une dimension trop importante et la collimation est assurée par la première plaque de condensateur en cuivre de cette zone percée d'un trou de diamètre $d_2 \approx 2\text{mm}$ ($r_1 = 1\text{ mm}$). La valeur de collimation obtenue est donnée par l'expression suivante :

$$C = \frac{D}{r_1 + r_2} \approx 300$$

Ceci signifie que la direction de la vitesse de l'atome est dans un cône de demi angle $\alpha = 1/300\text{ rad}$.

La loi de distribution dans un jet issu d'un gaz est donnée dans la référence [VIA82]:

$$F(v) = \frac{2v^3}{4\alpha} e^{-\frac{v^2}{\alpha^2}} \quad \text{avec: } \alpha = \sqrt{\frac{2RT}{M}}$$

α représente la vitesse la plus probable de la vapeur.

La vitesse moyenne des atomes dans le jet est donnée par:

$$\bar{v} = \int v F(v) dv = \sqrt{\frac{9\pi RT}{8M}} \approx 1915\text{ m/s}$$

où R est la constante des gaz parfaits ($R = 8,32$) et M la masse atomique de l'isotope 7 du lithium ($M = 7\text{g}$)

L'intensité du jet (c'est à dire le nombre de particules qui à la distance D du trou s ($s = \pi r_1^2$) du four, frappent dans la direction de la normale à la paroi, une cible de 1cm^2 de surface) est donnée dans [BRU68]:

$$I = 1,11 \cdot 10^{22} \frac{\text{s}}{\text{D}^2} \frac{P}{\sqrt{MT}} \text{ atomes/cm}^2\text{sec}$$

où: P est la pression de vapeur saturante du lithium exprimée en torr ($P = 0,03\text{ mm de Hg}$), M est en g. Avec les données de notre expérience: $I = 2,09 \cdot 10^{13}$ atomes/cm² seconde.

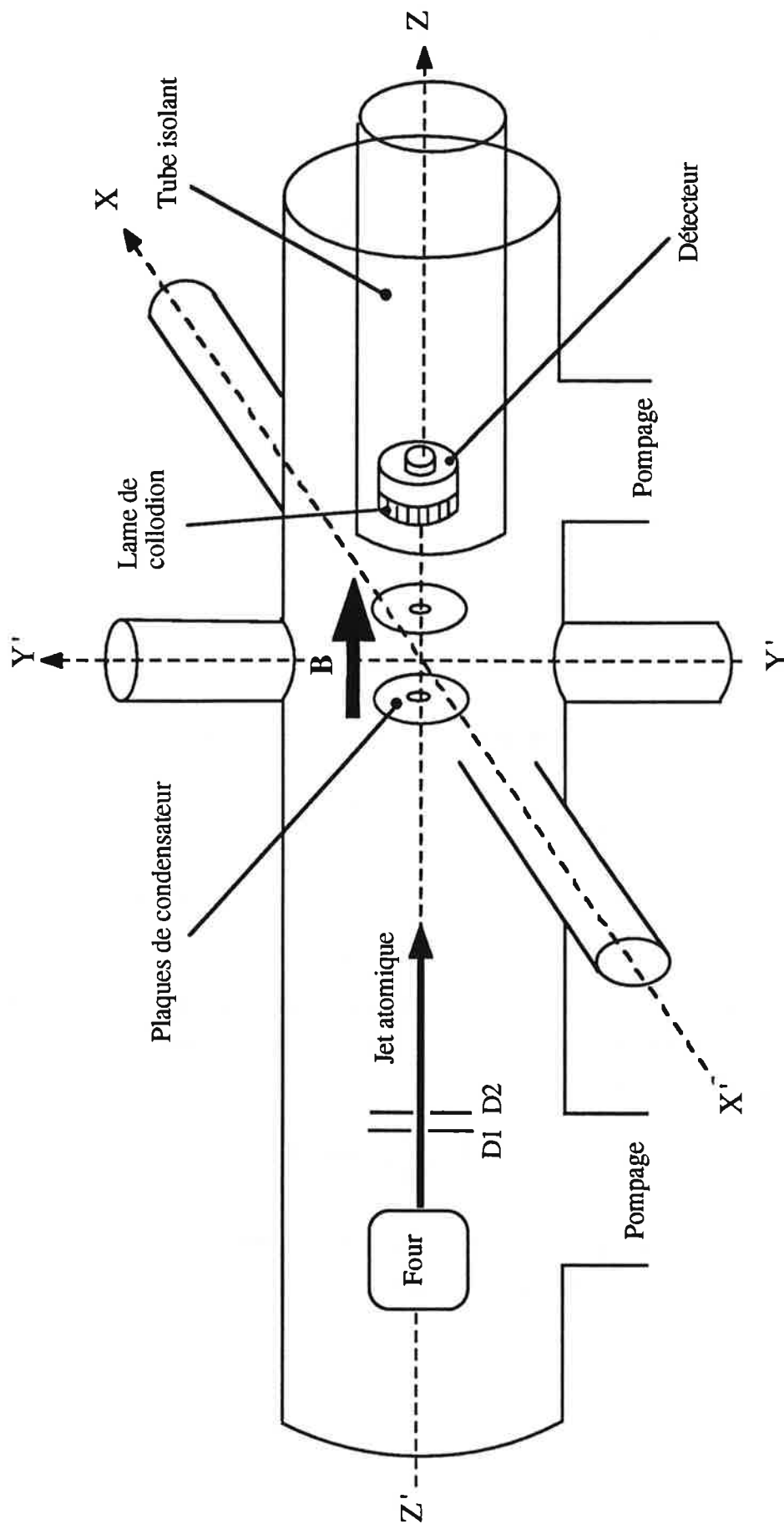


Fig (III.2) Géométrie des zones four et interaction-détection

La densité n d'atomes dans le jet est donnée par:

$$n = \frac{I}{V} \approx 11 \cdot 10^8 \text{ atomes/cm}^3$$

B. Zone d'interaction.

C'est la zone où le jet atomique subit l'interaction avec les rayonnements laser excitateurs et où règne un champ magnétique uniforme et statique. L'aimant supraconducteur constitué de deux bobines de Helmholtz, a été conçu pour que cette zone soit accessible dans les trois directions orthogonales de l'espace.

Le jet atomique parvient dans cette zone selon la direction Z'Z (cf figure III.3) parallèle à la direction du champ magnétique. Les lasers responsables de la première et de la deuxième transition du schéma d'excitation parviennent jusqu'à la zone d'interaction selon l'axe X'X en traversant une fenêtre en fluorine inclinée à l'angle de Brewster. Le laser responsable de la dernière transition y parvient selon la même direction X'X mais dans le sens inverse en traversant une fenêtre en fluorine de 3 mm d'épaisseur inclinée à l'angle de Brewster ($\theta_B =$), transparente à la longueur d'onde IR de 9 - 10 μm .

Ces lasers excitent perpendiculairement les atomes du jet atomique dans le but de supprimer l'élargissement des raies dû à l'effet Doppler du 1^{er} ordre. La zone d'interaction est délimitée par trois disques parallèles en cuivre d'épaisseur 2 mm :

- Le premier percé d'un trou de 2 mm de diamètre, est isolé électriquement. Il permet l'application de l'impulsion de champ électrique de débranchement adiabatique du champ durant la première impulsion laser ainsi que l'application de l'impulsion de tension négative, après la deuxième impulsion laser pour ioniser les atomes de Rydberg formés.

- Les deux autres percés d'un trou de 3 mm de diamètre, sont situés à environ 10 mm du premier. Ils sont reliés à la masse pour éviter les champs électriques parasites que pourrait créer la haute tension positive appliquée au détecteur. Afin d'assurer l'homogénéité des champs électriques appliqués dans la zone d'interaction, une grille métallique en cuivre recouvre le trou de la plaque de condensateur.

Le champ magnétique uniforme et statique qui règne dans la zone d'interaction est produit par un aimant supraconducteur. Cet aimant est constitué de deux bobines supraconductrices en position de Helmholtz, distantes de 15 cm et ayant chacune un

diamètre de 30 cm. Ces bobines sont plongées dans l'hélium liquide à sa température d'ébullition de 4,2 K. Le matériau qui les compose est un composite de niobium titane et de cuivre. La configuration de Helmholtz garantit une très grande homogénéité du champ, estimée par le constructeur à $\Delta B/B < 10^{-4}$ sur un volume de 1 cm³.

A sa construction en 1982 l'aimant pouvait délivrer un champ maximal de 6 T correspondant à un courant de 153 A. Une courbe d'étalonnage $B = f(I)$ fournie par le constructeur permettait d'estimer l'intensité du champ magnétique à environ 1 % près, ce qui n'est plus valable actuellement. Or la connaissance très précise du champ magnétique appliqué lors de l'enregistrement des spectres est nécessaire pour leur interprétation théorique. On a donc choisi de calibrer le champ magnétique par la méthode exposée au chapitre précédent, qui consiste à enregistrer le signal de fluorescence ($2p \rightarrow 2s$) du lithium en présence d'un champ magnétique, obtenu en balayant le laser à colorant continu du premier étage. La structure Zeeman du niveau 2p ainsi enregistrée permet de remonter à la valeur du champ magnétique avec une précision relative estimée à 10^{-3} pour une intensité de 5 T.

C. Détection.

C.I. Le détecteur.

Les électrons libérés par l'impulsion de champ électrique sont accélérés vers une diode à barrière de surface portée à une haute tension de 10 kV. Le principal intérêt de ce détecteur est son insensibilité au champ magnétique. Il peut donc être placé très près de la zone d'interaction (≈ 5 cm) pour recueillir la majeure partie des électrons libérés qui s'enroulent sur les lignes de champ magnétique très divergentes à la sortie des bobines de Helmholtz.

Ce détecteur est une jonction (Au-Si dopé n) polarisé en inverse (50 V) : lorsque des particules viennent frapper la couche d'or, des porteurs apparaissent dans la zone de déplétion et créent aux bornes de la jonction un courant proportionnel à l'énergie des particules incidentes, c'est pourquoi on accélère les électrons en appliquant une haute tension positive de 10 kV au détecteur (les électrons ont donc une énergie de 10 keV). Pour une polarisation de 50 V, le bruit du détecteur est de 17 keV, il correspond à l'arrivée de deux électrons; nous en collectons usuellement 10^3 - 10^4 avec par conséquent, un bon rapport signal sur bruit.

Cependant, cette diode présente l'inconvénient d'être un peu sensible au rayonnement des lasers. Nous avons donc minimisé les diffusions parasites des faisceaux laser dans la zone d'interaction en noircissant les différents diaphragmes.

Dans notre configuration le détecteur est dans l'axe du jet atomique; sa jonction peut être endommagée par les atomes du jet. Pour éviter la détérioration du détecteur, on place devant celui-ci une fine lame de collodion qui est perméable aux électrons accélérés et imperméable aux atomes de lithium. Sur cette lame on dépose par évaporation une couche d'or qui rend la surface conductrice et évite l'apparition de charges parasites susceptibles de dévier les électrons incidents.

La présence simultanée de forts champs magnétiques et électriques favorise la formation de décharges Penning [CAC 84]. Pour résoudre cette difficulté expérimentale nous avons amélioré au maximum le vide dans l'enceinte (qq 10^{-8} torr) par un pompage cryogénique, placé une électrode frontale très lisse et très arrondie devant le détecteur et entouré le détecteur d'un tube isolant de verre.

C.II. Traitement et acquisition du signal.

A l'arrivée d'un paquet d'électrons sur le détecteur, celui-ci intègre les signaux correspondant à chaque électron et le courant qui en résulte est proportionnel à leur nombre. A ceci s'ajoute éventuellement un signal parasite dû à l'arrivée sur le détecteur des rayonnements laser diffusés par les plaques de condensateur de la zone d'interaction.

Le signal de réponse du détecteur est ensuite amplifié par un préamplificateur d'impédance d'entrée élevée ($> 10^8 \Omega$) et de temps de montée faible (≈ 20 ns). Le signal obtenu ayant un grand temps de décroissance n'est pas directement utilisable, on le différencie par un circuit RC pour le convertir en une impulsion. L'impulsion utile a une largeur à mi hauteur d'environ 100 ns et une hauteur de 50 à 500 mV.

Pour compléter le dispositif de détection et dans le but d'exploiter au maximum les données, un système d'acquisition et de traitement des données informatisé a été mis au point. Il se compose d'un oscilloscope numérique échantillonneur (O.N.E) couplé à un micro ordinateur .

L'O.N.E GOULD BIOMATION 4500 à deux voies A et B, est muni pour chaque voie d'un échantillonneur à 100 MHz et d'un convertisseur analogique digital sur

12 bits. L'O.N.E a la possibilité de moyenner un signal répétitif à la cadence de 10 Hz. Sa synchronisation sur l'impulsion laser IR est assurée par l'horloge centrale qui commande l'ensemble du dispositif expérimental.

Le couplage entre l'O.N.E et le micro ordinateur est assuré par l'intermédiaire de deux cartes d'interface, l'une implantée dans l'O.N.E et l'autre dans le mini ordinateur, reliées par un câble G.P.I.B. L'unité centrale du mini ordinateur est reliée par bus interne à une carte d'interface de conversion analogique digital.

Le signal de calibration en nombre d'onde (spectre d'absorption de l'iode moléculaire) [GER 78] est continu, il n'est pas visualisé sur l'O.N.E mais envoyé directement sur la carte d'interface de conversion analogique du micro ordinateur.

L'ensemble ONE, micro-ordinateur assure en temps réel l'acquisition numérique des données, leur stockage et leur prétraitement aboutissant à la visualisation sur écran du spectre (signal en fonction de la fréquence) au fur et à mesure qu'il se déroule.

La première phase de l'acquisition est assurée par l'O.N.E indépendamment du micro ordinateur. L'O.N.E moyenne le signal sur 16 impulsions laser c'est à dire sur une durée de 1.6 s, durée particulièrement bien adaptée à la vitesse de balayage en fréquence du laser; il sélectionne ensuite grâce à ses curseurs un intervalle d'échantillonnage (signal utile) dont les valeurs numériques sont sommées.

La deuxième phase de l'acquisition concerne le transfert de ces données vers le micro ordinateur, leur prétraitement et leur stockage, sa durée Δt est voisine de 0.6 s. Pendant ce délai l'O.N.E reçoit et exécute un certain nombre d'ordres pour le transfert de son contenu-mémoire et sa réinitialisation, en particulier il code chaque valeur à transférer sous forme d'une chaîne d'octets.

Le micro ordinateur stocke ensuite dans sa mémoire la valeur qui lui est transmise; simultanément, il prélève la valeur du spectre de l'iode moléculaire fournie par sa carte de conversion analogique digital. Il résulte de ce processus un doublet de nombres (MES, IOD) qui sont affichés sur l'axe vertical de l'écran graphique.

Au fur et à mesure de cette acquisition on obtient le tracé en temps réel de deux histogrammes qui représentent:

- Le signal étudié.

- Le spectre d'absorption de l'iode moléculaire.

Ces données sont stockées et peuvent être traitées en temps différé, indépendamment de l'O.N.E.

D. Lasers.

Pour réaliser l'excitation de l'atome de lithium sur les niveaux de Rydberg élevés selon le schéma d'excitation présenté sur la figure (II.9) nous disposons de trois systèmes laser :

- Un système laser continu accordable.
- Deux systèmes laser à colorant à injection, monofréquences, accordables et pulsés.

Dans ce paragraphe nous décrirons successivement chacun de ces systèmes, ainsi que les processus utilisés pour convertir les longueurs d'onde rouges des rayonnements laser issus de ces systèmes, en longueur d'onde UV ou IR.

D.I. Le laser continu.

Pour exciter l'atome de lithium à partir du niveau fondamental $2s$ vers le niveau excité $2p$, il faut un rayonnement de longueur d'onde rouge à $670,7$ nm. Lors de nos expériences nous avons utilisé deux systèmes laser différents pour le générer:

D.I.1. Un laser à colorant.

Le rayonnement nécessaire est obtenu en pompant une cavité à colorant, linéaire par un laser à argon ionisé. Le colorant utilisé est du DCM (1 g est dilué dans 150 ml de BzOH et 850 ml d'éthylène glycol). La puissance atteinte en fonctionnement monomode est de 30 mW pour une puissance pompe de 1,8 W.

La cavité laser est asservie sur un étalon Fabry Pérot externe qui permet de bloquer la fréquence du mode laser et d'éviter en particulier les dérives rapides en fréquence, dues aux fluctuations du jet. La stabilisation de l'étalon en température permet aussi une bonne stabilité à long terme du mode laser.

La fréquence de ce laser est asservie sur la fluorescence $2p \rightarrow 2s$. Un système de deux lentilles placé au dessus de la zone d'interaction fait l'image de la fluorescence du jet sur l'entrée d'un photomultiplicateur, éloigné au maximum de la zone d'interaction (≈ 1 m) à cause du champ magnétique. Le photomultiplicateur est polarisé par une tension de 1,5 kV lors des expériences menées sans champ magnétique, cette polarisation est augmentée à 1,8 kV lors de l'application du champ magnétique.

Le signal de réponse du photomultiplicateur est traité électroniquement pour être utilisé dans la boucle d'asservissement de la cavité laser. Pour cela la fréquence ω_l du laser est modulée à 400Hz par une tension sinusoïdale de faible amplitude appliquée à la céramique piézo-électrique. L'intensité de la fluorescence qui dépend de l'écart de fréquence $\Delta\omega = \omega_t - \omega_l$ entre la fréquence de la transition et celle du laser se trouve modulée. Cette modulation est détectée à l'aide d'une détection synchrone, ce qui permet d'obtenir en sortie un signal proportionnel à la dérivée de la courbe $I(\Delta\omega)$. Ce signal passe par zéro et change de signe avec $\Delta\omega$, il est utilisé comme signal d'erreur dans la boucle d'asservissement: il est envoyé sur la céramique piézo-électrique pour compenser d'éventuelles dérives de la cavité et maintenir la longueur d'onde du laser asservie sur la raie de fluorescence. En présence du champ magnétique, la structure de la transition se modifie et on asservit le laser sur la composante Zeeman que l'on a choisie.

D.I.2. Un laser à diode.

C'est un laser à semi conducteur dont le milieu actif est une jonction de type p-n. Le pompage est réalisé en polarisant la jonction dans le sens de la conduction du courant. Au passage de la partie n vers la partie p, les électrons de la bande de conduction se trouvent bloqués par la barrière d'énergie et tombent dans la bande de valence pour y occuper les trous vacants, l'énergie étant sous forme de photons.

Le cristal de semi-conducteur est clivé deux fois perpendiculairement à la jonction pour former une cavité indispensable à l'oscillation laser. Le clivage s'effectuant suivant un axe cristallographique, les deux faces sont naturellement parallèles.

La réflexivité des faces est reliée au saut d'indice entre le semi-conducteur ($n = 3.5$) et l'air ($n_0 \approx 1$) par la loi de réflexion sous incidence normale:

$$R = \left[\frac{n - n_0}{n + n_0} \right]^2$$

R vaut environ 31% et en négligeant les autres sources de pertes, la finesse de la cavité est donnée par:

$$F = \pi \frac{\sqrt{R}}{1 - R} = 2.5$$

La longueur d'onde d'émission dépend de la largeur de la bande interdite donc de la composition cristalline de la zone active. Le fort gain et la faible longueur de la cavité privilégient plutôt un fonctionnement multimode et il a fallu un développement spécifique pour la réalisation d'une diode laser monomode. La balayage en fréquence s'obtient en faisant varier la température ou l'intensité du courant dans la jonction.

Dans notre expérience nous avons utilisé une diode laser commerciale en GaAlAs de type TOLD9215(s) émettant dans la gamme 660-680 nm. La technologie de cet élément étant assez nouvelle, certaines caractéristiques posent problème pour une utilisation spectroscopique.

- La largeur du mode reste assez grande ≈ 35 MHz.
- Contrairement aux diodes infrarouges, la variation combinée de la température et du courant ne permet pas d'explorer continûment la gamme de fréquences donnée par le constructeur. Il reste de nombreuses plages étroites inaccessibles à la diode laser.

Pour combler ces deux lacunes, il existe plusieurs solutions basées sur l'extrême sensibilité de la cavité à un retour optique (feedback):

- Couplage à un miroir.
- Couplage à un Fabry Pérot confocal [LAU89]
- Couplage avec un réseau [HAR91]

C'est cette dernière solution que nous avons adoptée. Après avoir rappelé quelques éléments fondamentaux de la diode en fonctionnement libre nous décrirons en détail notre dispositif que nous appelons "diode à cavité étendue".

D.I.2.a. La diode libre.

Le milieu actif est un parallélépipède de largeur $5\mu\text{m}$, de hauteur $1\mu\text{m}$ et de longueur $l = 350\mu\text{m}$. Ces dimensions impliquent un faisceau fortement diffracté avec une divergence de $\theta_{\perp} = 28^{\circ}$ dans la direction perpendiculaire à la jonction et $\theta_{\parallel} = 8^{\circ}$ dans la direction parallèle. La longueur optique de la cavité est de $L = nl = 3,5 \times 350 \cdot 10^{-6} = 1,25$ mm impliquant un écart entre modes longitudinaux de $\Delta\nu_L = c/2L = 120$ GHz. Un objectif adapté de focale 8 mm permet d'obtenir un faisceau parallèle de dimension $1,2 \times 4,8$ mm.

La diode laser est placée sur un support thermostaté par un élément Peltier, un asservissement en température étant assuré par une thermistance de contrôle placée dans un pont de Wheastone; la stabilité en température annoncée par est de $\pm 10^{-4}$ °C. L'alimentation en courant est elle aussi asservie et assure une stabilité de ± 2 μA .

Ces paramètres sont très importants car il influent directement sur la fréquence du rayonnement: la courbe de gain dépend de la température, la position des modes de la cavité dépend du courant et faiblement de la température par l'intermédiaire de l'indice $n(i, T)$.

Le constructeur donne une variation de 0.175 nm pour 1°C soit en fréquence 117 GHz / °C. Notre stabilisation en température assure donc une stabilité de ± 12 MHz. Le déplacement en fréquence induit par une variation de courant n'est pas linéaire mais on peut tout de même donner un ordre de grandeur de 100 GHz / mA soit une stabilité potentielle en fréquence d'environ 20 MHz pour 2 μA .

Expérimentalement nous cherchons à nous placer sur une transition atomique donnée ($\lambda = 670,8$ nm), il faut donc pouvoir faire varier la fréquence de la diode, si possible de manière continue. Dans les deux situations suivantes, variation de courant à température fixe et variation de température à courant fixe on observe:

- Une variation continue en fonctionnement monomode sur une plage d'environ 60 GHz.
- Un fonctionnement multimode accompagné de saut de mode principal (120 GHz).

Seulement 50% de la gamme des fréquences est ainsi couverte ce qui pose problème si la fréquence voulue se trouve dans les zones non accessibles. Par variation combinée de la température et du courant, on peut réduire de 50 % à 30 % la portion de la gamme de fréquences inaccessible mais le problème subsiste. Pour le résoudre, un dispositif nommé "diode à cavité étendue" a été mis au point basé sur un couplage à un réseau de diffraction. Toutes les fréquences deviennent accessibles et de plus la largeur spectrale est réduite de 40 MHz à quelques MHz.

D.I.2.b. La diode à cavité étendue.

Le schéma du dispositif est représenté sur la figure (III.3). Il comprend :

- La diode laser libre.
- un objectif optique de focale 8mm permettant de rendre parallèle le faisceau très divergeant à la sortie de la diode.
- Un réseau de diffraction holographique de 1800 t/mm monté sur une céramique piézoélectrique placé à 23 mm de la diode.

Le réseau est orienté pour que le 1^{er} ordre soit renvoyé sur le faisceau incident (montage Littrow). Il joue le rôle d'un miroir partiellement réfléchissant (réflexivité du réseau) et sélectif en longueur d'onde (résolution spectrale du réseau).

Ce système est composé de deux cavités imbriquées : l'une courte formée par les deux faces de la diode, la seconde étendue formée par la face arrière de la diode et le réseau.

- Choix du réseau

La formule de diffraction est donnée par la relation :

$$d (\sin\alpha + \sin\alpha') = k\lambda$$

k est l'ordre du réseau, α l'angle d'incidence, α' l'angle de diffraction, λ la longueur d'onde du rayonnement et d le pas du réseau.

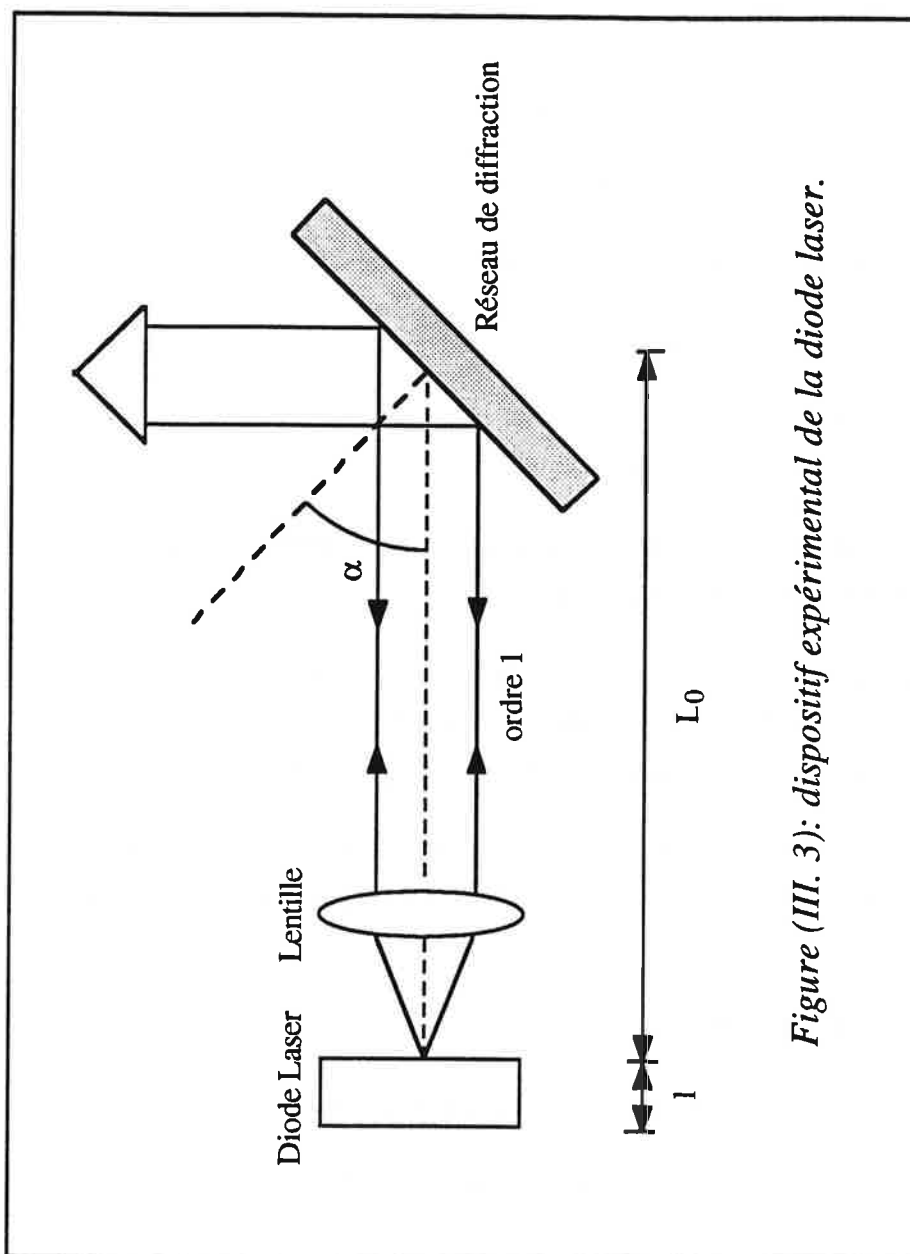


Figure (III. 3): dispositif expérimental de la diode laser.

Dans notre dispositif, nous utilisons l'ordre 1 (montage Littrow) et l'ordre 0 (réflexion spéculaire) qui sert de sortie pour la cavité. Il est intéressant (pour ne pas perdre d'énergie) de ne sortir que ces 2 ordres, ce qui implique 2 conditions :

$$\begin{aligned}\alpha = \alpha' &\Rightarrow 2 d \sin \alpha = \lambda \\ &\Rightarrow d \geq \frac{\lambda}{2}\end{aligned}$$

Pour cet angle α , l'ordre 2 se trouve à l'angle α' tel que :

$$\begin{aligned}d (\sin \alpha + \sin \alpha') &= 2 \lambda \\ \Rightarrow d \sin \alpha' &= 2 \lambda - \frac{\lambda}{2} = \frac{3 \lambda}{2}\end{aligned}$$

Pour que cette égalité soit impossible quelque soit α' il faut que $d \leq 3 \lambda/2$, d'où la double inégalité:

$$\lambda/2 \leq d \leq 3\lambda/2$$

c' est à dire $0,335 \cdot 10^{-6} \leq d \leq 10^{-6}$ m pour une longueur d'onde de 670 nm, soit un réseau dont le nombre de traits par millimètre est compris entre 1000 et 3000.

Différents essais ont été faits avec des réseaux de 1800 tr/mm et 2400 tr/mm holographiques ou gravés dont nous disposons au laboratoire. C'est surtout l'efficacité du réseau qui va guider notre choix. Dans notre cas nous voulons à la fois une réflexivité dans l'ordre 1 importante pour avoir une bonne finesse de la cavité étendue, mais aussi un pourcentage important dans l'ordre 0 qui est la voie de sortie de la cavité. 50 % dans l'ordre 1, 50 % dans l'ordre 0 est une bonne répartition qu'il faut tenter d'approcher en jouant sur :

- la nature du réseau (gravé ou holographique).
- le nombre de traits (décalage de la courbe d'efficacité vers le rouge lorsqu'on passe de 2400 tr/mm à 1800 tr/mm).
- la forme du motif élémentaire (un contraste moins important du motif diminue la réflexivité).

- la polarisation de la lumière incidente par rapport aux traits du réseau; dans notre cas la réflexivité chute pour une même longueur d'onde entre une polarisation perpendiculaire et une polarisation parallèle aux traits du réseau.

La résolution angulaire du réseau dépend du nombre N de traits éclairés:

$$\Delta\lambda/\lambda = \Delta\nu/\nu = 1/N \Rightarrow \Delta\nu = \nu/N$$

($\Delta\nu = 20$ GHz pour $\nu = 4.10^{14}$ Hz et 1 cm du réseau à 1800 traits/mm éclairé).

- Réduction de la largeur spectrale et balayage en fréquence.

Pour régler le dispositif, il faut d'abord ajuster l'objectif de manière à avoir un faisceau parallèle sur le réseau. Ce réglage est important pour obtenir un recouvrement spatial optimum entre le faisceau incident et le faisceau réfléchi. L'alignement s'opère ensuite en ajustant l'orientation du réseau.

En plaçant le courant de la diode laser au dessus du seuil d'oscillation en mode libre I_1 , on observe une surintensité quand l'alignement optique est correct. On peut alors descendre le courant d'injection et mesurer le seuil d'oscillation de la nouvelle cavité (étendue). Les courants de seuil nominaux sont environ 40 mA pour la diode libre et 32 mA pour la cavité étendue.

Simultanément, si l'on contrôle la largeur spectrale de la radiation avec un Fabry Pérot confocal d'une bonne finesse, on observe une réduction brutale de 40 MHz environ à une valeur qui n'a pas pu être mesurée mais estimée à quelque MHz. De plus des diodes (TOCHIBA 9215 (s)) plus puissantes (10 mW) étant disponibles sur le marché, nous avons pu obtenir 3,5 mW en fonctionnement en cavité étendue

La réduction de la largeur spectrale étant démontrée avec ce dispositif, il reste à trouver une procédure permettant d'atteindre une longueur d'onde donnée quelconque située dans la gamme [660 - 680 nm] évitant ainsi l'écueil des zones aveugles existant en fonctionnement libre.

Il nous faut analyser les éléments sélecteurs existants dans le système et conduisant à une valeur donnée de λ , et comment ils répondent à une variation des paramètres externes.

D.I.2.c. Éléments sélecteurs (Figure (III.4))

- (1) - courbe de gain : dépend de la composition cristalline de la zone active et de la température.
- (2) - modes de la cavité interne, la réflexivité de chaque face est d'environ 30%, la longueur optique de la cavité est $n(i,t) l$ où n est l'indice de réfraction et l la longueur du milieu actif de la diode : écart entre modes $c/2 n l \approx 120$ GHz.
- (3) - sélectivité liée à la résolution du réseau, dépend de l'angle α du réseau et du nombre de traits éclairés. (pour 1 cm $\Delta\nu = 20$ GHz)
- (4) - modes de la cavité étendue, la réflexivité du réseau est d'environ 50 %, la longueur optique est $L = L_0 + n(i,t) l$ avec $L_0 = 2,3$ cm l'écart entre modes est $c/2(L_0 + n l) \approx 6,5$ GHz.

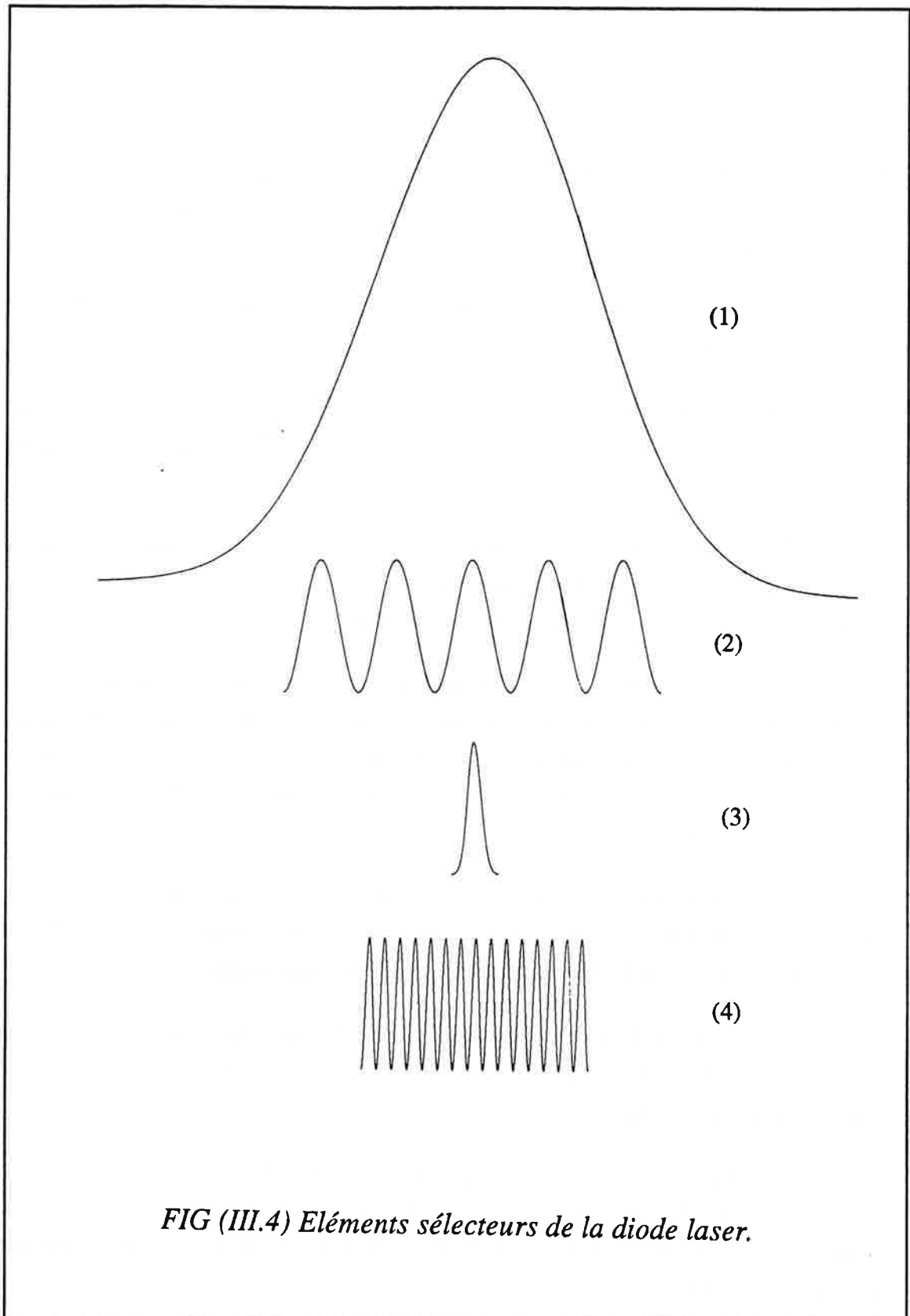
La première étape de la procédure est la recherche de la température pour laquelle la diode en fonctionnement libre se trouve proche de la longueur d'onde désirée λ . Cela assure que la courbe de gain (1) se trouve à l'optimum.

La seconde étape consiste à régler optiquement le réseau afin d'observer la surintensité correspondant au fonctionnement affiné spectralement. Il reste cependant le réglage angulaire autour d'un axe parallèle aux traits du réseau qui détermine la longueur d'onde par la relation $2d\sin\alpha = \lambda$. Nous avons évalué cette largeur spectrale (de cette fonction (3)) à 20 GHz.

En étant au seuil d'oscillation de la diode libre, on observe lorsque l'on balaye α , 4 à 5 surintensités correspondant à des sauts de longueur d'onde d'environ 0,2 nm. Cet écart est directement lié à l'écart entre modes de la cavité interne (2).

La sélectivité spectrale du réseau (3) peut donc forcer la diode à émettre sur une gamme d'environ 600 GHz autour de la longueur d'onde λ en mode libre. Cette largeur donne une idée de la courbe de gain (1).

La température et la position angulaire étant fixées, il reste à trouver le courant i et la longueur passive L_0 de la cavité étendue permettant d'atteindre la longueur d'onde λ voulue. Cette longueur L_0 peut être variée en appliquant une tension V sur la céramique piézoélectrique qui supporte le réseau.



Examinons, les deux processus élémentaires suivants: variation de i à L_0 fixé et variation de L_0 à i fixé.

α . Variation de i à L_0 fixé.

En faisant varier manuellement ou grâce à un générateur de rampes le courant d'injection, on peut contrôler la longueur d'onde, l'intensité et la largeur spectrale du rayonnement émis.

La diode laser que nous utilisons possède une mesure intégrée de la puissance émise grâce à une photodiode placée derrière la face arrière de la diode. Le courant mesuré I_m est proportionnel à la puissance de sortie et donc à la puissance lumineuse à l'intérieur du milieu actif. Cette mesure est un élément important de sécurité pour la diode laser: la diode peut être détériorée si la puissance lumineuse à l'intérieur du milieu actif dépasse la valeur limite P_{max} . I_m est la mesure la mieux adaptée pour ce contrôle, valable aussi bien en fonctionnement libre qu'en cavité étendue.

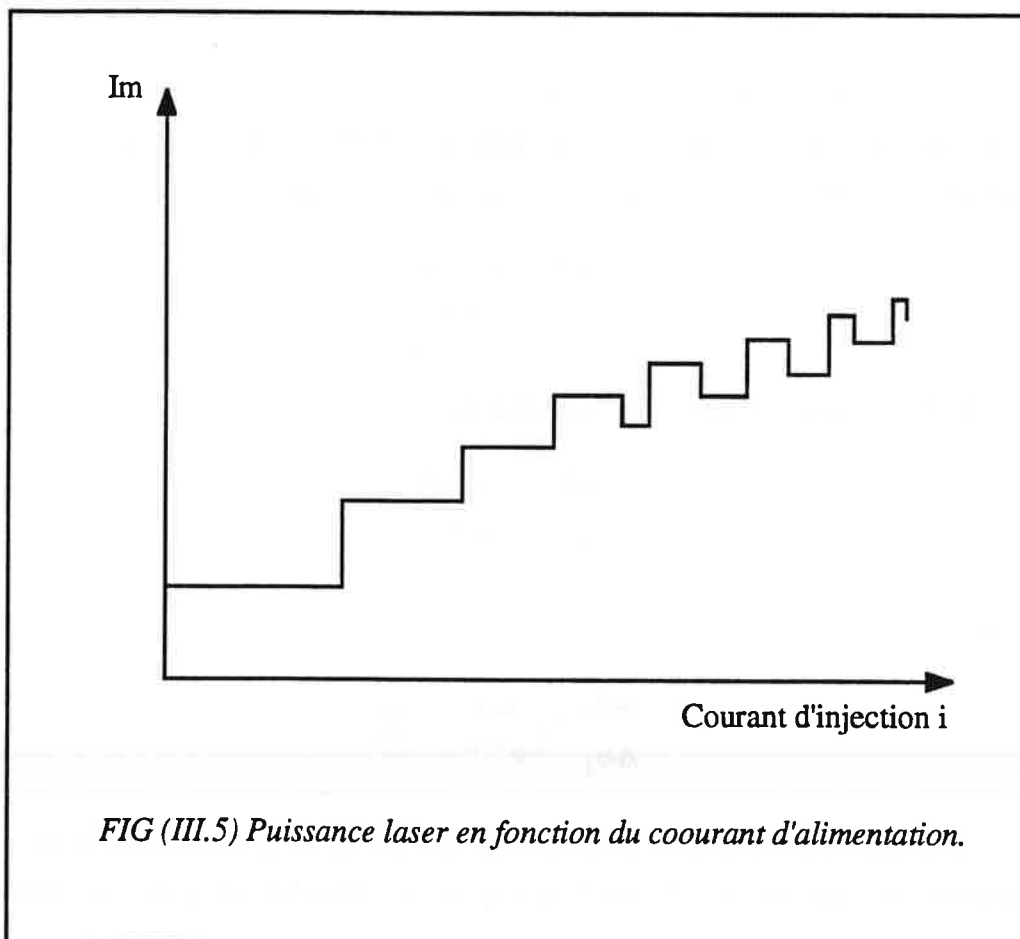


FIG (III.5) Puissance laser en fonction du courant d'alimentation.

Dans la pratique, en fonctionnement libre et à température ambiante, on monte le courant d'injection jusqu'à obtenir la puissance maximale nominale, on mesure alors I_m^{\max} que l'on ne dépassera pas quelque soit la température où le mode de fonctionnement. L'observation sur un oscilloscope donne le résultat suivant:

A faible courant, I_m monte par paliers de largeur de plus en plus faible cf figure(III.5), à plus fort courant entre deux marches s'intercalent une zone plate de plus en plus large avec un I_m plus faible.

L'observation sur un interféromètre de type Fabry-Pérot montre que les paliers plats correspondent à un fonctionnement spectralement affiné. La longueur d'onde varie d'environ 200 MHz d'un bout de palier à l'autre. Le passage à la marche supérieure s'accompagne d'un saut de mode de la cavité étendue.

Dans les zones plates la radiation possède la largeur spectrale de 40 MHz analogue au fonctionnement libre et la puissance de sortie est légèrement plus faible.

Ces observations s'expliquent ainsi:

La variation de courant entraîne une variation de l'indice n du milieu qui se répercute sur les longueurs optiques de la cavité interne nl et de la cavité étendue $L_0 + nl$. Une variation de Δn entraîne une variation d'un mode de la cavité interne de:

$$\frac{\Delta\sigma_1}{\sigma} = \frac{(\Delta n) l}{n l}$$

et une variation d'un mode de la cavité étendue de:

$$\frac{\Delta\sigma_2}{\sigma} = \frac{(\Delta n) l}{L_0 + n l}$$

de rapport:

$$\frac{\Delta\sigma_2}{\Delta\sigma_1} = \frac{n l}{L_0 + n l} = \frac{1}{55}$$

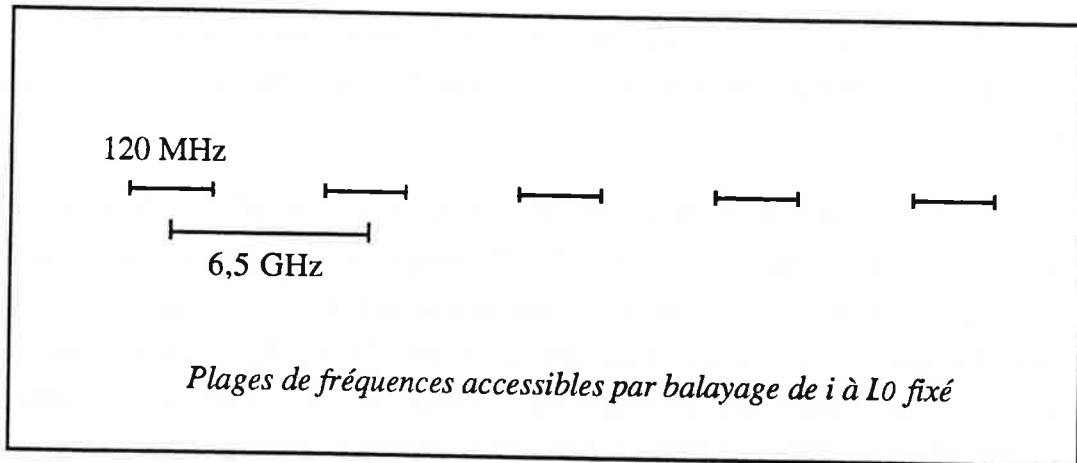
Comme nous l'avons vu précédemment le mode de la cavité interne est choisi par la position angulaire du réseau, il se déplace environ 55 fois plus vite lors d'une

variation de n que les modes de la cavité étendue. L'hypothèse la plus simple est que le système choisit le maximum absolu du produit des fonctions d'Airy des deux cavités.

A faible courant, le saut est direct d'une marche à l'autre on peut donc estimer la largeur en fréquence d'un palier à:

$$\frac{c}{2(L_0 + n l)} \times \frac{n l}{L_0 + n l} \approx 120 \text{ MHz}$$

Dans la plus favorable des situations la partie du spectre explorée se résume par le schéma suivant:



Un tel mode d'exploration semble très peu pratique pour la recherche d'une transition atomique.

β . Variation de L_0 à i fixé.

En appliquant une tension sur la céramique piézoélectrique on peut varier la longueur L_0 sur environ $0,6 \mu\text{m}$. L'observation sur le Fabry Pérot d'analyse montre une excursion possible d'environ 3 GHz en fonctionnement bimode (la largeur de ces modes étant de quelques MHz) et de l'autre un passage brutal à un fonctionnement non affiné. Si l'on continue la balayage de L_0 on repasse une seconde fois sur le même comportement.

Le courant d'injection étant fixe, l'indice n de la zone active est constant, le mode (2) de la cavité interne reste fixe. La variation de L_0 entraîne un déplacement continu des modes de la cavité étendue(4).

L'excursion $\Delta L_0 = 0,6 \mu\text{m}$ possible représente 12 GHz en fréquence soit environ 2 modes de la cavité étendue (4) (6,5 GHz). Il est donc normal d'observer 2 fois le même scénario avec d'abord le $k^{\text{ième}}$ mode puis avec le $(k+1)^{\text{ième}}$.

Le fonctionnement affiné spectralement a lieu lorsque la différence entre le mode de la cavité interne et un des modes de la cavité étendue reste inférieur à 1,5 GHz. Dans les autres situations, un fonctionnement bimode ou non affiné spectralement est observé sans que l'on puisse en fournir une explication simple.

Trouver une transition atomique de cette façon semble possible mais nécessite une systématique un peu fastidieuse: variation de L_0 à i_0 , puis variation de L_0 à $i_0 + \Delta i_0; \dots$

L'analyse des deux processus élémentaires α et β , permet d'envisager un fonctionnement beaucoup plus pratique: il suffit pendant la balayage de la céramique de faire varier légèrement le courant d'injection de manière à ce que le mode de la cavité interne et le mode de la cavité étendue restent en coïncidence. La plage de balayage est alors limitée par l'excursion de la céramique piézoélectrique à 12 GHz, mais pourrait être étendue sachant que l'élément limitant deviendrait alors la courbe de sélectivité du réseau (angle α).

Dans la pratique, la céramique piézoélectrique est alimentée par l'intermédiaire d'un ampli haute tension. On prélève simplement une partie du signal basse tension amont que l'on injecte sur l'alimentation de la diode laser et qui produit donc une variation de courant proportionnelle à la tension sur la céramique piézoélectrique. Le coefficient de proportionnalité est ajusté empiriquement.

D.I.2.d. Asservissement sur la transition 2s \rightarrow 2p.

Une fois la transition trouvée, un système d'asservissement permet de bloquer l'émission laser sur la fréquence de cette transition. Une faible modulation est appliquée sur la céramique piézoélectrique et le signal d'erreur détecté est réinjecté sur cette dernière. La principale dérive du système est la dérive thermique sur la longueur L_0 et il est normal que le signal d'erreur soit réinjecté sur la céramique.

Le courant d'injection doit rester le même puisqu'il définit le mode de la cavité interne; c'est pourquoi en position asservissement, il est nécessaire de débrancher le dispositif de réinjection de courant utile pour le balayage car en corrigeant la dérive de longueur L_0 on applique une tension différente à la céramique ce qui implique une modification nuisible du courant d'injection.

Les fréquences sans champ et avec champ magnétique de la transition $2s \rightarrow 2p$ sont décalées de 60GHz. Pour passer de l'une à l'autre on agit sur l'orientation du réseau sans toucher aux autres paramètres tels que le courant et la température.

D.II. Les systèmes lasers pulsés monomodes à injection.

Les rayonnements UV et IR requis respectivement pour les 2^{ème} et 3^{ème} transitions du schéma d'excitation présenté sur la figure (II.9) sont obtenus à partir de deux systèmes laser, monomodes et accordables en fréquence. Ces systèmes laser appelés "compulsés" sont conçus et réalisés au laboratoire Aimé Cotton [CAB 86, CAB 82].

Le principe de ces systèmes est le blocage en fréquence de l'émission d'un laser de puissance pulsé, par injection dans la cavité d'un rayonnement de longueur d'onde λ_i et de très faible largeur spectrale. Les oscillations du laser pulsé prennent naissance sur le niveau de la radiation injectée pour le mode λ_i et sur le bruit de fluorescence pour les autres modes. Le rayonnement injecté à la longueur d'onde λ_i étant beaucoup plus intense que le bruit de fluorescence à n'importe quelle autre longueur d'onde, l'oscillation laser pulsée va s'établir préférentiellement sur le mode injecté.

Ce fonctionnement nécessite un bon ajustement entre le mode de la cavité du rayonnement injecté (λ_i) et le mode de la cavité du laser pulsé (λ_L) c'est à dire un $\Delta\lambda = \lambda_L - \lambda_i$ faible. L'accord spatial et spectral de deux cavités est toujours une opération délicate. Le système original imaginé et mis au point au laboratoire, ne possède qu'une seule cavité dans laquelle on réalise une double excitation, continue et pulsée. Le rayonnement engendré par ce système peut être ensuite amplifié par des amplificateurs classiques.

La radiation pulsée qui en résulte allie deux qualités en général contradictoires : finesse spectrale du faisceau et puissance importante délivrée. Cette radiation se situe dans le domaine visible (730 nm); elle est convertie en UV (360 nm) ou en IR (9,66 μm)

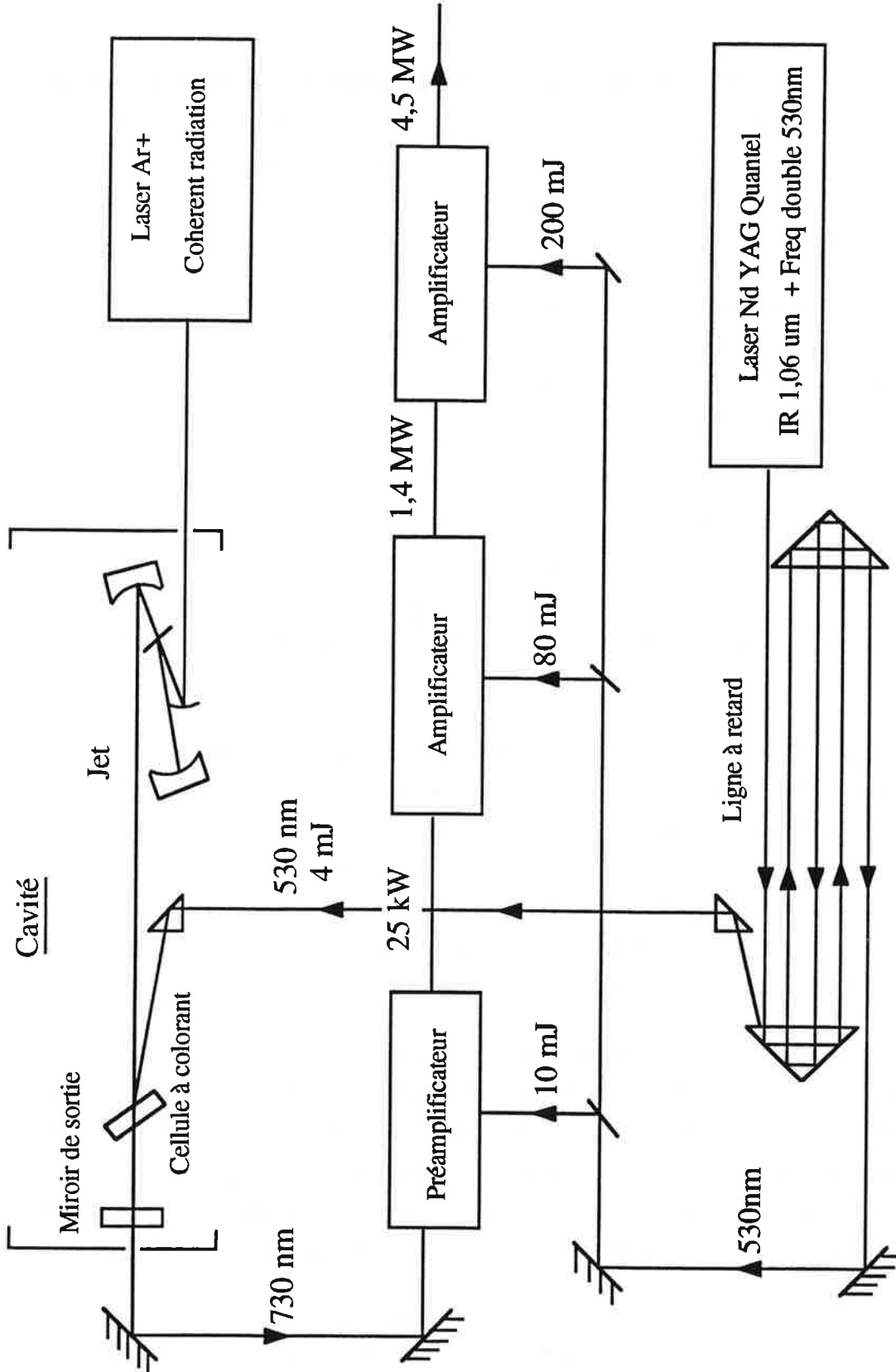


FIG (III.7) Schéma du dispositif laser

par des opérations d'optique non linéaire. Ces conversions de fréquence ne modifient pas les propriétés optiques du faisceau, il est donc théoriquement possible de réaliser une source UV ou IR pulsée, monomode, et balayable dans le domaine spectral qui nous intéresse.

Le schéma d'un de ces dispositifs laser est présenté sur la figure (III.7) et est commenté dans les paragraphes suivants .

D.II.1. Description du système.

D.II.1.a. La cavité à double excitation en anneau.

La cavité est celle d'un laser à colorant commercial dans laquelle se trouvent deux zones actives :

- Un jet de colorant excité en régime continu par un laser à argon ionisé (514,5 nm, puissance 6 Watts).

- Une cellule à colorant excitée par des impulsions lumineuses de durée voisine de 10 ns, provenant d'un laser à YAG doublé en fréquence (532 nm) pulsé à un taux de 10 Hz. Cette excitation n'utilise qu'une faible fraction de la puissance délivrée par le laser à YAG (10 mJ).

Le colorant utilisé pour les deux zones actives est la pyridine 2 (LDS 722) qui permet un bon fonctionnement dans le domaine de fréquences voulu (740 nm).

Pour sélectionner un mode continu unique de la cavité parmi les modes longitudinaux séparés de 100 MHz, on y adjoint plusieurs éléments sélectifs :

- Un filtre de Lyot à trois lames de quartz à l'incidence de Brewster, d'intervalle entre ordres de 380 GHz et de largeur spectrale de 30 GHz.

- Un étalon de Fabry Pérot mince (F.P.M) d'intervalle entre ordres de 225 GHz.

- Un étalon de Fabry Pérot épais (F.P.E) d'intervalle entre ordres de 10 GHz.

On obtient à la sortie de la cavité la superposition de la radiation continue et d'impulsions d'une puissance crête de 1 kW, de même qualités optiques et spectrales que

le continu. La largeur spectrale limitée par la durée des impulsions (10 ns) est d'environ 55 MHz (Transformée de Fourier).

D.II.1.b. Asservissement du laser à colorant.

Les instabilités au niveau du jet et les perturbations sur la cavité, d'origine mécanique ou thermique sont responsables des deux phénomènes qui peuvent faire varier la fréquence laser de façon incontrôlée :

- Les sauts de mode d'oscillation.
- Les dérives lentes ou rapides (jitter).

Pour compenser ces instabilités, le miroir de sortie de la cavité et le Fabry Péroto épais (F.P.E) sont montés sur des céramiques piézoélectriques. L'étalon mince est placé sur une monture galvanométrique.

L'asservissement du miroir de sortie de la cavité permet de compenser les dérives, et celui du F.P.E et du F.P.M a pour but de déplacer les pics de transmission de ces éléments sélecteurs de sorte qu'ils restent accordés avec le mode laser au cours d'un balayage en longueur d'onde.

Pour asservir le miroir de sortie de la cavité nous disposons d'un appareil développé au laboratoire Aimé Cotton : le sigmamètre [JUN 75]. Le principe de base de cet appareil est celui d'un interféromètre de Michelson de différence de marche 20 cm.

Une partie du faisceau laser continu est envoyé dans l'interféromètre. En sortie on obtient deux signaux:

$$I_0(1+\cos(2\pi\delta\sigma)) \text{ et } I_0(1+\sin(2\pi\delta\sigma))$$

où I_0 est proportionnel à l'intensité du faisceau laser, σ son nombre d'onde et δ la différence de marche de l'interféromètre.

Après soustraction de la composante continue et division par I_0 (traitement électronique) nous disposons de deux signaux : $\cos(2\pi\delta\sigma)$ et $\sin(2\pi\delta\sigma)$ définissant une phase

$$\phi = 2\pi\delta\sigma \text{ à } 2k\pi \text{ près (k entier).}$$

Cette phase est comparée à une phase électronique ϕ_0 , et le signal d'erreur ($\phi - \phi_0$) est réinjecté dans la boucle d'asservissement sous forme d'une tension qui agit sur la céramique piézo-électrique du miroir de sortie de la cavité. En présence de l'asservissement, la phase ϕ se bloque sur la phase ϕ_0 et annule les dérives rapides dues au Jitter. Pour annuler les dérives lentes la différence de marche de l'interféromètre du sigmamètre doit être stable. Elle est asservie par un laser HeNe stabilisé en température [CAB 86].

D.II.1.c. Balayage du laser à colorant.

Le balayage en fréquence doit se faire d'une façon linéaire et uniforme sur une grande dynamique.

La linéarité est donnée principalement par le sigmamètre. Pour réaliser un balayage la phase électronique ϕ_0 est incrémentée; grâce à l'asservissement décrit ci dessus, la phase ϕ reprend la même valeur que ϕ_0 à chaque incrément. Pour que le balayage soit linéaire il faut que les incréments $\Delta\phi$ soient tous identiques. Pour contrôler cette linéarité, nous appliquons les signaux de sortie du sigmamètre ($\sin\phi$ et $\cos\phi$) sur les entrées X et Y d'un oscilloscope, et nous obtenons un point représentatif de la phase sur un cercle. Pour s'assurer de la linéarité du balayage, le cercle doit rester parfaitement rond et centré lors de l'incrémentation pas par pas de la phase électronique ϕ_0 . Le cercle est entièrement décrit en faisant varier la phase de 2π c'est à dire pour une variation du nombre d'onde σ de $1/\delta$ ($= 0,05 \text{ cm}^{-1}$).

Au cours du balayage, les maximums de transmission du F.P.E et du F.P.M restent automatiquement centrés sur le mode de la cavité grâce à leur asservissement.

La dynamique de balayage automatique est limitée à 30 GHz (1 cm^{-1}). Un balayage sur une plus grande plage nécessite une réinitialisation du F.P.E et la modification périodique de l'orientation du filtre de Lyot; cela se fait très bien sans perturbations sur le mode laser; on peut explorer par des balayages successifs de 30 GHz une plage de plus de 900 GHz.

D.II.2. Le système d'amplification.

La radiation pulsée d'une puissance d'environ 1kW, sortant de la cavité est préamplifiée par double passage dans une cellule de colorant (pyridine 2) pompée longitudinalement par une partie du faisceau vert du YAG doublé.

L'amplification est ensuite réalisée dans un ensemble de deux cellules à circulation de colorant (pyridine 2) pompées transversalement par la majeure partie de la puissance du faisceau vert du YAG. La puissance de la radiation laser après son passage dans chacun de ces amplificateurs est donnée dans le tableau ci après.

Afin de synchroniser l'arrivée dans les amplificateurs, de l'impulsion pompe et de l'impulsion provenant du laser à colorant, on introduit sur le trajet du faisceau pompe une ligne à retard (cf figure III.7).

	Préamplificateur	1 ^{er} Amplificateur	2 ^{ème} Amplificateur
Energie de Pompage	4 mJ (~ 400 k W)	80 mJ (~ 8 MW)	200 mJ (~ 20 MW)
Energie à l'entrée	~ 10 ⁻² mJ (~ 1 kW)	~ 0,2 à 0,3 mJ (~ 20 à 30 kW)	~ 7 mJ (~ 0,7 MW)
Energie à la sortie	~ 0,2 à 0,3 mJ (~ 20 à 30 kW)	~ 7 mJ (~ 0,7 MW)	~ 50 mJ (~ 5 MW)
Gain en puissance	~ 20 à 30	~ 25 à 35	~ 7

A la sortie de ces amplificateurs, l'impulsion laser est suffisamment puissante pour pouvoir subir des interactions non linéaires afin de convertir sa longueur d'onde en une longueur d'onde UV ou IR, avec un bon rendement de puissance.

D.II.3 Doublage de fréquence : génération d'UV avec le système laser compulsé à cavité linéaire.

Pour atteindre la longueur d'onde dans l'UV (360 nm) nécessaire à l'excitation du niveau intermédiaire $n = 10$ du lithium à partir du niveau $2p$, nous doublons la fréquence du système laser à colorant (720 nm) à cavité linéaire.

Le doublage est effectué dans un cristal de KDP, les conditions d'accord de phase sont réalisées par rotation du cristal. La puissance de la radiation à 360 nm qui résulte de ce doublage est de 100 kW crête soit un taux de conversion en puissance de 10 %. Cette puissance est largement suffisante pour saturer la transition.

Le faisceau laser pompe possède une largeur spectrale d'environ 50 MHz, limitée surtout par la durée des impulsions (≈ 10 ns). Le faisceau à la fréquence doublée possède donc une largeur d'environ 100 MHz.

E. L'horloge centrale.

La partie centrale de notre dispositif expérimental est l'horloge commune aux deux lasers à YAG. Elle commande le déclenchement des impulsions laser, des impulsions de champ électrique et de l'O.N.E.

Cette horloge a été conçue lors des expériences menées sur l'atome d'hydrogène qui nécessitaient une synchronisation des deux étages laser à mieux que $\Delta t \approx 2$ ns, correspondant à la durée de vie du niveau $2p$ de l'hydrogène [CAB 86]. Nous bénéficions de cette précision dans l'expérience actuelle qui nécessite une bonne stabilité à long terme du retard des impulsions laser lors du déclenchement de l'impulsion de champ électrique (cf figure II.16) au chapitre II (séquence temporelle de l'impulsion de champ électrique de D.A.C).

Le déclenchement des deux lasers à YAG avec une aussi bonne précision n'est pas aisé à cause des parasites électromagnétiques rayonnés par la haute tension de déclenchement des cellules Pockels ouvrant la cavité. La liaison par câbles coaxiaux entre l'horloge commune et les cellules de Pockels trop sensible aux parasites, est remplacée par des liaisons par fibres optiques.

F. Génération d'IR lointain .

Pour atteindre les niveaux de Rydberg très élevés à partir du niveau $n = 10$, nous avons besoin d'un étage laser dont la longueur d'onde est d'environ $10 \mu\text{m}$, continûment accordable sur une plage de fréquences d'environ 100 cm^{-1} . Les lasers à CO_2 et les diodes laser sont capables de fournir un rayonnement d'une telle longueur d'onde, mais ce rayonnement n'est accordable en fréquence que dans un domaine très restreint.

Pour obtenir un tel rayonnement on peut avoir recours aux interactions non linéaires d'un rayonnement laser intense cohérent et accordable dans les cristaux, les liquides ou les gaz. La somme ou la différence de fréquences, l'amplification paramétrique, la diffusion Raman stimulée sont des exemples de tels processus optiques non linéaires. Lors de nos expériences nous avons utilisé deux de ces processus :

- La diffusion Raman stimulée dans l'hydrogène.
- Le mélange de fréquences dans un cristal de AgGaS_2 .

Dans la suite de ce paragraphe on exposera plus en détail le principe de chacun de ces deux processus ainsi que le dispositif expérimental mis en place pour sa réalisation.

F.I. Par effet Raman.

F.I.1. Principe.

L'effet Raman est basé sur l'excitation non résonnante d'un système matériel par un laser pompe de fréquence ω_L , cet effet se traduit par l'annihilation d'un photon exciteur ω_L et la création simultanée d'un photon Stokes ω_{S1} . Parallèlement le système matériel passe de l'état $|a\rangle$ à l'état $|b\rangle$ d'écart d'énergie $\hbar\omega_{ab}$, on a :

$$\omega_{S1} = \omega_L - \omega_{ab}.$$

L'onde Stokes générée peut interagir à son tour avec l'onde pompe par un mélange de fréquences, pour générer une onde anti-Stokes ω_{AS1} qui correspond à l'annihilation d'un photon exciteur ω_L et au passage du système matériel de l'état $|b\rangle$ à l'état $|a\rangle$:

$$\omega_{AS1} = 2\omega_L - \omega_{S1} = \omega_L + \omega_{ab}.$$

Ces processus peuvent se répéter pour générer des ondes Stokes et anti-Stokes d'ordre supérieur.

Dans la suite on adoptera les notations suivantes [SHE 84] :

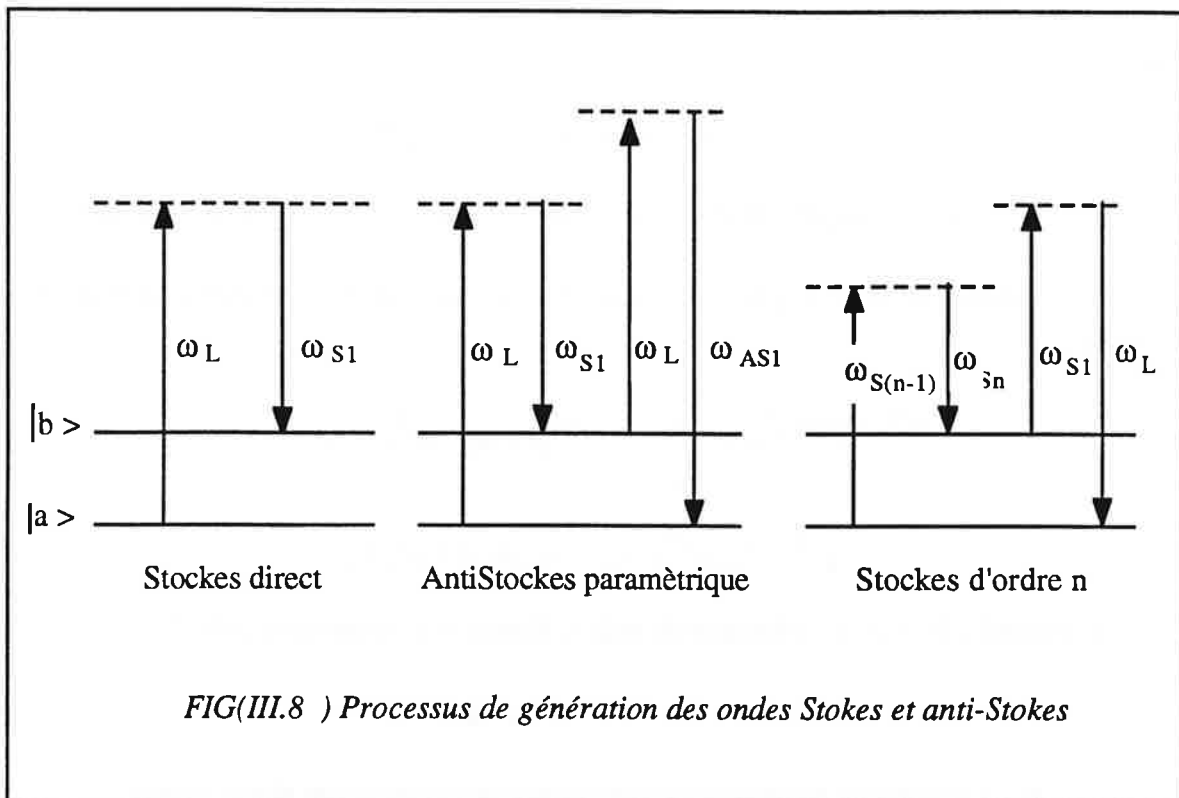
ω_{S_n} est la fréquence du $n^{\text{ème}}$ Stokes :

$$\omega_{S_n} = \omega_L - n\omega_{ab}$$

ω_{AS_n} est la fréquence du $n^{\text{ème}}$ anti Stokes :

$$\omega_{AS_n} = \omega_L + n\omega_{ab}$$

Les processus de génération des 1ers Stokes et anti Stokes, et du $n^{\text{ème}}$ Stokes sont résumés sur la figures (III.8) suivante:



Comme le décalage Raman ω_{ab} est fixe, si on fait varier ω_L on obtient une nouvelle source de rayonnement laser de fréquence accordable dans l'IR pour les ondes Stokes ou dans l'UV pour les ondes anti Stokes.

Dans notre cas on s'intéressera plutôt à la génération d'IR en utilisant comme onde pompe le rayonnement à la longueur d'onde rouge généré par le laser à injection en anneau. On étudiera plus exactement le 3^{ème} Stokes généré par ce rayonnement dans le gaz d'hydrogène, puisque sa longueur d'onde correspond à celle requise pour le 3^{ème} étage laser.

F.I.2. Gain Raman (exemple du premier Stokes).

On adoptera dans la suite les notations utilisées dans la référence [FLY 75 p21] qui utilise le système C.G.S dans lequel $4\pi\epsilon_0 = 1$.

La polarisation non linéaire du 3^{ème} ordre à la fréquence du premier Stokes [SHE 84] s'écrit:

$$\mathbf{P}(\omega_{S1}, \mathbf{r}) = \chi^{(3)}(\omega_L, -\omega_L, \omega_{S1}) : \mathbf{E}_L(\omega_L, \mathbf{r}) \mathbf{E}_L^*(\omega_L, \mathbf{r}) \mathbf{E}_{S1}(\omega_{S1}, \mathbf{r})$$

Avec:

$$\mathbf{E}_i(\omega_i, \mathbf{r}) = \hat{\mathbf{e}}_i A_i(\omega_i, \mathbf{r}) \exp(i\mathbf{k}_i \cdot \mathbf{r})$$

$\chi^{(3)}$ est la susceptibilité non linéaire du 3^{ème} ordre. C'est un tenseur de rang 4.

L'équation de propagation de l'onde Stokes déduite des équations de Maxwell s'écrit :

$$\frac{\partial A_{S1}(\omega_{S1}, z)}{\partial z} = \frac{4\pi^2}{n_{S1} \lambda_{S1}} \chi^{(3)} |A_L(\omega_L, z)|^2 A_{S1}(\omega_{S1}, z)$$

$$\chi^{(3)} = \hat{\mathbf{e}}_{S1} \cdot \chi^{(3)}(\omega_L, -\omega_L, \omega_{S1}) : \hat{\mathbf{e}}_L \hat{\mathbf{e}}_L \hat{\mathbf{e}}_{S1}$$

n_i correspond à l'indice de réfraction du milieu Raman à la longueur d'onde λ_i .

$$\Delta \mathbf{k} = (\mathbf{k}_L - \mathbf{k}_L + \mathbf{k}_{S1}) - \mathbf{k}_{S1} = 0$$

Il y a adaptation de phase automatique puisque le terme de phase est nul.

Dans le cadre de l'approximation paramétrique qui consiste à supposer que l'intensité du faisceau laser pompe est très faiblement atténué durant le processus la solution de l'équation de propagation est:

$$A_{S_1}(z) = A_{S_0}(0) \exp(gz)$$

$$g = \frac{4\pi^2}{n_{S_1} \lambda_{S_1}} \chi^{(3)} |A_L|^2$$

On notera par la suite I_L et I_{S_1} respectivement les intensités des faisceaux laser et Stokes, qui sont donnés dans le système C.G.S par les relations suivantes.

$$I_L = \frac{c n_L}{2\pi} |A_L|^2$$

$$I_{S_1} = \frac{c n_{S_1}}{2\pi} |A_{S_1}|^2$$

$$I_{S_1}(z) = I_{S_1}(0) \exp(Gz)$$

$$G = 2g = \frac{8\pi^2}{n_{S_1} \lambda_{S_1}} \chi^{(3)} |A_L|^2$$

G est appelé le gain Raman.

On montre [RAB75] qu'à la résonance exacte à deux photons la susceptibilité non linéaire $\chi^{(3)}$ est proportionnelle à :

$$\frac{N_0 (\rho_{aa}^{(0)} - \rho_{bb}^{(0)}) T_{ab}}{\hbar}$$

N_0 est la densité du milieu Raman.

$(\rho_{aa}^{(0)} - \rho_{bb}^{(0)})$ est la différence de population entre les états $|a\rangle$ et $|b\rangle$ de la transition Raman.

T_{ab} est l'inverse de la largeur de la transition.

Le gain Raman étant proportionnel à l'inverse de la longueur d'onde, il est plus faible pour la génération de longueurs d'onde IR.

Dans notre cas le milieu Raman utilisé est l'hydrogène moléculaire qui présente le plus grand décalage vibrationnel Raman de $4155,29 \text{ cm}^{-1}$ correspondant à la transition moléculaire, vibrationnelle pure Q ($v=0 \ J=1 \rightarrow v=1 \ J=1$).

Le gain Raman étant proportionnel à N_0 , on a intérêt à travailler à haute pression. Pour une pression $P = 10$ atm et une intensité laser pompe de 1 MW/cm^2 , le gain Raman de l'hydrogène est estimé à $1,5 \cdot 10^{-3} \text{ cm}^{-1}$ [SHE 84].

Cependant le gain Raman n'augmente pas indéfiniment avec la pression du gaz, puisque quand la pression augmente, l'élargissement collisionnel de la raie de transition devient important, jusqu'à être supérieur à l'élargissement Doppler. Ceci a tendance à baisser le gain car il est proportionnel à T_{ab} : il y a alors saturation. Cette saturation se produit vers $P = 15$ atm dans le cas de l'hydrogène.

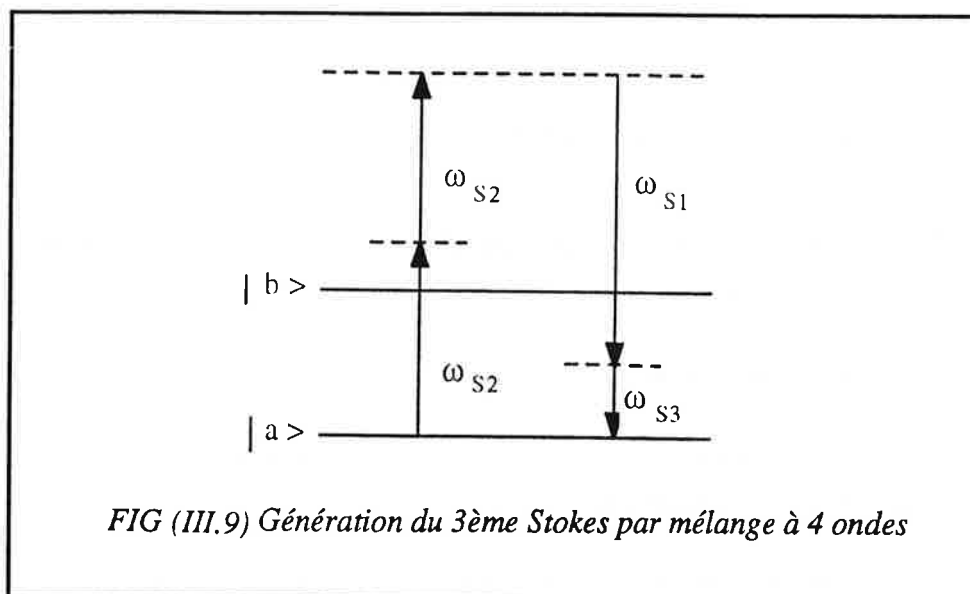
Dans le paragraphe suivant on s'intéresse à la génération du 3^{ème} Stokes.

F.I.3. Génération du 3^{ème} Stokes: mélange à quatre ondes.

Le mélange des ondes Stokes des 1^{er} et 2^{ème} ordres est l'un des processus les plus efficaces pour la génération de l'onde Stokes du 3^{ème} ordre [FLY 75, HAR 79]:

$$\omega_{S3} = 2\omega_{S2} - \omega_{S1} = \omega_L - 3\omega_{ab}$$

Le processus est schématisé sur la figure (III.9) ci dessous:



La polarisation non linéaire du 3^{ème} ordre à la fréquence ω_{S3} s'écrit :

$$P(\omega_{S3}) = \chi^{(3)}(\omega_{S2}, \omega_{S2}, -\omega_{S1}) : E_{S1}^*(\omega_{S1}, \mathbf{r}) E_{S2}(\omega_{S2}, \mathbf{r}) E_{S2}(\omega_{S2}, \mathbf{r})$$

L'équation de propagation de la 3^{ème} onde Stokes s'écrit :

$$\frac{\partial A_{S3}(\omega_{S3}, z)}{\partial z} = \frac{4\pi^2}{n_{S3} \lambda_{S3}} \chi^{(3)} |A_{S2}(\omega_{S2}, z)|^2 A_{S1}(\omega_{S1}, z) \exp(i\Delta k z)$$

$$\chi^{(3)} = \hat{e}_{S3} \chi^{(3)}(\omega_{S2}, \omega_{S2}, -\omega_{S1}) : \hat{e}_{S1} \hat{e}_{S2} \hat{e}_{S2}$$

$$\Delta k = (k_{S3} - 2k_{S2} + k_{S1}) = \frac{1}{c} (n_{S3}\omega_{S3} - 2n_{S2}\omega_{S2} + n_{S1}\omega_{S1}) \mathbf{u}_z$$

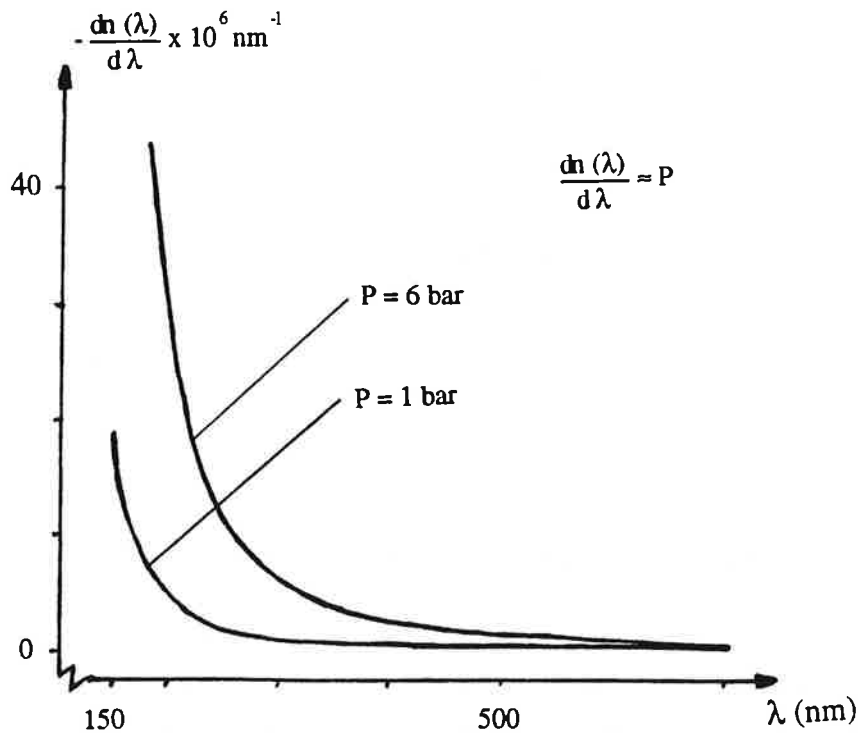
Dans un milieu dispersif $n_{S3} \neq n_{S2} \neq n_{S1}$ et donc l'accord de phase n'est pas automatique. On définit alors la longueur de cohérence l_c tel que: $l_c = \pi / \Delta k$; c'est une mesure de la longueur maximale utile pour la génération de la 3^{ème} onde Stokes [FLY75].

Dans le cadre de l'approximation paramétrique qui consiste à supposer que l'intensité de l'onde pompe n'est pas atténuée durant le processus l'intensité de l'onde Stokes engendrée par ce processus à la fréquence ω_{S3} est donné par [FLY 75] :

$$I(\omega_{S3}) = \frac{2^8 \pi^4}{c^2} \left(\frac{l_c}{\lambda_{S3}}\right) |\chi^{(3)}|^2 I(\omega_{S1}) I^2(\omega_{S2})$$

$I(\omega_{S2})$ et $I(\omega_{S1})$ étant les intensités des ondes Stokes aux fréquences ω_{S2} et ω_{S1} ; elles dépendent fortement du gain Raman. L'intensité du 3^{ème} Stokes est une fonction cubique de l'intensité de l'onde pompe [HAR 79].

Dans le cas de l'hydrogène, la dispersion dans l'IR est faible [DUC 76] comme le montre la figure ci-apès, où les courbes de dispersion de l'hydrogène en fonction de la longueur d'onde sont données pour deux pressions différentes. [WIL 79] Cette propriété permet une bonne adaptation de phase des ondes Stokes ($\Delta k \approx 0$) et donc une grande longueur de cohérence l_c de ces ondes. Ceci assure de bonnes conditions pour l'obtention d'une intensité raisonnable sur le 3^{ème} Stokes.



Dispersion dans H_2 en fonction de la longueur d'onde

F.I.4. Application expérimentale.

F.I.1.a. Description détaillée de la cellule Raman.

Un schéma de principe du dispositif expérimental est donné sur la figure (III.10). La cellule Raman est constituée d'un tube en inox de 28 mm de diamètre intérieur reliant deux blocs massifs servant à monter les fenêtres d'entrée et de sortie de la cellule. La fenêtre d'entrée montée à l'angle de Brewster ($i_B = 56,5^\circ$) est en verre ($n = 1,51$) ; la fenêtre de sortie est en ZnSe dont la courbe de transmission est donnée sur la figure (III.11).

A l'intérieur de la cellule on place un capillaire en silice de 70 cm de longueur et de 0,8 mm de diamètre intérieur. Afin de récupérer une éventuelle flexion du capillaire, la cellule Raman est montée sur trois supports x-y réglables. Cette cellule est pompée par une pompe primaire, puis remplie d'hydrogène moléculaire à une pression de 15 bars ($1,5 \cdot 10^6 \text{ Pa}$).

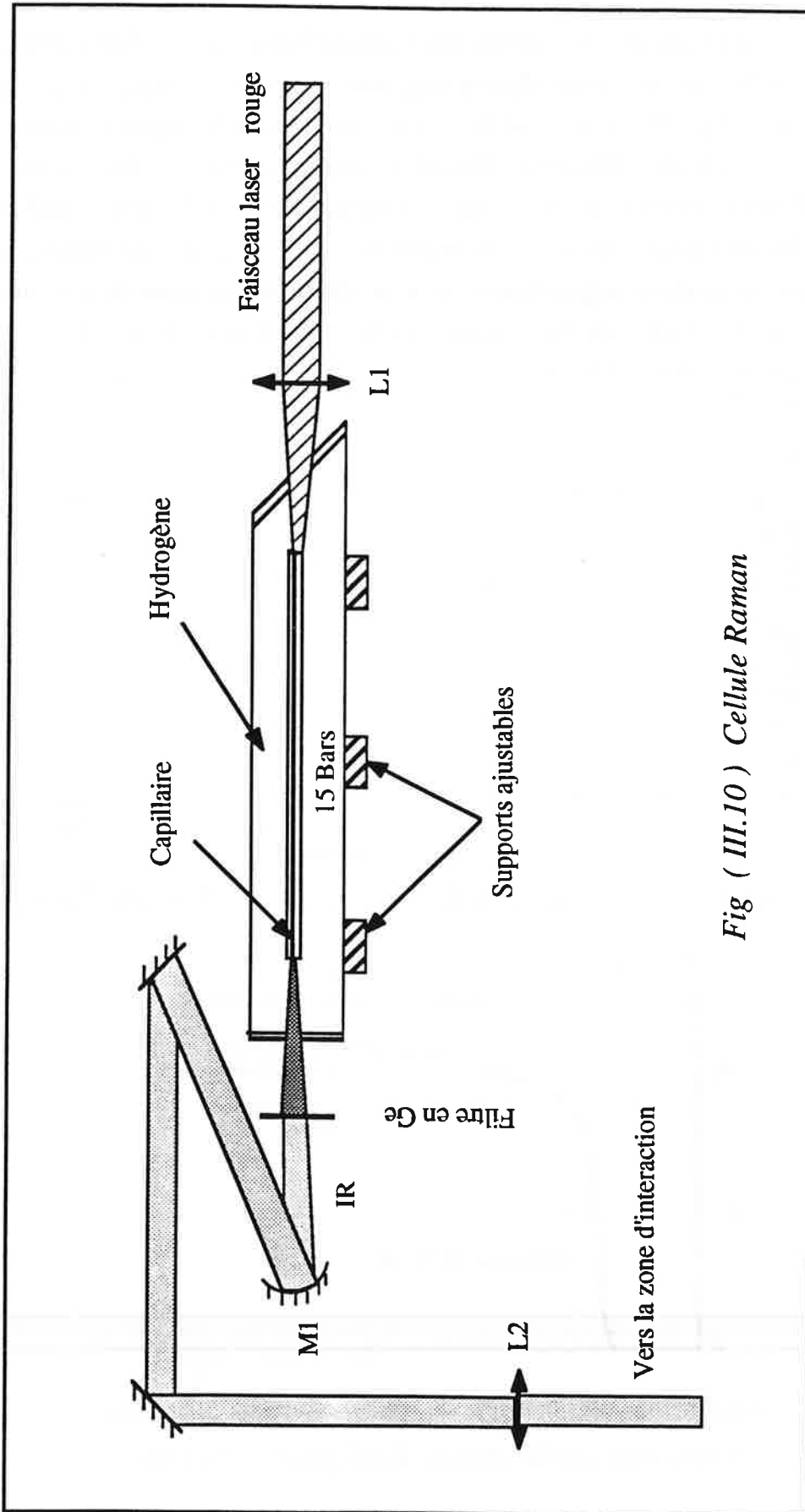
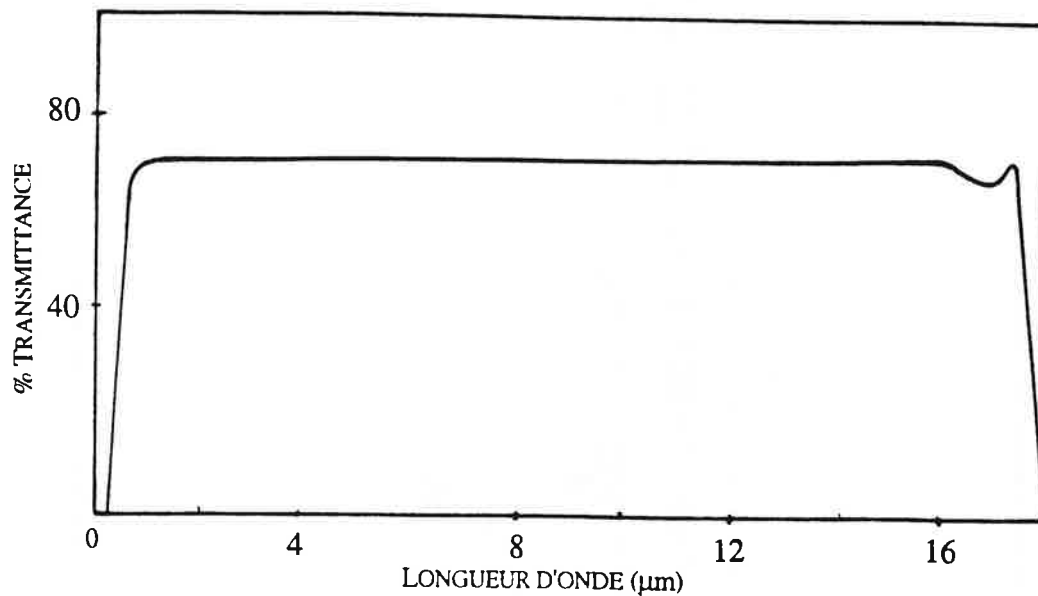
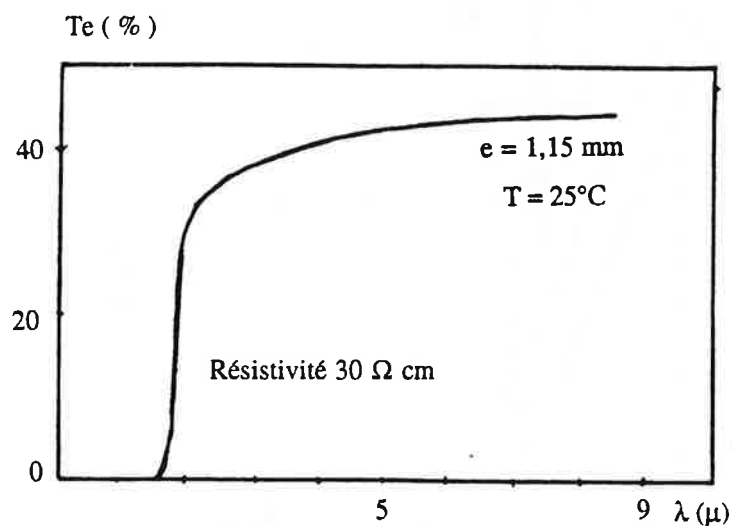


Fig (III.10) Cellule Raman

Un système de deux miroirs placés devant l'entrée de la cellule permet d'aligner le faisceau laser rouge continu dans le capillaire, et une lentille permet sa focalisation à l'entrée de ce capillaire. A la sortie de la cellule on place un filtre en germanium de 3 mm d'épaisseur traité anti reflet qui ne permet le passage vers la zone d'interaction que que des radiations dont la longueur d'onde est supérieure à $7 \mu\text{m}$; Le miroir noté M1 sur la figure (III.10) est concave de rayon de courbure 1 m, il permet de rendre parallèle le faisceau laser IR très divergent à la sortie de la cellule Raman, avant de le focaliser sur le jet atomique par une lentille en ZnSe placée à l'entrée de la zone d'interaction.



FIG(III.11) Transmittance du ZnSe en fonction de la longueur d'onde



FIG(III.12) Variation du facteur de transmission externe du germanium avec la longueur d'onde pour $e = 1,15 \text{ mm}$

F.I.1.b. Intérêt du capillaire.

Chaque onde engendrée dans le milieu Raman est diffractée de la zone de focalisation du faisceau pompe d'un angle proportionnel à sa longueur d'onde [FLY 75, WIL 79]. Cet angle de diffraction est plus grand pour les ondes Stokes; puisque leurs longueurs d'onde sont décalées vers le rouge, cette diffraction empêche les ondes d'interagir de façon efficace dans le gaz. L'introduction du capillaire dans la cellule Raman permet de compenser cette diffraction en augmentant la longueur d'interaction effective des différentes ondes. En effet ce capillaire agit de façon similaire à un guide d'onde sur les parois duquel chaque onde est successivement réfléchi, ceci lui permet de se propager en zigzag, augmentant de ce fait la durée de son passage dans le gaz, ce qui favorise une plus grande longueur d'interaction avec les autres ondes [WIL 79, RAB 76].

Les paramètres du capillaire sont choisis de façon à coupler le mode TEM_{00} du laser avec un mode de propagation du guide d'onde dans les meilleures conditions permettant une plus grande transmission du guide [DEG 73].

F.I.1.c. Résultats expérimentaux obtenus.

Notre but est d'obtenir la 3^{ème} onde Stokes avec le meilleur rendement de puissance possible. Pour cela nous avons réalisé des essais à différentes pressions de l'hydrogène. Ces essais nous ont permis d'obtenir des effets intéressants et inattendus [IMA 89].

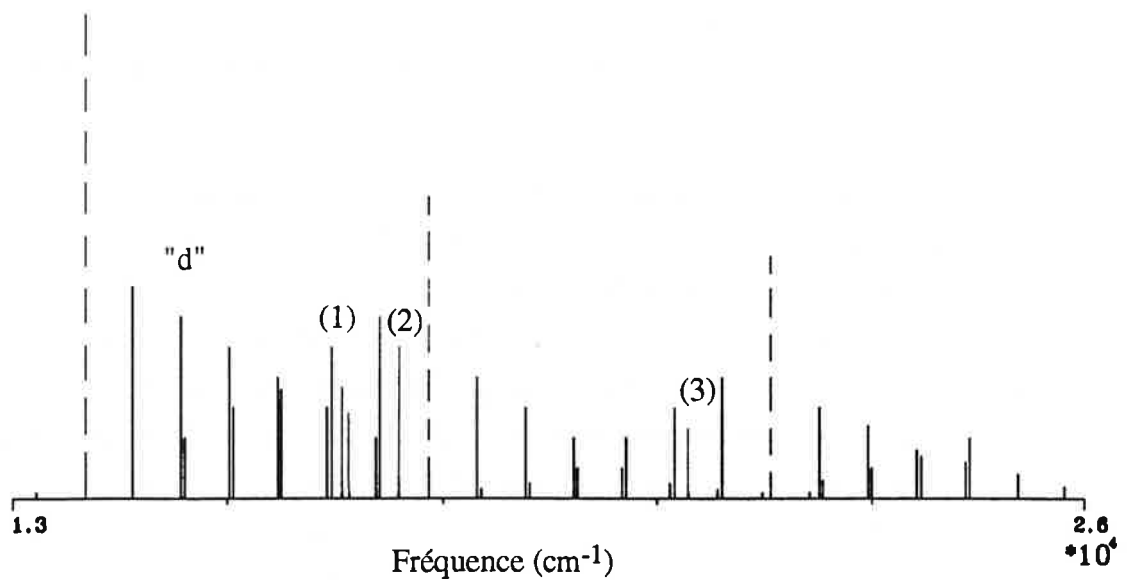
Comme, on ne disposait pas d'un détecteur d'IR lointain lors de nos premiers essais, on a tenté d'abord d'optimiser les paramètres pour avoir le meilleur rendement de puissance sur le 2^{ème} Stokes de longueur d'onde 1,85 μm , engendré par un laser pompe de longueur d'onde d'environ 730 nm. Le dispositif expérimental était le suivant : à la sortie de la cellule Raman remplie d'hydrogène à 7 bars, une lame en ZnSe atténue les radiations visibles avant leur arrivée sur une lame en germanium de 3 mm d'épaisseur, qui ne permet le passage vers un spectromètre étalonné par un laser HeNe que des radiations IR de longueurs d'onde supérieure à 1,77 μm (voir figure (III.12)). Les différents ordres du réseau sont mesurés à la sortie du spectromètre par un détecteur dont le principe est celui d'un semi conducteur à jonction (Si-Au).

Un résultat surprenant a été mis en évidence : en effet, outre l'écart entre ordres du spectromètre correspondant à la longueur d'onde du 2^{ème} Stokes, nous avons

observé un autre écart qui correspond à une longueur d'onde décalée vers l'IR de 0,22 μm par rapport à la précédente. L'écart en nombre d'ondes entre ces deux radiations est de 587cm^{-1} .

D'autres essais ont été faits par la suite à une plus faible pression (5 atm) pour laquelle l'hydrogène est moins dispersif aux faibles longueurs d'onde. Cela assure une bonne adaptation de phase des différentes ondes, ce qui favorise les processus paramétriques de génération d'anti Stokes [FLY 75]. Ainsi on génère dans la cellule Raman des ondes anti Stokes jusqu'à l'ordre 5 pour un laser pompe de 45 mJ d'énergie par impulsion, et de longueur d'onde d'environ 730 nm.

FIG (III.13) Spectre "Raman"



Les différentes radiations à la sortie de la cellule sont dispersées par un prisme et sont visualisées sur un écran. Un effet spectaculaire on voit des tâches dont la couleur couvre tout le spectre UV, visible et IR. Un résultat similaire décrit dans la référence [IMA 89] a été obtenu par un procédé expérimental utilisant deux faisceaux lasers pulsés séparés en fréquence de 590 cm^{-1} ; focalisés dans une cellule à hydrogène.

Pour une longueur d'onde fixe du laser pompe on analyse les différentes radiations sortant de la cellule, dans un spectromètre étalonné par la raie verte du mercure. Les résultats obtenus après dépouillement sont schématisés sur la figure (III.13) où une hauteur est attribuée à chaque raie selon les critères suivants:

$$I_{S_n} > I_{S_{(n+1)}} \quad I_{AS_n} > I_{AS_{(n+1)}} \quad I_{S_n} > I_{AS_n}$$

Les raies en pointillés sur cette courbe correspondent dans l'ordre croissant en fréquence respectivement, au fondamental, au 1^{er} et au 2^{ème} anti Stockes à $4155,29 \text{ cm}^{-1}$ du fondamental. Plusieurs raies sur cette figure paraissent dédoublées avec un écart estimé à 50 cm^{-1} . L'écart en fréquence de 587 cm^{-1} observé lors de notre premier essai à 7 bars se retrouve sur cette figure comme étant l'écart régulier entre deux doublets successifs. D'autres écarts en fréquences entre raies estimés à 359 cm^{-1} et à 1040 cm^{-1} sont observés sur cette figure dans les zones notées 1, 2 et 3.

Nous expliquons ces écarts par des transitions rotationnelles pures à deux photons de l'hydrogène [HER50] :

$$(\nu = 0 \ J = 0) \rightarrow (\nu = 0 \ J=2) \quad \Delta E = 354,28 \text{ cm}^{-1}$$

$$(\nu = 0 \ J = 1) \rightarrow (\nu = 0 \ J=3) \quad \Delta E = 586,6 \text{ cm}^{-1}$$

$$(\nu = 0 \ J = 3) \rightarrow (\nu = 0 \ J=5) \quad \Delta E = 1032,18 \text{ cm}^{-1}$$

ΔE étant l'énergie de la transition.

Les énergies de ces transitions coïncident avec les écarts en énergie mis en évidence. Toutes les raies du spectre s'expliquent grâce à ces transitions vibrationnelles et rotationnelles. On ne s'attendait à générer dans la cellule Raman que les ondes Stockes et anti Stockes vibrationnels, et on se rend compte que l'on génère, outre ces ondes, leur Stockes et anti-Stockes rotationnels avec un bon rendement qui s'explique probablement par les bonnes qualités spectrales et spatiales du faisceau laser pompe.

L'apparence des raies en doublets s'explique aussi en remarquant que le décalage Raman rotationnel à $586,62 \text{ cm}^{-1}$ est le septième à 49 cm^{-1} près du décalage Raman vibrationnel, ce qui correspond bien à l'écart qu'il y a entre les deux raies d'un doublet. A titre d'exemple les deux raies du doublet noté "d" sur la figure (III.13) correspondent respectivement au 3^{ème} anti-Stockes rotationnel du fondamental à $586,6 \text{ cm}^{-1}$ et au 4^{ème} Stockes rotationnel à $586,6 \text{ cm}^{-1}$ du 1^{er} anti-Stockes vibrationnel du fondamental.

Tous ces effets disparaissent à haute pression où l'hydrogène devient très dispersif aux faibles longueurs d'onde. On défavorise de ce fait les processus paramétriques de génération d'anti-Stockes au profit de la génération de Stockes d'ordres supérieurs.

Dès que le détecteur d'IR lointain a été disponible nous avons réalisé des essais sur le 3^{ème} Stockes. Le détecteur est à effet pyroélectrique; capable de détecter un rayonnement IR d'une longueur d'onde allant jusqu'à $15 \mu\text{m}$. La valeur de la pression pour laquelle le 3^{ème} Stockes atteint son énergie maximale est à environ 15 atm, valeur pour laquelle les énergies du 1^{er} et du 2^{ème} Stockes deviennent presque indépendantes de la pression par suite de la saturation du gain Raman [FLY 75].

Pour un faisceau pompe de $740,7 \text{ nm}$ de longueur d'onde, et de 45 mJ d'énergie par impulsion, l'onde Stockes du 3^{ème} ordre générée dans la cellule Raman est à la longueur d'onde de $9,66 \mu\text{m}$; nous avons mesuré avec le détecteur pyroélectrique une énergie d'environ $20 \mu\text{J}$ par coup.

F.II. Par mélange de fréquences dans un cristal.

Le deuxième processus efficace utilisé lors de nos expériences pour la génération de l'I.R lointain est le mélange de fréquences dans un cristal d'AgGaS₂ uniaxe, anisotrope et négatif, ce qui signifie que:

$$n_e(\omega) < n_o(\omega)$$

$n_e(\omega)$ et $n_o(\omega)$ sont respectivement l'indice extraordinaire et ordinaire du cristal pour la fréquence ω .

Les faces d'entrée et de sortie du cristal sont respectivement traitées anti-reflet pour le rouge et pour l'IR.

Le mélange de fréquences se fait entre les deux ondes laser rouges k_1 et k_2 (// à Oz) issues des deux systèmes laser pulsés monomodes et accordables, décrits dans le paragraphe (B.1.a) de ce chapitre. Pour que les deux impulsions laser arrivent simultanément sur la face d'entrée du cristal, on place sur le trajet du faisceau k_1 une ligne à retard de 33m. Les longueurs d'onde de ces deux radiations sont respectivement 724nm et 673nm, ce qui permet de générer à la sortie du cristal une radiation de longueur d'onde 9.6mm obtenue par différence de fréquences des deux radiations fondamentales. L'accord de phase dans le cristal est réalisé pour la condition suivante:

$$k_2 - k_1 = k_3$$

Les faisceaux étant colinéaires, cette condition se réécrit comme suit:

$$n_3 \omega_3 = n_2 \omega_2 - n_1 \omega_1$$

n_i étant l'indice de réfraction du cristal à la fréquence ω_i . Expérimentalement l'accord de phase est obtenu par rotation du cristal autour de l'axe Oz.

Le cristal est taillé 45°Y ce qui signifie que son axe optique est à 45° des axes Ox et Oy. L'accord de phase possible dans ce cristal est donc de type II [KAT 84] c'est à dire que les ondes à l'entrée du cristal doivent être de polarisations différentes, schématiquement:

$$o + e \rightarrow o \text{ ou } e$$

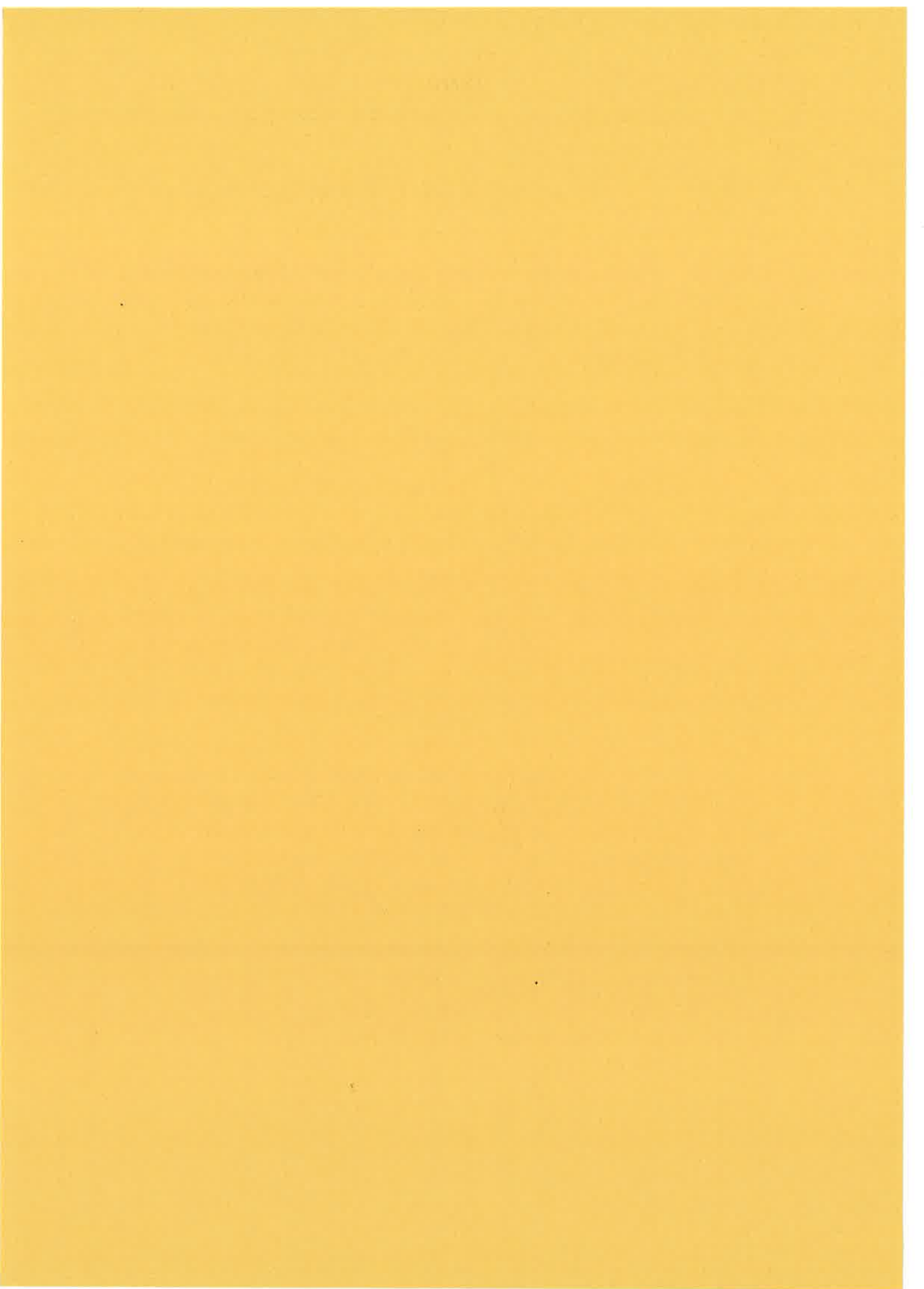
ou o et e signifient ordinaire et extraordinaire.

Pour que ce type d'accord de phase soit possible dans le cristal, des considérations simples nous permettent de déduire que la polarisation de l'onde k_1 doit être ordinaire et celle de k_2 extraordinaire. A la sortie du cristal l'onde IR générée a une polarisation extraordinaire; sa composante verticale permet une excitation en polarisation σ des atomes du jet.

Le rendement en puissance du mélange de fréquence dans le cristal est maximal pour des puissances égales des ondes d'entrée k_1 et k_2 . Dans nos expériences la puissance utilisée sur chacune des ondes est d'environ 1.5mJ, ce qui assure une densité de puissance de 0.3 MW/cm²; ceci reste largement en dessous du seuil de dommage en

puissance du cristal qui est de 35 MW/cm^2 [KAT84]. La puissance du faisceau IR généré à la sortie est mesurée par un détecteur pyroélectrique, elle est d'environ $1 \mu\text{J}$.





Chaque étage laser décrit au chapitre III de ce mémoire a permis d'enregistrer des spectres qui seront présentés, analysés et interprétés dans ce chapitre.

Dans toutes nos expériences nous avons étudié l'atome de lithium pour lequel la dynamique de l'électron de Rydberg est très peu affectée par l'existence du coeur atomique. Il s'en suit que les caractéristiques de la transition de la régularité au chaos sont à peu près identiques à celles de l'atome d'hydrogène.

L'étude de la dynamique classique de l'atome d'hydrogène plongé dans un champ magnétique (cf paragraphe (B.III.1) du chapitre I) prévoit la destruction de tous les tores invariants vibrationnels (respectivement rotationnels) quand le paramètre d'échelle ϵ atteint la valeur -0.39 (respectivement - 127). Pour nous mettre quantiquement dans chacune de ces situations nous excitons sélectivement l'atome de lithium sur des états de Rydberg élevés selon les schémas d'excitation et les polarisations laser que nous avons déduits du chapitre II.

La difficulté expérimentale essentielle rencontrée habituellement lors des expériences menées dans ces zones d'énergie réside dans la résolution laser limitée. Dans notre expérience ce problème ne se pose pas puisque la largeur spectrale de la raie laser excitatrice (3^{ème} étage) est suffisamment faible pour séparer deux niveaux distants de $0,05 \text{ cm}^{-1}$.

La seconde difficulté expérimentale importante provient des champs électriques parasites auxquels les atomes très excités sont très sensibles. Un champ électrique aussi faible que 100 mV/cm suffit à mélanger des états de M différents et donc à fausser complètement l'étude. Dans notre expérience la remise à zéro exacte de l'impulsion de Stark-Switching s'avère importante pour éviter ces champs électriques parasites.

Dans ce qui suit, nous étudierons séparément chacune des transitions correspondant aux différents étages laser:

- La transition ($2s \rightarrow 2p$) pour le 1^{er} étage laser.
- La transition ($2p \rightarrow n=10 \text{ M K}$) pour le 2^{ème} étage laser.
- La transition ($n=10 \text{ M K} \rightarrow n \text{ M}$) pour le 3^{ème} étage.

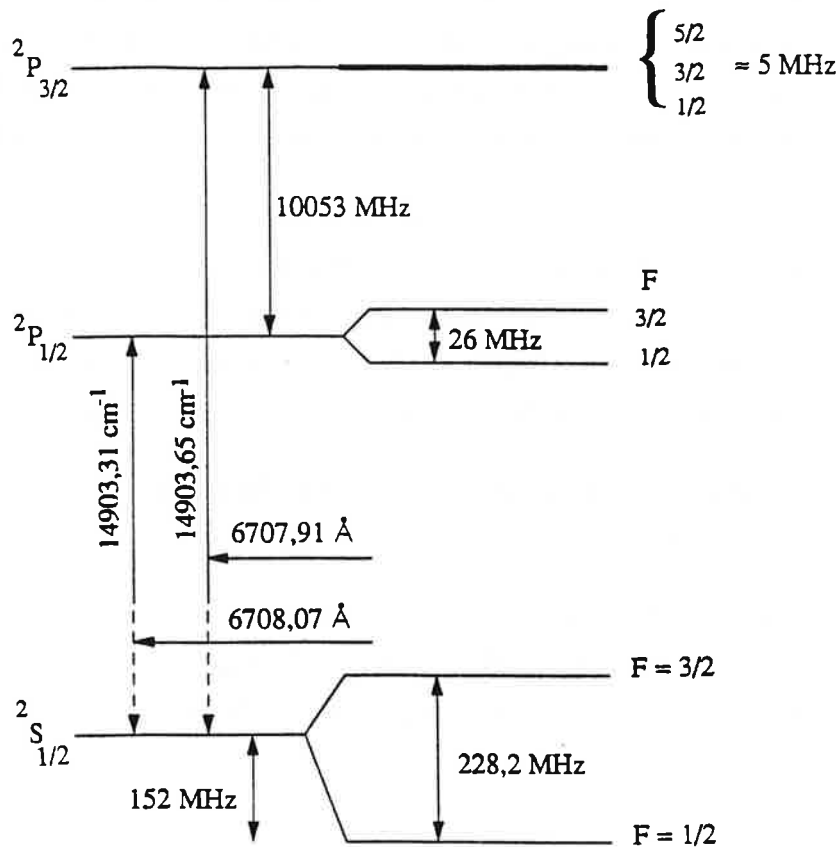
Nous présenterons dans chacun des cas les résultats expérimentaux obtenus et leur interprétation.

A. La raie de résonance $2s \rightarrow 2p$ du lithium.

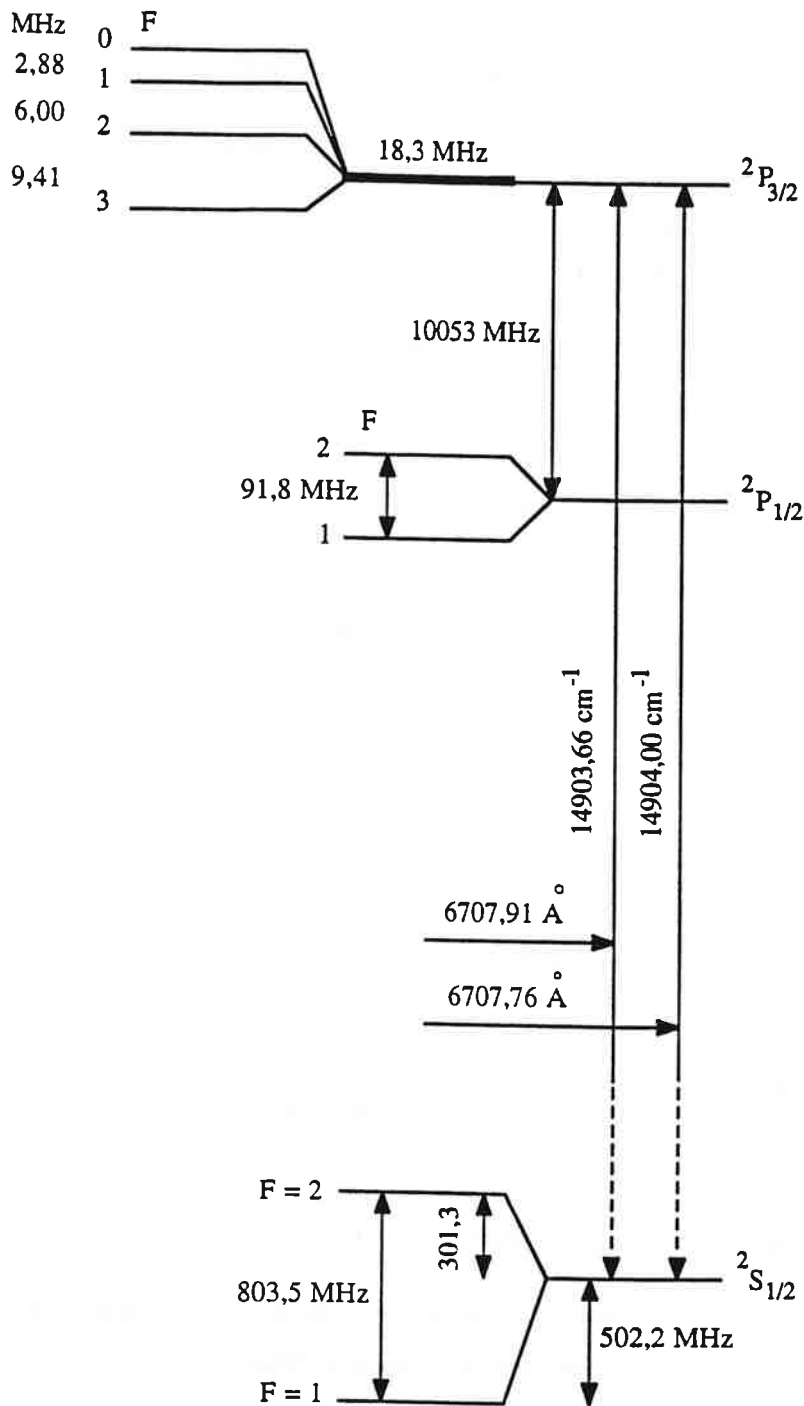
Les connaissances actuelles sur la structure de la transition $2s \rightarrow 2p$ du ${}^6\text{Li}$ et du ${}^7\text{Li}$ sont résumés sur le schéma (IV.1a) et (IV.1b), avec les références correspondantes. Nous avons enregistré ces transitions en l'absence puis en présence d'un champ magnétique dans le but de donner une calibration précise de ce dernier. Pour cela, il faut connaître parfaitement l'action des différentes interactions fine, hyperfine sur l'état fondamental comme sur l'état excité.

Au passage, l'analyse des différents spectres nous ont permis d'améliorer quelques données sur l'élément Li :

- valeur absolue de l'énergie des transitions grâce au spectre d'absorption de l'iode
- le déplacement isotopique.



FIG(IV.1b) Structure de la transition $2s \rightarrow 2p$ du lithium (isotope 6) déduite des références [SHI87] [ORTH75] [BRO67] [RIT65] [BEC74]



FIG(IV.1a) Structure de la transition $2s \rightarrow 2p$ du lithium (isotope 7) déduite des références [SHI87] [ORTH75] [BRO67] [RIT65] [BEC74]

A.I. Etude de la transition sans champ magnétique.

Avant de présenter les spectres expérimentaux, faisons quelques rappels.

Le hamiltonien du système est la somme de plusieurs termes.

$$H = \frac{P^2}{2} - \frac{1}{r} + V(r) + W_f + W_{hf}$$

$V(r)$ représente la correction au potentiel coulombien due à la présence d'un coeur.

W_f est l'interaction de structure fine.

W_{hf} est l'interaction de structure hyperfine.

Le terme non coulombien $V(r)$ rompt la dégénérescence de l'état $n = 2$ et est donc responsable de la valeur de la transition observée. Un défaut quantique de 0.4 pour l'état 2s et de 0.05 pour l'état 2p donne une transition aux alentours de $14\,000\text{ cm}^{-1}$.

Dans la structure fine, les termes de masse et de Darwin [COH77] sont indépendants du spin S , leurs effets sont intégrés dans le schéma 1. On a seulement isolé le terme spin orbite $W_{so} = a(l,s) \mathbf{L} \cdot \mathbf{S}$ qui couple les moments angulaires orbital et de spin et lève la dégénérescence sur le moment angulaire $\mathbf{J} = \mathbf{L} + \mathbf{S}$ des niveaux d'énergie. Pour l'état 2s, $\mathbf{L} = 0$ et $\mathbf{J} = \mathbf{S}$, pour l'état 2p le couplage du spin $1/2$ et du moment orbital $l = 1$ donne des niveaux $J = 1/2$ et $J = 3/2$.

$$W_{hf} = -\frac{\mu_0}{4\pi} \frac{q_e q_p}{m_e} \frac{g_p}{2m_p} \left\{ \frac{\mathbf{L} \cdot \mathbf{I}}{r^3} + \frac{1}{r^3} (3(\mathbf{S} \cdot \mathbf{n})(\mathbf{I} \cdot \mathbf{n}) - \mathbf{S} \cdot \mathbf{I}) + \frac{8\pi}{3} \mathbf{S} \cdot \mathbf{I} \delta(r) \right\}$$

\mathbf{I} est le spin du proton, m_p sa masse, q_p sa charge, g_p son rapport gyromagnétique.

- Le premier terme de W_{hf} représente l'interaction du moment nucléaire \mathbf{M}_I avec le champ magnétique créé au niveau du proton par la rotation de l'électron.

- Le deuxième terme représente l'interaction dipôle-dipôle entre les moments magnétiques électroniques et nucléaires.

- Le dernier terme appelé "terme de contact" décrit l'interaction du moment magnétique de l'électron avec le champ magnétique existant à l'intérieur du proton.

W_{hf} couple les moments angulaires L , S et I et lève la dégénérescence en $F = I + J = I + L + S$.

Dans la suite on notera :

$$B = -\frac{\mu_0}{4\pi} \frac{q_e}{m_e} \frac{q_p g_p}{2m_p} \left\langle \Psi_{2p} \left| \frac{1}{r^3} \right| \Psi_{2p} \right\rangle$$

$$c_s = -\frac{\mu_0}{4\pi} \frac{q_e}{m_e} \frac{q_p g_p}{2m_p} \left| \langle \Psi_{2s} | r | \Psi_{2s} \rangle \right|^2$$

$$c_p = -\frac{\mu_0}{4\pi} \frac{q_e}{m_e} \frac{q_p g_p}{2m_p} \frac{8\pi}{3} \left\langle \Psi_{2p} | \delta(r) | \Psi_{2p} \right\rangle$$

c_p n'est pas identiquement nul dans le cas du lithium car la densité électronique au noyau reste finie due à un effet de "polarisation de coeur" : la couche fermée $1s^2$ subit une polarisation de spin due à l'interaction d'échange avec l'électron de valence [ABR 51].

A.I.1. Effet sur le niveau fondamental 2s.

Le terme spin-orbite n'apporte aucune correction à ce niveau $l = 0$. L'effet du terme de structure hyperfine n'intervient quant à lui que par le terme de contact [BHA80]. On peut montrer que le deuxième terme est nul pour un état isotrope.

Le niveau $2s_{1/2}$ se scinde en deux niveaux de F distincts.

$I = 3/2$ $F = 1$ et $F = 2$ pour l'isotope 7

$I = 1$ $F = 1/2$ et $F = 3/2$ pour l'isotope 6

Le décalage respectif en énergie est un calcul classique et vaut:

$$\Delta E_{hf} = \frac{c_s}{2} [F(F+1) - S(S+1) - I(I+1)]$$

soit respectivement:

$${}^7\text{Li} \quad -\frac{5}{4} c_s^7 \text{ pour } F=1 \quad +\frac{3}{4} c_s^7 \text{ pour } F=2$$

$${}^6\text{Li} \quad -c_s^6 \text{ pour } F=1/2 \quad +\frac{1}{2} c_s^6 \text{ pour } F=3/2$$

Du schéma 1 on déduit:

$$c_s^7 = 401.75 \text{ MHz}$$

$$c_s^6 = 152.13 \text{ MHz}$$

A.I.2. Effet sur le niveau excité 2p.

Le terme spin-orbite $W_{so} = a \mathbf{L} \cdot \mathbf{S}$ lève la dégénérescence en J de ce niveau qui se scinde en deux composantes $2p_{1/2}$ ($l = 1, s = 1/2, J = 1/2$) et $2p_{3/2}$ ($l = 1, s = 1/2, J = 3/2$).

Le décalage en énergie vaut:

$$\Delta E_f = \frac{a}{2} [J(J+1) - L(L+1) - S(S+1)]$$

soit respectivement $-a$ et $+\frac{a}{2}$. La référence [BRO 67] permet de donner:

$$a = 6702.1 \text{ MHz}$$

Sous l'effet du terme hyperfin, la dégénérescence des niveaux $2p_{1/2}$ et $2p_{3/2}$ est levée. Le décalage en énergie de chacun des niveaux F' est calculé en utilisant la théorie des perturbations au premier ordre à l'intérieur d'une multiplicité J donnée.

L'interaction à diagonaliser s'écrit:

$$W_{hf} = B \mathbf{I} \cdot (\mathbf{L} + 3(\mathbf{S} \cdot \mathbf{n})\mathbf{n} - \mathbf{S}) + c_p \mathbf{I} \cdot \mathbf{S}$$

ou encore:

$$W_{hf} = \mathbf{I} \cdot [B(\mathbf{L} + \mathbf{V}) + c_p \mathbf{S}]$$

V est un vecteur qui peut être développé en un produit tensoriel de deux opérateurs $S^{(1)}$ et $C^{(2)}$ agissant respectivement sur le spin et dans l'espace réel.

$$V = \sqrt{10} C^{(2)} \otimes S^{(1)}$$

Dans l'espace J , le théorème de Wigner Eckart assure que $B(L + V) + c_p S = a_J J$ d'où:

$$W_{hf} = a_J \mathbf{I} \cdot \mathbf{J} = \frac{a_J}{2} (F^2 - S^2 - J^2).$$

Le calcul de a_J demande un peu d'algèbre tensorielle, on trouve pour $I = 3/2$

$$a_{1/2} = \frac{8}{3} B - \frac{c_p}{3} \qquad a_{3/2} = \frac{8}{15} B + \frac{c_p}{3}$$

De la référence [ORT 75] on déduit:

$$\begin{aligned} a_{1/2} &= 45.914 \text{ MHz} \\ a_{3/2} &= -3.055 \text{ MHz} \end{aligned} \Rightarrow \begin{aligned} B &= 13.39 \text{ MHz} \\ c_p &= -30.62 \text{ MHz} \end{aligned}$$

Pour une interprétation complète des valeurs figurant sur le schéma 1, il faut tenir compte des interactions quadripolaires et du couplage possible entre les niveaux $F = 1$ et 2 issus des deux espaces $J = 1/2$, $J = 3/2$.

Dans cette optique, certains auteurs [ORT75] font même appel à un modèle à trois paramètres en distinguant la moyenne radiale $\langle \frac{1}{r^3} \rangle$ intervenant dans le terme $\mathbf{I} \cdot \mathbf{L}$ de celle intervenant dans l'interaction dipôle-dipôle. Nous nous sommes ici attachés à définir un modèle simple à deux paramètres interprétant la position des transitions sans champ magnétique. En appliquant ce même modèle en présence de champ magnétique nous allons pouvoir calculer la position des transitions et en déduire une valeur absolue précise de ce champ.

A.I.3. Résultats expérimentaux

La structure de la transition est enregistrée en balayant la fréquence du rayonnement issu de la diode laser à cavité étendue décrite au paragraphe (III) et en enregistrant le signal

de fluorescence reçu par le photomultiplicateur placé au dessus de la zone d'interaction. La dynamique de la céramique piézoélectrique permet un balayage continue de 12 GHz.

La figure (IV.2a) représente la structure de la transition $2s_{1/2} \rightarrow 2p_{3/2}$ en balayant dans le sens des énergies croissantes.

L'écart observé correspond à la structure hyperfine de l'état fondamental. Chaque raie doit comprendre 3 composantes:

$$(1) \quad 2s_{1/2} F=1 \rightarrow 2p_{3/2} F'=0, 1, 2$$

$$(2) \quad 2s_{1/2} F=2 \rightarrow 2p_{3/2} F'=1, 2, 3$$

mais l'écart entre ces composantes est de l'ordre de grandeur de la largeur naturelle 5.8MHz et il est impossible conceptuellement de les séparer par une expérience de fluorescence. Pour y parvenir, il faut faire appel à des techniques spécifiques comme la fluorescence résolue dans le temps [SHI87].

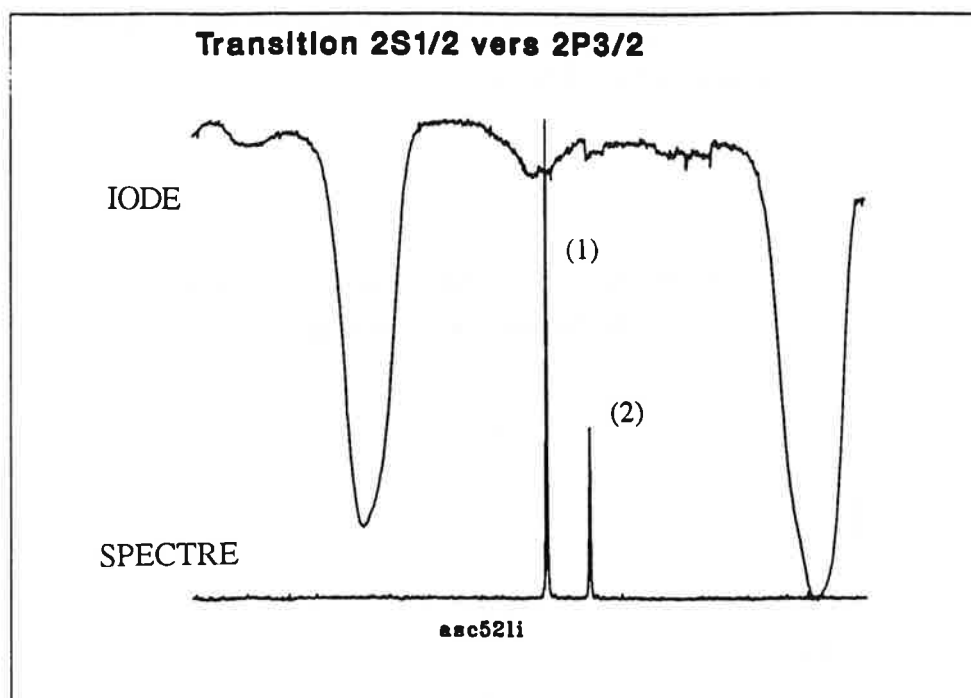
Compte tenu de l'excursion limitée, nous choisissons notre balayage de manière à englober deux raies de l'iode répertoriées [GER78], permettant ainsi une calibration absolue du spectre.

L'écart hyperfin déduit des mesures est de:

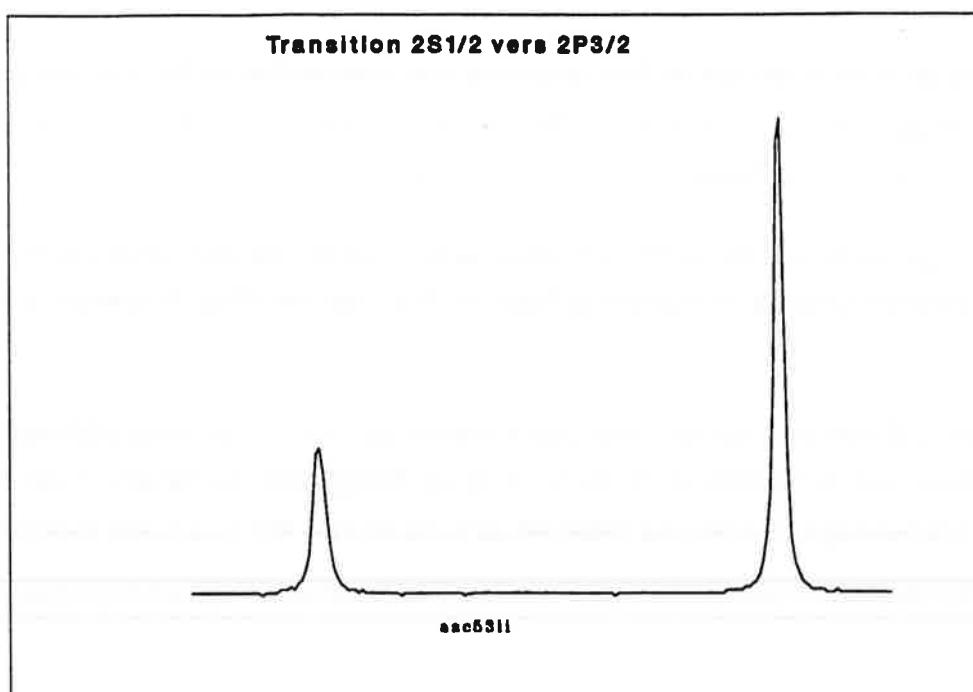
$$\Delta E = 816 \pm 24\text{MHz}$$

compatible avec la valeur 803.5 MHz de la référence [BEC 74]. L'erreur de 24 MHz est en fait dûe principalement au pointé des raies de l'iode, qui par nature ne sont pas des raies symétriques. Ce type d'erreur est responsable de la précision de toutes nos mesures

absolues. Cependant des mesures d'écarts bénéficient d'une précision plus importante. Sur la figure (IV.2b) est représentée un balayage plus lent de la même structure. Expérimentalement nous observons une largeur de raie de respectivement 27 MHz pour la composante [1], et 20 MHz pour la composante [2].

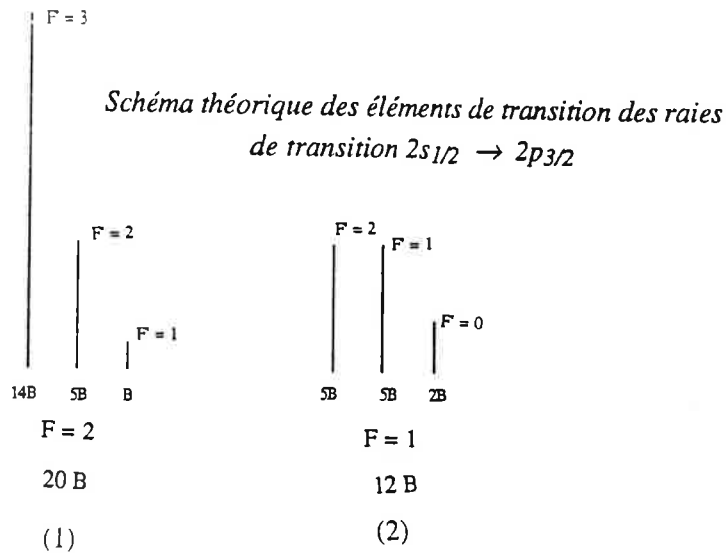


FIG(IV.2a) Structure de la transition $2s_{1/2} \rightarrow 2p_{3/2}$ du lithium7



FIG(IV.2b) Structure dilatée de la transition $2s_{1/2} \rightarrow 2p_{3/2}$ du lithium7

Le rapport des aires de **2** sur **1** est de 2.54. Le schéma théorique des éléments de transition est représenté sur le schéma (1) suivant:

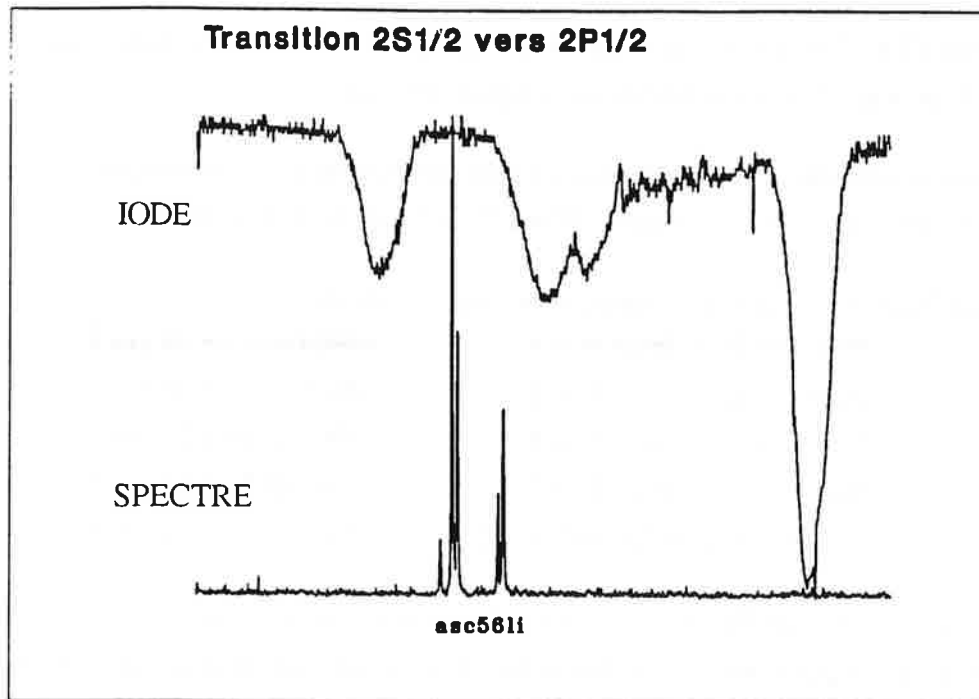


Soit si l'on considère le niveau supérieur non résolu, un rapport $20/12 = 1.66$ très différent de 2.54 observé. Les largeurs observées sont beaucoup plus importantes que la largeur naturelle 5.8 MHz et que la largeur Doppler résiduelle due à la divergence du jet de lithium 6 MHz.

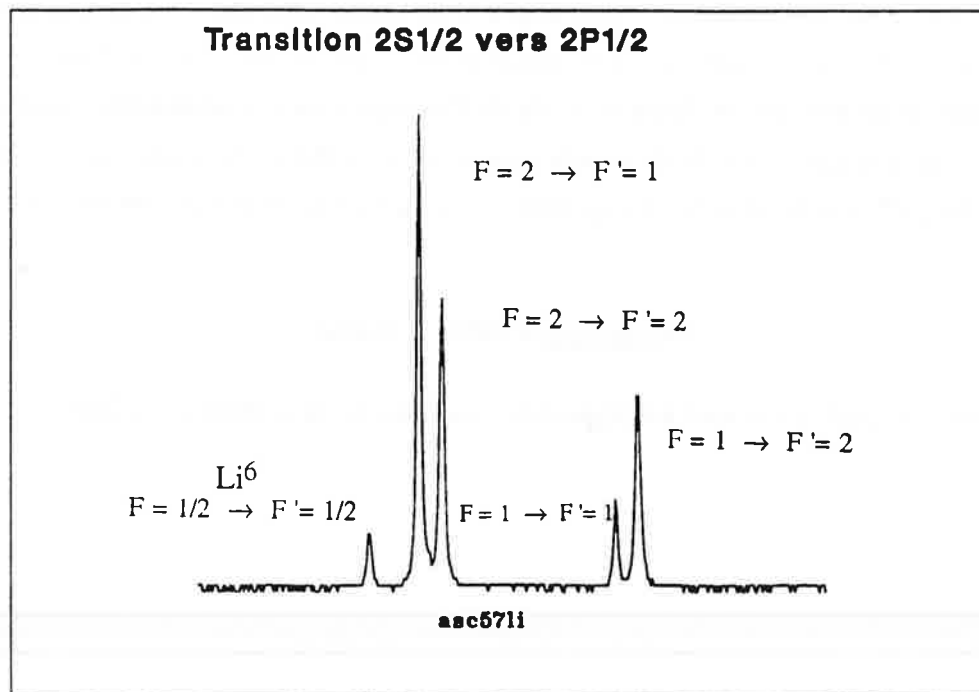
Ces deux phénomènes ne font qu'opérer une convolution de largeur γ et γ_D sur le schéma théorique (1) et ne peuvent ni modifier le rapport des aires des deux groupes de raies ni conduire à des largeurs différentes.

L'explication est donc autre, et comme nous allons le voir plus quantitativement sur le groupe correspondant à la transition $2s_{1/2} \rightarrow 2p_{1/2}$ est un effet de pompage optique hyperfin.

Sur la figure (IV.3a) est présentée simultanément avec les raies d'absorption de l'iode, la structure de la transition $2s_{1/2} \rightarrow 2p_{1/2}$ enregistrée en balayant par énergie croissante. Un balayage plus lent est présenté sur la figure (IV.3b). Les écarts hyperfins du



FIG(IV.3a) Structure de la transition $2s_{1/2} \rightarrow 2p_{1/2}$ du lithium7



FIG(IV.3b) Structure dilatée de la transition $2s_{1/2} \rightarrow 2p_{1/2}$ du lithium7

fondamental (803.5 MHz) et de l'état excité (91.8 MHz) sont ici résolus. La structure comporte 4 raies que l'on a identifiées sur la figure (IV.3b).

Une cinquième composante située à plus faible énergie que la structure est attribuée à la composante ($2s_{1/2} F=1/2 \rightarrow 2p_{3/2} F' = 1/2$) de l'isotope 6 du lithium.

Les longueurs d'ondes mesurées sont respectivement :

$2s_{1/2} F = 2 \rightarrow 2p_{1/2} F' = 1$	$14903.6527 \pm 24 \text{ cm}^{-1}$
$2s_{1/2} F = 2 \rightarrow 2p_{1/2} F' = 2$	$14903.6558 \pm 24 \text{ cm}^{-1}$
$2s_{1/2} F = 1 \rightarrow 2p_{1/2} F' = 1$	$14903.6795 \pm 24 \text{ cm}^{-1}$
$2s_{1/2} F = 1 \rightarrow 2p_{1/2} F' = 2$	$14903.6826 \pm 24 \text{ cm}^{-1}$
$2s_{1/2} F = 1/2 \rightarrow 2p_{1/2} F' = 1/2$	$14903.6474 \pm 24 \text{ cm}^{-1}$

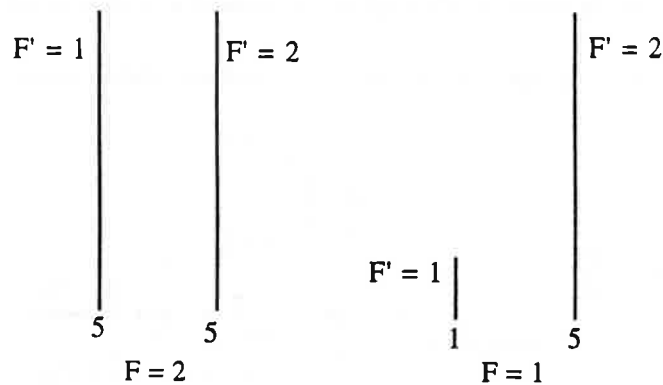
Remarquons que l'incertitude 24 cm^{-1} sur la valeur absolue des nombres d'ondes est importante par rapport au nombre de chiffres significatifs que nous avons conservés, ceci dans le but de conserver une validité aux écarts relatifs que nous pouvons mesurer (~ 3

MHz soit 10^{-4} cm^{-1}). Le balayage plus lent permet de mesurer les valeurs relatives des écarts hyperfins et du déplacement isotopique.

En prenant comme donné l'écart hyperfin du fondamental 803.5 MHz, on trouve un écart hyperfin de l'état excité de $94 \pm 3 \text{ MHz}$ et un écart de $207 \text{ MHz} \pm 3 \text{ MHz}$ entre la composante $2s_{1/2} F = 1/2 \rightarrow 2p_{1/2} F' = 1/2$ de l'isotope 6 et la composante $2s_{1/2} F=2 \rightarrow 2p_{1/2} F' = 1$ de l'isotope 7. Le déplacement isotopique s'en déduit en connaissant la structure fine de 10053 MHz et les structures hyperfines du fondamental et de l'état excité des isotopes 6 et 7.

$$\Delta E_{\text{isotopique}} = 10542 \pm 3 \text{ MHz}$$

Les forces de raies sont théoriquement données sur le schéma (2) suivant:



*Schéma théorique des éléments de transition des raies
de transition $2s_{1/2} \rightarrow 2p_{1/2}$*

et nous avons été surpris d'observer des intensités peu proportionnelles à ces valeurs. D'autre part, la largeur des raies sont différentes pour les transitions atteignant $F'=1$ ($\approx 20\text{MHz}$) et $F'=2$ ($\approx 25\text{MHz}$).

Les causes d'élargissement comme l'effet Doppler du 1^{er} ordre résiduel ($\approx 6\text{MHz}$) la largeur du laser ($\approx 3\text{MHz}$) et la largeur naturelle des niveaux (6MHz) sont de valeurs inférieures à celles observées et ne peuvent expliquer deux largeurs différentes. Dans notre cas, il est naturel de penser à un effet de pompage hyperfin : par exemple lorsque le laser est accordé sur la transition $F=1 \rightarrow F'=1$, un atome absorbe un photon à cette énergie; puis libère un photon par émission sur le niveau $F=1$, dans ce cas il peut réabsorber un photon, soit sur le niveau $F=2$ où il ne peut plus rien absorber puisque le laser est accordé sur la transition $F=1 \rightarrow F'=1$.

L'effet d'un tel processus a été traité dans la thèse de J.L. VIALLE [VIA80] avec un modèle simple à trois niveaux. Rappelons succinctement les résultats de ce modèle. Le système comporte 3 niveaux : un niveau excité a et deux sous niveaux distincts b et c pour l'état fondamental. Le niveau a peut se désexciter vers les niveaux b et c avec les taux d'émission spontanée γ_b et γ_c , $\gamma = \gamma_b + \gamma_c$ est l'inverse de la durée de vie du niveau a ($= \gamma^{-1}/2\pi$). Le rayonnement laser a une fréquence voisine de $\omega_0 = (E_a - E_b)/\hbar$ et ne couple pas c et

a. Dans le formalisme de la matrice densité, on introduit le temps d'interaction $\frac{1}{\Gamma}$ pendant lequel l'atome interagit avec la lumière, on trouve la solution stationnaire.

$$\sigma_a = \frac{N}{2} \frac{\frac{\Omega^2}{2} \left(\frac{\Gamma + \gamma}{2} \right)}{(\omega - \omega_0)^2 + \left(\frac{\Gamma + \gamma}{2} \right)^2 + \frac{\Omega^2}{2} \left(2 + \frac{\gamma_c}{\Gamma} \right) \left(\frac{\Gamma + \gamma}{2} \right)}$$

où σ_a est la population du niveau a, $\Omega = \frac{d E_0}{\hbar}$ est la fréquence de Rabi, avec $d = \langle a | \mathbf{D} \cdot \mathbf{e} | b \rangle$ où \mathbf{D} est le dipôle atomique, \mathbf{e} la polarisation de l'onde.

En prenant l'hypothèse $\Gamma \ll \gamma$, $\gamma_c = 0$ on retrouve le système à deux niveaux et l'élargissement de puissance classique :

$$\sigma_a = \frac{N}{2} \frac{\frac{\Omega^2}{4}}{(\omega - \omega_0)^2 + \frac{\gamma}{4} + \frac{\Omega^2}{2}}$$

En prenant l'hypothèse $\Gamma \ll \gamma$, γ_c, γ_b on trouve

$$\sigma_a = \frac{N}{2} \frac{\Omega^2/4}{(\omega - \omega_0)^2 + \frac{\gamma}{4} + \frac{\Omega^2 \gamma_c}{4 \Gamma}}$$

On note tout de suite que l'élargissement par pompage hyperfin arrive pour une intensité bien inférieure à celle caractéristique de l'élargissement de puissance d'un système à 2 niveaux (facteur $\frac{\gamma_c}{\Gamma}$).

Le signal de fluorescence qui nous intéresse est proportionnel à $\sigma_a \gamma$: c'est une lorentzienne de largeur $\frac{\gamma}{2} (1 + \frac{\Omega^2 \gamma_c}{\gamma^2 \Gamma})^{1/2}$. L'aire intégrée d'une telle courbe est:

$$A = \frac{2N\gamma\pi}{2\gamma} \frac{\Omega^2}{4} \left(1 + \frac{\Omega^2}{\gamma^2} \frac{\gamma_c}{\Gamma}\right)^{-\frac{1}{2}} = N\pi \frac{\Omega^2}{4} \left(1 + \frac{\Omega^2}{\gamma^2} \frac{\gamma_c}{\Gamma}\right)^{-\frac{1}{2}}$$

Ω^2 étant proportionnel à γ_b , le facteur d'élargissement s'écrit

$$\left(1 + \left(\frac{\Omega^2}{\gamma^2}\right) \times \frac{\gamma_b \gamma_c}{\gamma^2} \frac{1}{\Gamma}\right)^{\frac{1}{2}} \text{ et reste invariant par échange de b et c.}$$

Pour $\frac{\Omega^2 \gamma_c}{\gamma^2 \Gamma} \ll 1$, l'élargissement par pompage hyperfin est négligeable et l'aire mesurée est bien proportionnelle à Ω^2 donc à l'intensité du laser et à la force de raie calculée. Lorsque $\frac{\Omega^2 \gamma_c}{\gamma^2 \Gamma} \approx 1$, la courbe s'élargit et l'aire mesurée doit être corrigée par rapport aux dépendances habituelles d'un facteur inversement proportionnel à l'élargissement.

Notre cas n'est pas réductible directement à des systèmes de 3 niveaux, car chaque niveau F ou F' est dégénéré et une résolution exacte nécessiterait un calcul assez lourd. On obtient cependant un résultat approché en oubliant les nombres magnétiques.

Les transitions aboutissant sur le niveau F' ont une largeur de $\gamma (1 + \frac{\lambda^3}{\Gamma \text{ch}\pi} \frac{P}{S} \times \frac{\gamma_b \gamma_c}{\gamma^2})^{1/2}$ où P est la puissance laser, et S la section droite qui éclaire le jet.

La durée de vie du niveau est de 27 ns soit $\gamma = 5.8$ MHz.

$T = \frac{v}{l}$ où v est la vitesse moyenne des atomes dans le jet et l la longueur éclairée par le laser (l = 6mm).

$$v = \frac{3}{2} \sqrt{\frac{kT}{2m}} = 1900 \text{ m/s à } 600^\circ\text{C pour le } ^7\text{Li d'où } \Gamma = 3.1 \cdot 10^5 \text{ s}^{-1}$$

$$\text{Pour } F'=1 \quad \frac{\gamma_b \gamma_c}{\gamma} = \frac{5}{36}$$

$$\text{Pour } F'=2 \quad \frac{\gamma_b \gamma_c}{\gamma} = \frac{1}{4}$$

$$\frac{\lambda^3}{\Gamma \text{ch}\pi} \left(\frac{P}{s}\right) = 1.55 \left(\frac{P}{s}\right) \quad \frac{P}{s} \text{ en } \text{W/m}^2$$

Le laser a une puissance d'environ 0.8 mW sur une surface éclairée d'environ 6mm x 2mm d'où $\frac{P}{s} = 66 \text{ W/m}^2$. Soit pour les transitions aboutissant sur F' une largeur $\gamma_{F'}$:

$$\gamma_1 = \gamma \times \sqrt{1 + \frac{5}{36} \times 1.55 \times 66} = 3.89 \gamma = 22 \text{ MHz}$$

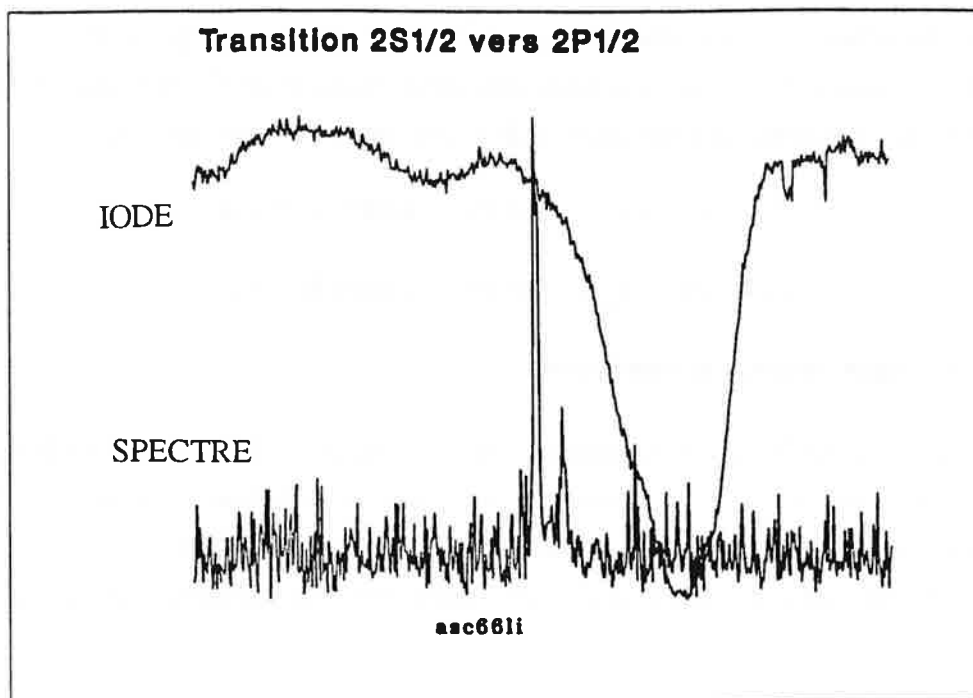
$$\gamma_2 = \gamma \times \sqrt{1 + \frac{1}{4} \times 1.55 \times 66} = 5.15 \gamma = 29 \text{ MHz}$$

Compte tenu de la manière dont on a estimé les différents paramètres, une comparaison directe de ces valeurs avec celles mesurées peut résulter d'une heureuse coïncidence. Par contre si l'on admet que les vrais paramètres sont tels que le 1 est négligeable dans la racine, le rapport théorique des deux largeurs est:

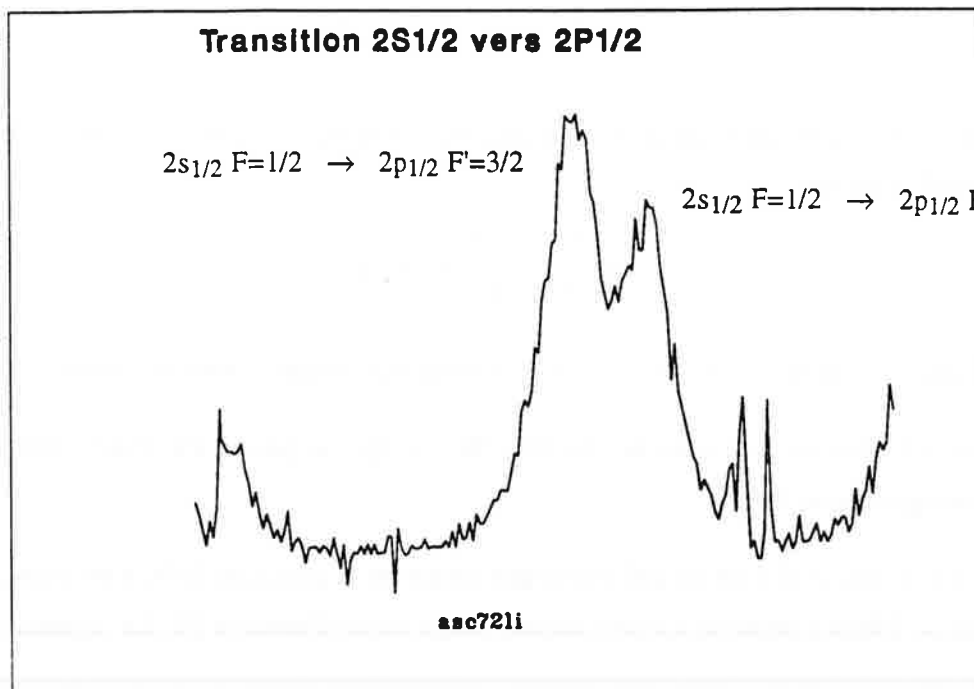
$$\sqrt{\frac{1}{4} \frac{36}{5}} = 1.34$$

à comparer avec le rapport mesuré $\frac{27}{20} = 1.35$. D'autre part, la correction à effectuer sur les aires donne les valeurs théoriques suivantes 6.75, 5, 1.35, 5 correspondant mieux aux valeurs expérimentales.

Cette analyse permet d'affirmer que pour observer des raies dont l'intensité est proportionnelle à la force de raie il faut travailler avec un flux laser inférieur au W/m^2 .



FIG(IV.4a) Structure de la transition $2s_{1/2} \rightarrow 2p_{1/2}$ du lithiu6



FIG(IV.4b) Structure dilatée de la raie de transition
 $2s_{1/2} F=1/2 \rightarrow 2p_{1/2}$ du lithium6

La structure de la transition $2s_{1/2} \rightarrow 2P_{1/2}$ de l'isotope 6 est présentée sur la figure (IV.4a). On n'observe que deux raies correspondant à l'écart hyperfin du fondamental 228.2 MHz [BEC74]. Le spectre de l'iode permet de donner une calibration absolue.

$$2s F=3/2 \rightarrow 2p F=1/2 \ 3/2 \quad 14903.3120 \text{ cm}^{-1}$$

$$2s F=1/2 \rightarrow 2p F=1/2 \ 3/2 \quad 14903.3197 \text{ cm}^{-1}$$

avec une incertitude absolue de $2 \cdot 10^{-3} \text{ cm}^{-1}$.

L'écart hyperfin que l'on déduit est de $216 \text{ MHz} \pm 17 \text{ MHz}$. Si l'on balaye plus lentement, on arrive à observer la structure hyperfine de l'état excité figure (IV.4b). Les éléments de matrice correspondants sont respectivement 8, 10, 1, 8. Là encore pour interpréter correctement les intensités il faut tenir compte de l'élargissement par pompage hyperfin.

$$F' = \frac{3}{2} \frac{\gamma_b \gamma_c}{\gamma^2} = \frac{20}{81}$$

$$F' = \frac{1}{2} \quad \frac{\gamma_b \gamma_c}{2\gamma} = \frac{8}{81}$$

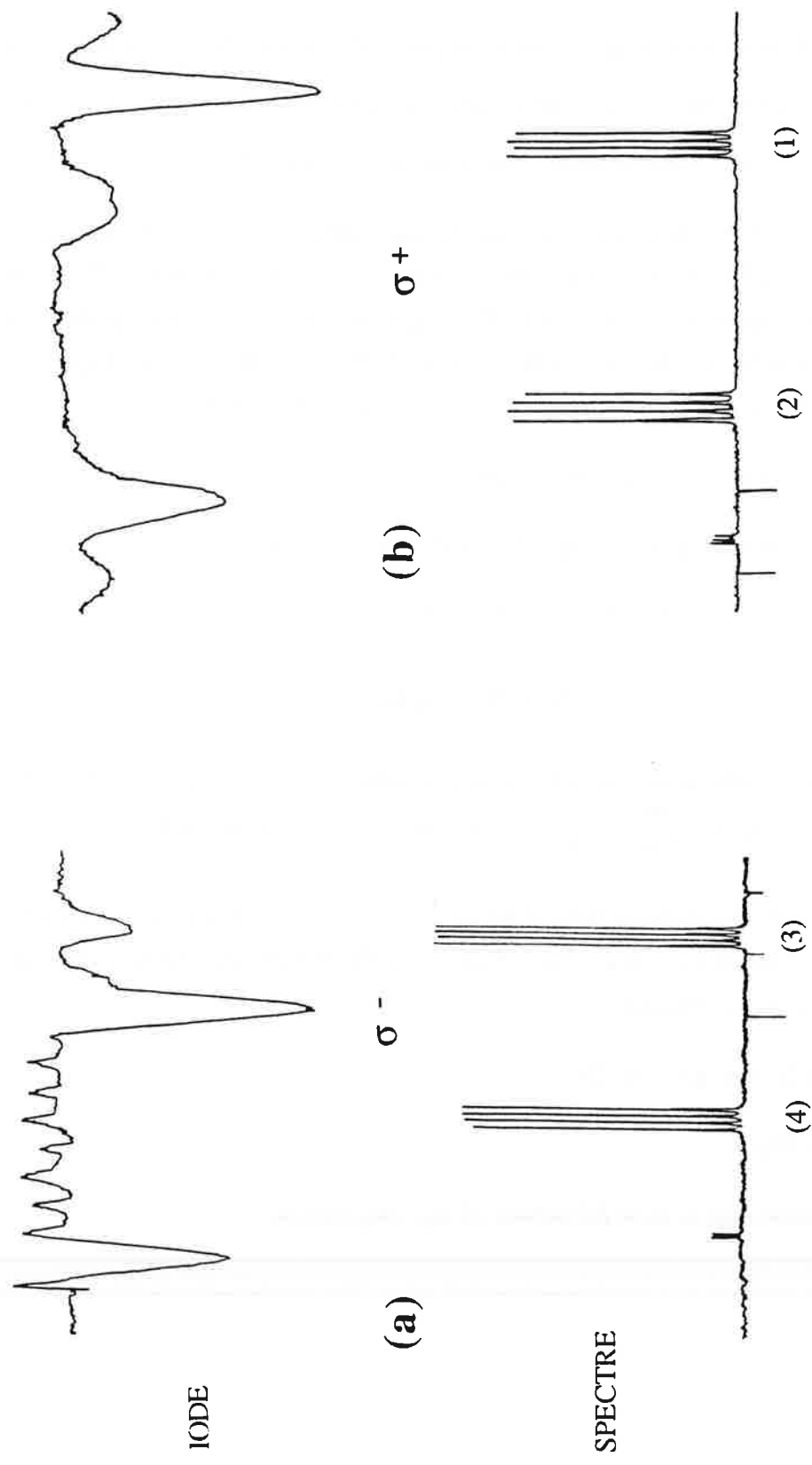
La correction sur l'aire des raies observées sur les niveaux $F'=1/2$ $F'=3/2$ est cette fois ci dans le rapport:

$$\sqrt{\frac{20}{81} \times \frac{81}{8}} = 1.58$$

ce qui donne les valeurs 12.5, 10, 1.6, 8 à comparer aux valeurs expérimentales.

A.I.4. Structure de la transition $2s \rightarrow 2p$ en présence d'un champ magnétique fort :

Sur la figure (IV.6) est présentée une partie de la structure de la transition $2s \rightarrow 2p$ de l'atome de lithium en présence d'un champ magnétique d'environ 5T. Le rayonnement



FIG(IV.5) Structure de la transition $2s M = 0 \rightarrow 2p M'$
 (a) $M' = -1 (\sigma^-)$ (b) $M' = 1 (\sigma^+)$
 en présence d'un champ magnétique de 5T représentée
 avec le spectre d'absorption de la molécule de l'iode.

laser ayant une polarisation σ par rapport à l'axe du champ magnétique, sont présentées la partie σ^- et σ^+ de la structure.

Par rapport à la transition sans champ, la partie σ^- se situe à $-\frac{\gamma}{2}$. La nature en quadruplet est due à la dégénérescence due au spin du noyau ($I = \frac{3}{2}$ entraîne $2I+1 = 4$). L'écart entre les quadruplets est liée au terme spin orbite (structure fine).

Dans les deux cas à énergie plus basse, on distingue deux triplets : ce sont une partie des mêmes structures σ^+ et σ^- pour l'isotope 6. Les deux autres triplets décalés de la structure fine vers les basses énergies n'ont pas été enregistrés. Les raies de l'iode permettent la calibration absolue en énergie de ces spectres et nous allons voir comment une analyse des interactions nous permet de déduire une valeur précise du champ magnétique.

A.II. Interactions d'un champ magnétique

En présence d'un champ magnétique, le hamiltonien du système s'écrit:

$$H = H_0 + W_f + W_{hf} + W_z$$

$$W_z = \frac{\gamma}{2} (L_z + 2S_z + \alpha_n I_z)$$

W_z représente l'interaction du champ magnétique avec les différents moments magnétiques de l'atome. $\alpha_n = -g_p \frac{m_e}{m_n} = -\frac{1}{328}$ est exprimée en unités atomiques.

En toute rigueur, W_z contient aussi le terme diamagnétique qui reste faible pour les états 2s et 2p. En champ fort $H_0 \gg W_z \gg W_f \gg W_{hf}$, nous allons donc utiliser la théorie des perturbations dans l'ordre décroissant.

A.II.1. Etude du niveau 2s.

a) effet du W_z .

W_z est diagonal dans la base découplée $|l m_l, s m_s, I m_I \rangle$.

Le décalage s'écrit $\frac{\gamma}{2} (2 m_s - \alpha_n m_I)$.

b) effet de W_F .

Ce terme n'a aucun effet sur le niveau fondamental 2s ($l=0$).

c) effet de W_{hf} .

Le seul terme non nul est le terme de contact c_s LS. Le terme paramagnétique ayant découplé l'espace $m_s = + 1/2$ et $m_s = - 1/2$, on ne conserve au premier ordre des perturbations que le terme en $I_z S_z$. Ce terme diagonal a pour valeur $c_s m_s m_I$.

Le terme de contact et l'interaction paramagnétique nucléaire ont pour effet de lever la dégénérescence en m_I des sous niveaux $| S m_s \rangle$.

Pour le lithium 7, $I=3/2$ entraîne l'existence de quadruplets. Pour le lithium 6, $I=1$ entraîne l'existence de triplets.

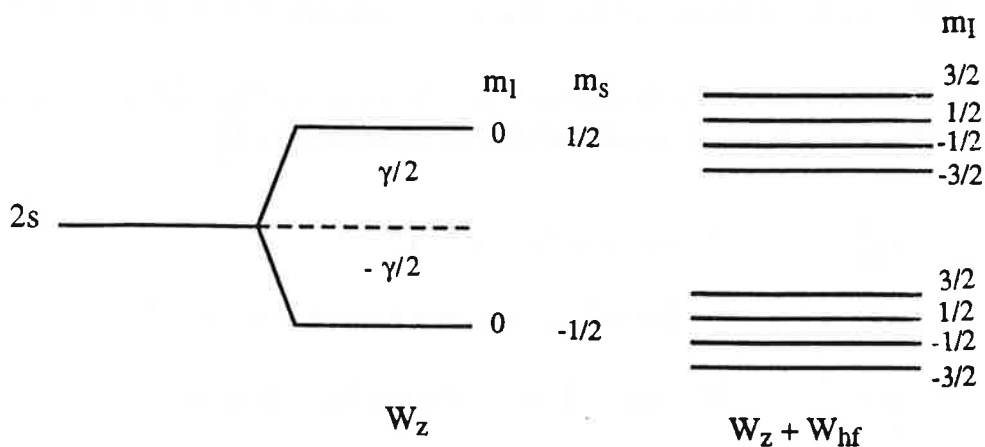


FIG (IV.6) Ce schéma résume l'effet des interactions W_z , W_F , W_{HF} sur le niveau 2s du lithium 7.

$$E = E_{2s} + \gamma m_s + m_l \left(c_s m_s - \alpha_n \frac{\gamma}{2} \right)$$

$$\text{Pour } m_s = + \frac{1}{2} \quad E = E_{2s} + \frac{\gamma}{2} + m_l \left(\frac{c_s}{2} - \alpha_n \frac{\gamma}{2} \right)$$

$$\text{Pour } m_s = - \frac{1}{2} \quad E = E_{2s} - \frac{\gamma}{2} + m_l \left(\frac{-c_s}{2} - \alpha_n \frac{\gamma}{2} \right)$$

Pour un champ estimé de 4.89T

$$\alpha_n \frac{\gamma}{2} = 208 \text{ MHz}$$

L'effet de W_z , W_F et W_{hF} sur le niveau 2s du lithium 7 est résumé sur le schéma de la figure(IV.7).

A.II.2. Etude du niveau 2p.

a) Effet de $W_z + W_{so}$.

En ignorant le spin nucléaire, on peut diagonaliser $W_z + W_{so}$ dans la base $|l m_l m_s\rangle$. L'énergie de chaque sous niveau peut être donnée jusqu'au 2^{ème} ordre de perturbation.

La correction apportée à l'énergie des niveaux Zeeman 2p est calculée en diagonalisant $W_z + W_{so}$ et donne au second ordre de perturbation en $\frac{a}{\gamma}$

$$\gamma + \frac{a}{2} \quad \Psi = |m_l = 1 \ m_s = 1/2\rangle$$

$$\frac{\gamma}{2} + \frac{a^2}{\gamma} + \dots \quad \Psi = |m_l = 0 \ m_s = 1/2\rangle + \epsilon |m_l = 1 \ m_s = -1/2\rangle$$

$$-\frac{a}{2} + \frac{a^2}{\gamma} + \dots \quad \Psi = |m_l = -1 \ m_s = 1/2\rangle + \epsilon |m_l = 0 \ m_s = -1/2\rangle$$

$$-\frac{a}{2} - \frac{a^2}{\gamma} + \dots \quad \Psi = |m_l = 1 \ m_s = -1/2\rangle + \epsilon |m_l = 0 \ m_s = +1/2\rangle$$

$$-\frac{\gamma}{2} - \frac{a^2}{\gamma} + \dots \quad \Psi = |m_l = 0 \ m_s = -1/2\rangle + \epsilon |m_l = -1 \ m_s = 1/2\rangle$$

$$-\gamma + \frac{a}{2} + \dots \quad \Psi = |m_l = -1 \ m_s = -1/2\rangle$$

Remarque : seuls les états Ψ extrêmes sont des états purs.

Ordre de grandeur:

$$\text{à } B = 4.89T \quad \frac{\gamma}{2} = 68498 \text{ MHz}$$

$$\frac{a}{2} = 3351 \text{ MHz}$$

$$\frac{a^2}{\gamma} = 328 \text{ MHz}$$

b) Effet de W_{zn} et de W_{hf} .

$W_{zn} = -\alpha_n \frac{\gamma}{2} I_z$ est diagonal dans la base $|\Psi_i, I m_I\rangle$.

$$W_{hf} = B I. (L + \sqrt{10} C^2 S^1) + C_p I.S$$

Pour calculer l'effet de ce terme dans la base $|\Psi, I, m_I\rangle$ on prend l'hypothèse simplificatrice que la levée de dégénérescence par $W_z + W_{so}$ est suffisante pour négliger les termes d'interactions entre Ψ différents et que chaque état Ψ peut être considéré comme pur. On trouve :

$$\langle 1 m_I s m_s | W_{hf} | 1 m_I s m_s \rangle = B m_I \left[m_I - \frac{2}{5} (3m_I^2 - 2) m_s \right] + c_p m_I m_s$$

La levée de dégénérescence en m_I décompose chaque niveau Ψ_i en $(2I+1)$ composantes (4 pour le ${}^7\text{Li}$, 3 pour le ${}^6\text{Li}$). L'écart caractéristique ΔE entre 2 composantes de ces quadruplets (resp triplets) a pour valeur :

$$m_I = 1, m_s = 1/2$$

$$\Delta E_1 = \frac{4}{5} B + \frac{1}{2} c_p - \alpha_n \frac{\gamma}{2}$$

$$m_I = 0, m_s = 1/2$$

$$\Delta E_2 = \frac{2}{5} B + \frac{1}{2} c_p - \alpha_n \frac{\gamma}{2}$$

$$m_I = -1, m_s = +1/2$$

$$\Delta E_3 = -\frac{6}{5} B + \frac{1}{2} c_p - \alpha_n \frac{\gamma}{2}$$

$$m_l = +1, m_s = -1/2$$

$$\Delta E_4 = \frac{6}{5} B - \frac{1}{2} c_p - \alpha_n \frac{\gamma}{2}$$

$$m_l = 0, m_s = -1/2$$

$$\Delta E_5 = -\frac{2}{5} B - \frac{1}{2} c_p - \alpha_n \frac{\gamma}{2}$$

$$m_l = -1, m_s = -1/2$$

$$\Delta E_6 = -\frac{4}{5} B - \frac{1}{2} c_p - \alpha_n \frac{\gamma}{2}$$

Les valeurs de B et c_p du paragraphe (A.I.2) permettent de donner les valeurs :

$$\Delta E_1 = -4.5 -208 \text{ MHz} \quad \Delta E_2 = -10 -208 \text{ MHz}$$

$$\Delta E_3 = -31 -208 \text{ MHz} \quad \Delta E_4 = +31 -208 \text{ MHz}$$

$$\Delta E_5 = +10 -208 \text{ MHz} \quad \Delta E_6 = +4.5 -208 \text{ MHz}$$

A.II.3. Structure de la transition $2s \rightarrow 2p$.

Sur la figure (VI 8) on a représenté le spectre d'excitation en présence d'un champ magnétique fort. Les règles de sélection dipolaires électriques sont tels que $\Delta m_l = 0$ $\Delta m_s = 0$ (π), 1 (σ^+), -1 (σ^-). Le terme W_2^n disparaît lorsque l'on s'intéresse à la transition.

σ^+

$$(1) |2s m_s = \frac{1}{2} I m_l\rangle \rightarrow |2p m_l = 1 m_s = \frac{1}{2} I m_l\rangle : \frac{\gamma}{2} + \frac{a}{2} + m_l \left[\frac{4}{5} B + \frac{1}{2} (C_p - C_s) \right]$$

$$(2) |2s m_s = -\frac{1}{2} I m_l\rangle \rightarrow |2p m_l = 1 m_s = -\frac{1}{2} I m_l\rangle : \frac{\gamma}{2} - \frac{a}{2} + \frac{a^2}{\gamma} + \dots + m_l \left[\frac{6}{5} B - \frac{1}{2} (C_p - C_s) \right]$$

π

$$|2s m_s = \frac{1}{2} I m_l\rangle \rightarrow |2p m_l = 0 m_s = +\frac{1}{2} I m_l\rangle : +\frac{a^2}{\gamma} + \dots + m_l \left[\frac{2}{5} B + \frac{1}{2} (C_p - C_s) \right]$$

$$|2s m_s = -\frac{1}{2} I m_l\rangle \rightarrow |2p m_l = 0 m_s = -\frac{1}{2} I m_l\rangle : -\frac{a^2}{\gamma} + \dots + m_l \left[-\frac{2}{5} B - \frac{1}{2} (C_p - C_s) \right]$$

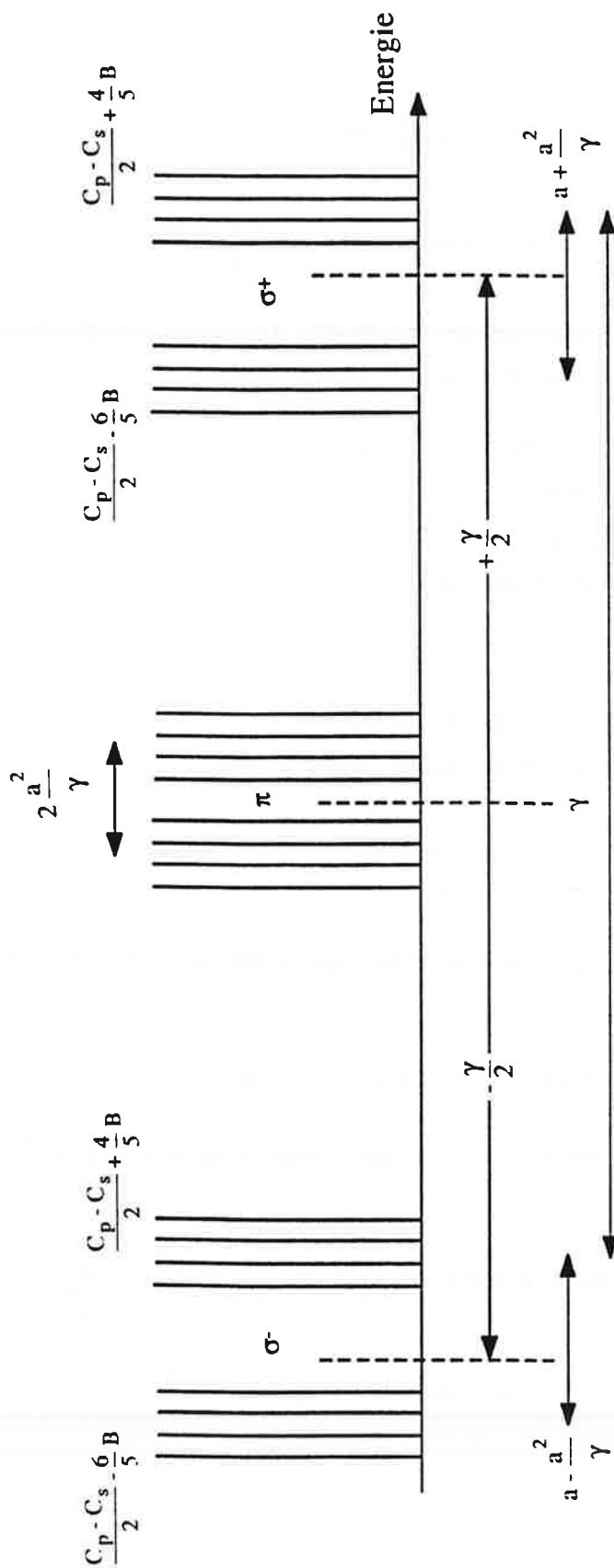


FIG (IV.7) Schéma théorique du spectre d'excitation $2s \rightarrow 2p$
en présence d'un champ magnétique fort.

σ^-

$$(4) |2s m_s = \frac{1}{2} I m_I\rangle \rightarrow |2p m_l = -1 m_s = \frac{1}{2} I m_I\rangle : -\frac{\gamma}{2} - \frac{a}{2} + \frac{a^2}{\gamma} + \dots + m_I \left[-\frac{6}{5} B + \frac{1}{2} (C_p - C_s) \right]$$

$$(3) |2s m_s = -\frac{1}{2} I m_I\rangle \rightarrow |2p m_l = -1 m_s = -\frac{1}{2} I m_I\rangle : -\frac{\gamma}{2} + \frac{a}{2} + m_I \left[-\frac{4}{5} B - \frac{1}{2} (C_p - C_s) \right]$$

Cette analyse va nous permettre maintenant d'exploiter nos spectres expérimentaux en σ^+ et σ^- . Les valeurs absolues du milieu de chaque quadruplet donne :

Isotope 7

$$E_1 = 14906.2817 \pm 24 \cdot 10^{-4} \text{ cm}^{-1}$$

$$E_2 = 14906.0470 \pm 24 \cdot 10^{-4} \text{ cm}^{-1}$$

$$E_3 = 14901.6996 \pm 24 \cdot 10^{-4} \text{ cm}^{-1}$$

$$E_4 = 14901.4858 \pm 24 \cdot 10^{-4} \text{ cm}^{-1}$$

Isotope 6

$$E'_4 = 14901.3465 \pm 24 \cdot 10^{-4} \text{ cm}^{-1}$$

$$E'_2 = 14901.9298 \pm 24 \cdot 10^{-4} \text{ cm}^{-1}$$

L'erreur estimée est de 0.5 mm sur le pointé des raies de l'iode. Là, encore les valeurs relatives peuvent être mesurées avec une meilleure précision.

La valeur de γ est directement déduite de la différence $E_1 - E_3 = 4.5821 \pm 0.0048 \text{ cm}^{-1}$.

soit: $\gamma = 2.088 \pm 0.0021 \text{ cm}^{-1} \rightarrow B = 4.907 \pm 0.005 \text{ T}$

La valeur de γ permet de donner une mesure expérimentale de la structure fine à partir de:

$$E_1 - E_2 = 0.2347 + 0.0019 \text{ cm}^{-1} = a + \frac{a^2}{\gamma} - \frac{9}{8} \frac{a^3}{\gamma^2}$$

$$\Rightarrow a = 0.2242 + 0.0019 \text{ cm}^{-1}$$

$$E_3 - E_4 = 0.2138 + 0.0026 \text{ cm}^{-1} = a - \frac{a^2}{\gamma} - \frac{9}{8} \frac{a^3}{\gamma^2}$$

$$\Rightarrow a = 0.2255 + 0.0026 \text{ cm}^{-1}$$

Ces deux valeurs sont à comparer avec la valeur du schéma (IV.1a): $a = .2236 \text{ cm}^{-1}$.

Nous avons mesuré ensuite l'écart entre les composantes extrêmes de chaque quadruplet (resp triplet) que l'on note ΔE_i .

$$\Delta E_1 = (2.07 \pm 0.08) 10^{-2} \text{ cm}^{-1}$$

$$\Delta E_3 = (2.07 \pm 0.10) 10^{-2} \text{ cm}^{-1}$$

σ^+

σ^-

$$\Delta E_2 = (2.28 \pm 0.08) 10^{-2} \text{ cm}^{-1}$$

$$\Delta E_4 = (2.30 \pm 0.10) 10^{-2} \text{ cm}^{-1}$$

$$\Delta E'_1 = (0.51 \pm 0.08) 10^{-2} \text{ cm}^{-1}$$

$$\Delta E'_3 = (0.48 \pm 0.10) \text{ cm}^{-1}$$

On vérifie aussi les égalités déduites de l'analyse précédente et l'accord avec les valeurs "théoriques".

$$\Delta E_1 = \Delta E_3 = 3 \left[\frac{c_s - c_p}{2} - \frac{4}{5} B \right] = 2.06 10^{-2} \text{ cm}^{-1}$$

$$\Delta E_2 = \Delta E_4 = 3 \left[\frac{c_s - c_p}{2} - \frac{6}{5} B \right] = 2.32 10^{-2} \text{ cm}^{-1}$$

$$\Delta E'_1 = \Delta E'_3 = 2 \left[\frac{6c_s - 6c_p}{2} - \frac{4}{5} B \right] = 6c_s - \left(c_p + \frac{8}{5} B \right)$$

Or par définition pour le ${}^6\text{Li}$ en l'absence de champ magnétique

$$a_J = \frac{3}{2} = \frac{1}{3} \left(c_p + \frac{8}{5} B \right)$$

et l'écart entre composantes extrêmes $F = \frac{5}{2}$, $F = \frac{1}{2}$ est $4 \frac{a_J}{2} = \frac{4}{3} \left(c_p + \frac{8}{5} B \right)$. Cet écart n'a pas été mesuré et est inférieur à 5MHz soit $\left| c_p + \frac{8}{5} B \right| \leq 1 10^{-4} \text{ cm}^{-1}$.

D'où une valeur "théorique":

$$\Delta E'_1 = \Delta E'_3 = (51 \pm 1) 10^{-4} \text{ cm}^{-1}$$

Une dernière information à extraire de nos spectres est le déplacement isotopique. En effet il correspond simplement ici à $E_3 - E'_3$ et $E_1 - E'_1$ en prenant l'hypothèse simplificatrice que γ et a sont les mêmes pour l'isotope 6 et 7. D'autre part, nous avons ajusté l'échelle de nos spectres en calculant l'écart entre les deux quadruplets hyperfins à partir des valeurs "théoriques" de a et de γ .

$$E_1 - E_2 = 0.2339 \text{ cm}^{-1} = 7013 \text{ MHz}$$

$$E_3 - E_4 = 0.2121 \text{ cm}^{-1} = 6359 \text{ MHz}$$

On trouve alors:

$$E_3 - E'_3 = 10514 \pm 55 \text{ MHz}$$

$$E_1 - E'_1 = 10517 \pm 76 \text{ MHz}$$

en accord avec la valeur trouvée précédemment mais beaucoup moins précise.

B. Préparation de l'état de départ $n = 10$.

Les atomes de lithium en présence d'un champ magnétique de 5T sont portés de l'état excité 2p sur l'état relais diamagnétique ($n = 10, M, K$) grâce à l'étage laser UV (décrit au chapitre III). Pour les raisons évoquées au chapitre II de ce mémoire, selon la transition que l'on veut étudier (vibrationnelle ou rotationnelle) ce rayonnement aura la polarisation π ou σ et la composante sélectionnée sur le multiplet diamagnétique incomplet ($n = 10, M$) sera la plus vibrationnelle ($K = 6$) ou la plus rotationnelle ($K = 0$). Nous sommes ainsi amenés, à étudier les deux transitions :

$$\text{"vibrationnelle"} \quad 2p \ M = 1 \ (\pi) \rightarrow n = 10 \ M = 1 \ K = 6$$

$$\text{"rotationnelle"} \quad 2p \ M = 1 \ (\sigma) \rightarrow n = 10 \ M = 0 \ K = 0$$

B.I. Multiplet diamagnétiques ($n = 10 \quad M = 1$) et ($n = 10 \quad M = 0$).

Deux exemples d'enregistrements des transitions $2p \quad M = 1 \rightarrow n = 10, M$ obtenus en balayant la fréquence du laser UV sont représentés sur la figure (IV.8a) et (IV.9a). Ces deux enregistrements ont été réalisés respectivement, dans le cas d'une polarisation π et σ du rayonnement laser exciteur et pour des intensités respectives du champ magnétique de 5T et 4,7T.

Sur la figure (IV.8a), on ne distingue qu'une seule raie, celle correspondant à la transition :

$$2p \quad M = 1 \rightarrow 10d \quad M = 1$$

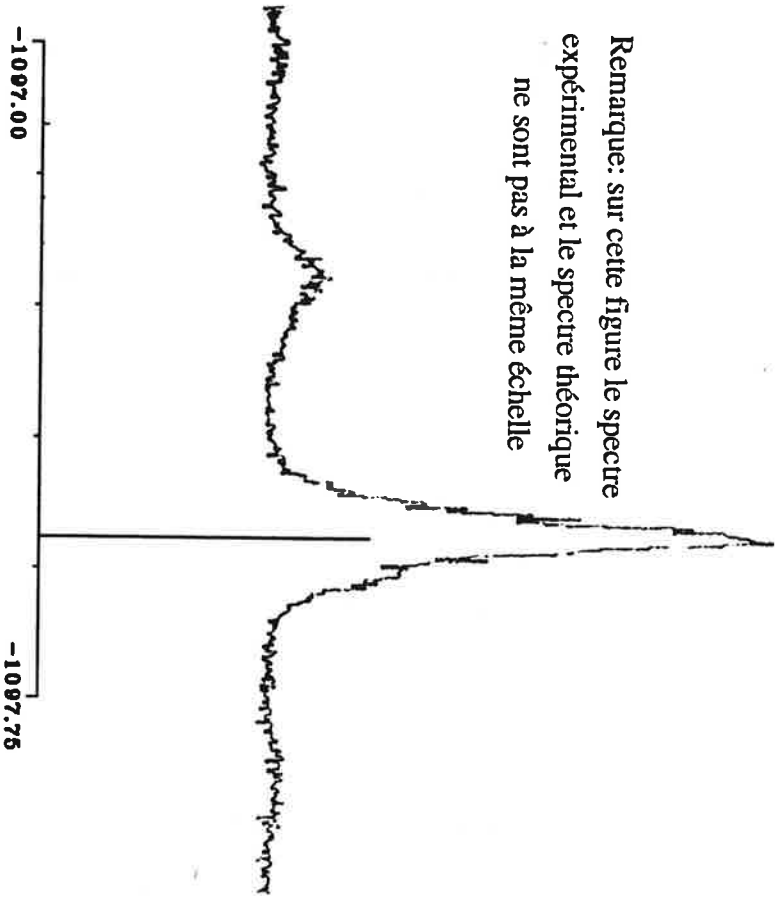
Les composantes du multiplet diamagnétique incomplet ne sont pas excitées. De part et d'autre de la raie 10d excitée apparaissent des raies satellites, dues aux modes spectraux latéraux sur le laser UV, en résonance avec la même transition. Ces raies sont visibles car la raie principale est fortement saturée.

Sur la figure (IV.8b) est représenté le spectre de transition ($2p \quad M = 1 \rightarrow n = 10 \quad M = 1, 5T$) calculé pour les mêmes conditions que le spectre expérimental. Ce spectre confirme la répartition des forces d'oscillateur sur les composantes du multiplet du spectre expérimental; seules les composantes dont les fonctions d'ondes ont un recouvrement important avec la composante sphérique 10d sont atteintes lors de l'excitation, or le défaut quantique de cette composante fait qu'elle ne se mélange pas aux composantes diamagnétiques du multiplet incomplet ($n = 10$) ce qui explique leur faible intensité.

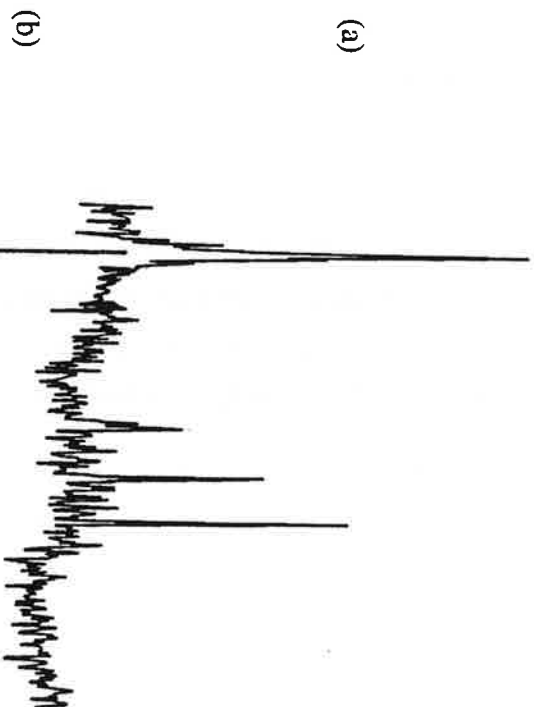
Sur le spectre expérimental de la figure (IV.9a), est représenté le multiplet ($n = 10 \quad M = 0$) excité à partir de l'état ($2p \quad M = 1$) dans des conditions de grande saturation. La raie la plus intense correspond à la raie de transition : ($2p \quad M = 1 \rightarrow 10d \quad M = 0$). Cette raie est très fortement saturée, on peut s'en rendre compte en comparant sa largeur spectrale avec celle de la raie la plus fine du spectre. A cause de la forte saturation de la raie 10d; les composantes diamagnétiques du multiplet $n = 10$ sont visibles sur ce spectre.

Sur la figure (IV.9b) est représenté le spectre de raies calculé ($2p \quad M = 1 \rightarrow n = 10 \quad M = 0, 4,7T$) à la même échelle d'énergie que le spectre expérimental. L'intensité de la raie

Remarque: sur cette figure le spectre expérimental et le spectre théorique ne sont pas à la même échelle



(a)



(b)

FIG(IV.8) Structure de la transition $2p \ M = 1 \rightarrow n = 10 \ M = 1$ en présence d'un champ magnétique de $4,7T$

(a) spectre expérimental
(b) spectre théorique

FIG(IV.9) Structure de la transition $2p \ M = 1 \rightarrow n = 10 \ M = 0$ en présence d'un champ magnétique de $4,7T$

(a) spectre expérimental enregistré dans des conditions de forte saturation
(b) spectre théorique

10d du spectre théorique est divisée par 20 afin de rendre visibles les composantes diamagnétiques d'intensités très faibles. La répartition de l'intensité sur les raies de ce spectre est (comme précédemment) justifiée par le défaut quantique de la composante 10d.

L'intensité relative des raies diamagnétiques du multiplet incomplet des spectres expérimental et théorique sont en accord. Les positions en énergie des raies expérimentales sont bien reproduites théoriquement sauf celle de la raie diamagnétique la plus vibrationnelle. On pense que cette différence est due à une non linéarité du balayage de la fréquence du laser UV ou à un saut de mode de ce laser.

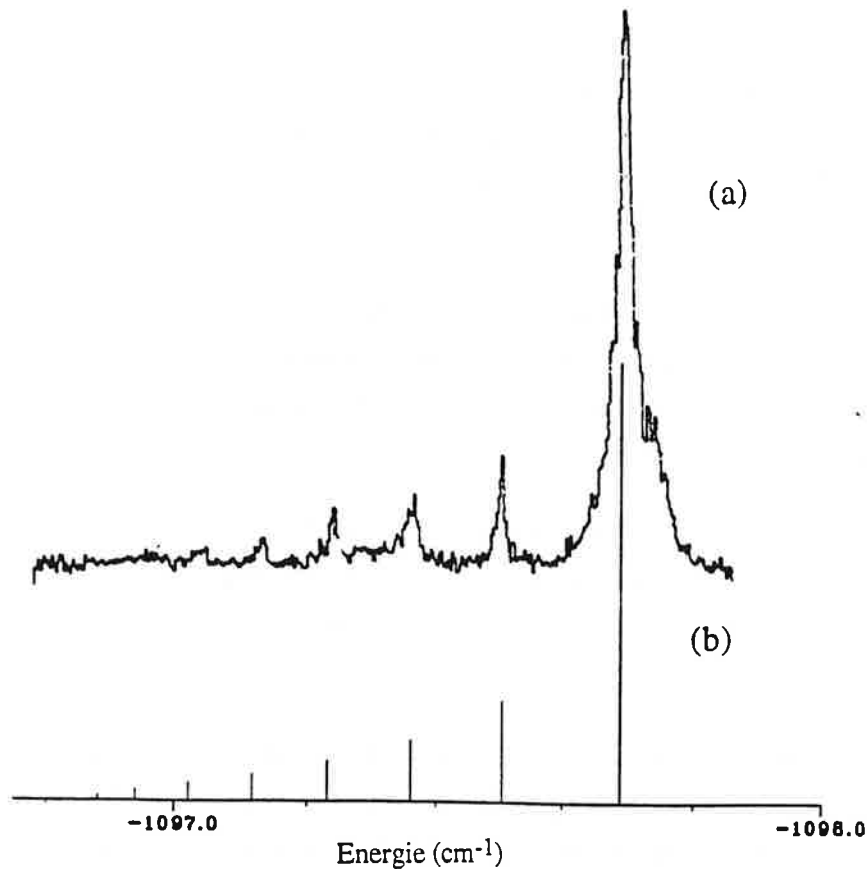
Dans les deux cas d'excitation en polarisation π ou σ , les composantes diamagnétiques du multiplet incomplet ($n = 10, M$) sont défavorisées : presque toute l'intensité ($\sim 95\%$) est accaparée par la composante 10d qui reste en dehors du multiplet incomplet.

En particulier les composantes $K = 6$ et $K = 0$ qui nous intéressent sont très faiblement excitées. Pour résoudre ce problème, on utilise la méthode de Stark Switching (exposée au paragraphe (D.II.2) du chapitre II) dont le principe consiste à appliquer parallèlement au champ magnétique un champ électrique suffisamment intense pour mélanger la composante 10d aux autres composantes du multiplet incomplet diamagnétique ($n = 10, M$).

Nous sommes donc amenés à étudier les transitions $2p, M = 1 \rightarrow n = 10, M = 1$ et $2p, M = 1 \rightarrow n = 10, M = 0$ en présence d'un champ électrique et d'un champ magnétique parallèles.

B.II. Multiplets diamagnétiques ($n = 10, M$) en présence d'un champ électrique.

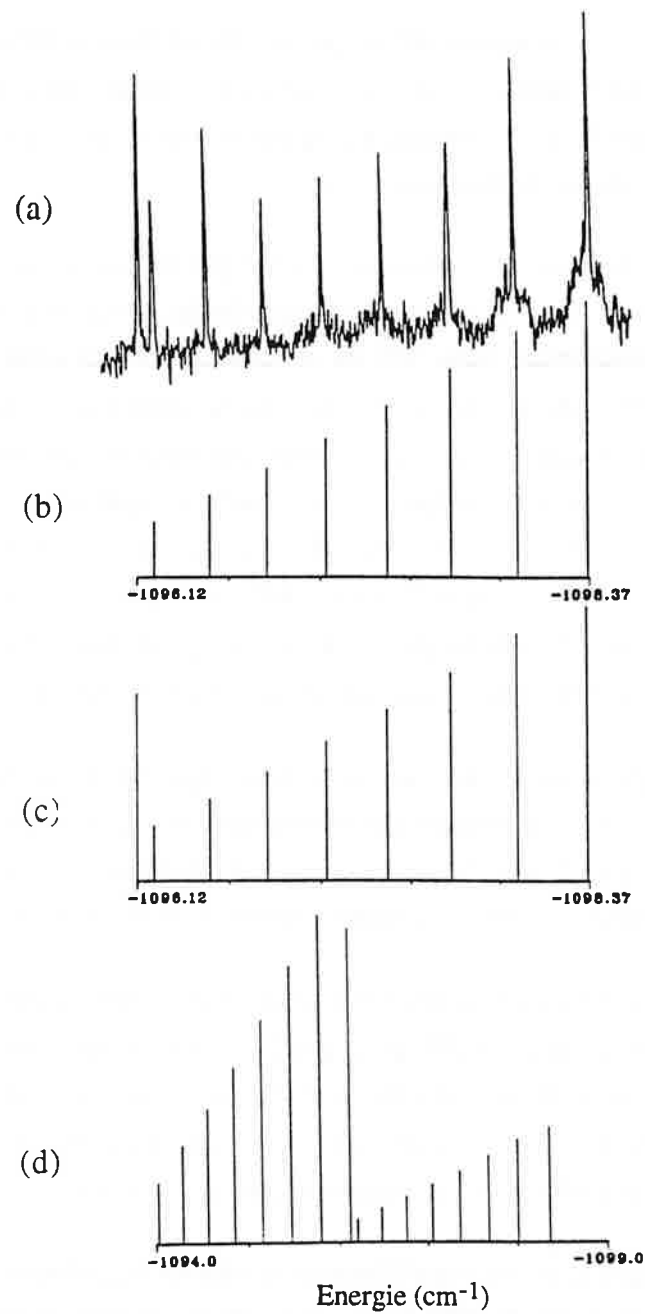
Le spectre expérimental représenté sur la figure (IV.10a) correspond à la transition $2p, M = 1 (\pi) \rightarrow n = 10, M = 1$. Ce spectre a été réalisé en présence d'un champ électrique de 70V/cm appliqué parallèlement au champ magnétique de 5T. L'intensité du signal ne nous permet d'observer que 6 composantes du multiplet qui en comporte normalement 8.



FIG(IV.10) Structure du multiplet $n = 10$ $M = 1$ excité à partir de l'état $2p$ en présence d'un champ magnétique (5T) et d'un champ électrique (70V/cm) parallèles.

Le spectre calculé pour les mêmes conditions est représenté sur la figure (IV.10b). Il y a un bon accord entre les deux spectres pour les positions d'énergie des différentes raies. En ce qui concerne les intensités, la mesure relative précise n'est pas possible à cause de l'instabilité de l'intensité du rayonnement ultraviolet excitateur. Un dispositif normalisant le signal à l'intensité du laser donnerait des résultats certainement meilleurs.

Le spectre expérimental de la figure (IV.11a) correspond à la transition $2p$ $M = 1$ (σ) \rightarrow $n = 10$ $M = 0$. Ce spectre a été enregistré en présence d'un champ magnétique de 4,7 T et d'un champ électrique de 210V/cm ceci en balayant la fréquence du laser UV dans le sens des énergies croissantes.



FIG(IV.11) Structure de la transition $2p M = 1 \rightarrow n = 10 M'$ en présence d'un champ magnétique (5T) et d'un champ électrique (210V/cm) parallèles.

(a) expérience

(b) théorie ($M' = 0$)

(c) théorie $M' = 0$ et la raie la plus roationnelle du multiplet $n = 10 M' = 1$

(d) $M' = 1$ et $M' = 0$ sont superposés.

Sur la figure (IV.11b) est représenté le spectre calculé pour la même transition. Ce spectre rend bien compte des 8 raies les plus basses en énergie du spectre expérimental, dont les positions en énergie sont bien reproduites. En ce qui concerne les intensités l'accord est moins bon à cause de l'instabilité de l'intensité laser.

La première raie du spectre expérimental n'est pas reproduite grâce à ce spectre calculé. Cette raie correspond à la raie la plus vibrationnelle du multiplet $n = 10 \quad M = 1$. Son excitation est due au rayonnement laser UV de polarisation π qui n'est pas totalement supprimé par la lame demi-onde placée sur la trajet du faisceau laser. La présence d'une fraction de ce rayonnement suffit pour exciter cette composante qui est l'une des plus intenses du multiplet $n = 10 \quad M = 1$. Sur la figure (IV.11d) on représente le spectre calculé pour les deux transitions $2p \quad M = 1 \rightarrow n = 10 \quad M = 1$ et $2p \quad M = 1 \rightarrow n = 10 \quad M = 0$ en tenant compte du terme paramagnétique $\hbar\omega_c/2 = 2,2 \text{ cm}^{-1}$ qui explique le décalage en énergie de ces deux multiplets. La raie la plus haute en énergie du multiplet ($n = 10 \quad M = 1$) coïncide à $0,88 \text{ cm}^{-1}$ avec la raie la plus basse du multiplet ($n = 10 \quad M = 0$).

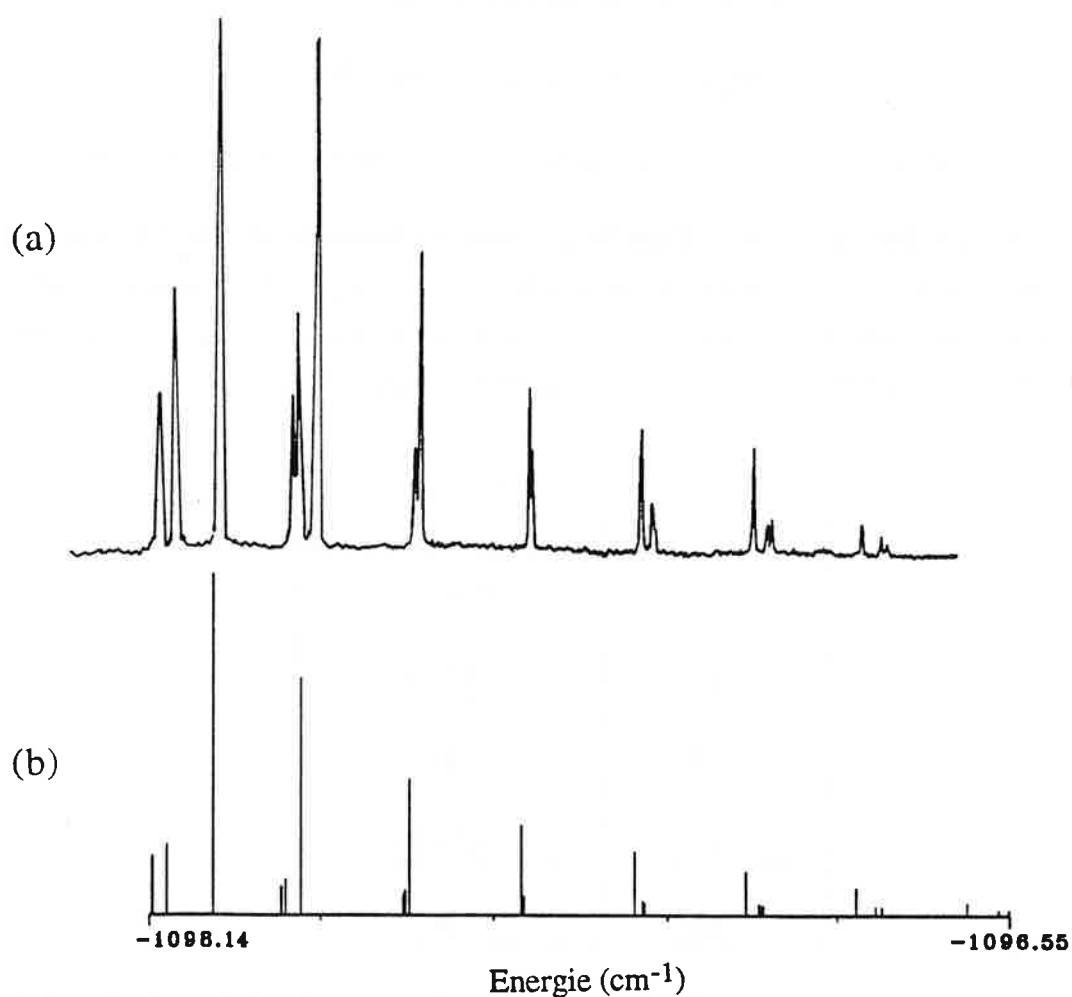
Pour rendre compte de toutes les raies observées expérimentalement, sur le spectre de la figure (IV.11a) ; on représente en parallèle avec le spectre expérimental, le multiplet ($n = 10 \quad M = 0$) et la composante la plus basse en énergie du multiplet ($n = 10 \quad M = 1$) sur la même figure (IV.11c) en supposant 80 % de polarisation σ et 20 % de polarisation π .

En conclusion, l'application lors des expériences d'un champ électrique de 200V/cm parallèlement au champ magnétique suffit pour que l'interaction Stark soit beaucoup plus importante que l'interaction coulombienne du au coeur atomique du lithium. Ceci a pour conséquence la disparition de la composante 10d qui se répartit sur toutes les composantes du multiplet qui sont alors excitées avec des intensités plus importantes.

Le champ électrique appliqué parallèlement au champ magnétique doit être annulé avant l'arrivée de l'impulsion laser du 3^{ème} étage qui excite les atomes de l'état relais $n = 10$ sur les états de Rydberg élevés puisque l'étude de cette transition doit être faite en champ magnétique seul. Le test de la remise à zéro du champ électrique ne peut se faire qu'en champ magnétique nul. Nous avons de ce fait été amenés à enregistrer des multiplets Stark que l'on présente dans le paragraphe qui suit.

B.III. Multiplet Stark ($n = 10$, M)

L'excitation des composantes du multiplet Stark ($n = 10$, M) en polarisation σ à partir de l'état $2P_{3/2}$ de l'atome de lithium en présence d'un champ électrique de 150V/cm est réalisée en balayant la fréquence du rayonnement laser UV. Ceci a permis d'enregistrer le spectre de la figure (IV.12a).



FIG(IV.12) Ce spectre représente les multiplets ($n=10$, M) excités en polarisation σ à partir de l'état $2p_{3/2}$ en présence d'un champ électrique de 150V/cm

(a) expérience

(b) théorie

L'intensité du champ électrique utilisé (150 V/cm) est suffisante pour mélanger la composante 10d au multiplet Stark incomplet. Tous les états Stark ont alors un recouvrement important avec la composante sphérique 10d, qui est responsable de leur intensité.

Ce spectre comporte les raies suivantes :

$$(2P_{3/2} \ M = 0) \rightarrow (n = 10 \ M = 1)$$

$$(2P_{3/2} \ M = 1) \rightarrow (n = 10 \ M = 0)$$

$$(2P_{3/2} \ M = 1) \rightarrow (n = 10 \ M = 2)$$

Ces trois spectres se superposent avec des poids différents, pour les raisons suivantes :

- Lors de l'excitation σ ; de l'état $2P_{3/2}$ à partir de l'état fondamental $2S_{1/2}$, les règles de sélection dipolaire électrique entraînent des peuplement inégaux des états ($2P_{3/2} \ m_J$) qui composent l'état excité. La population de chacune de ces composantes est proportionnelle à $A^2 = |\langle 2s \ J = 1/2 \parallel C^{(1)} \parallel 2p \ J = 3/2 \rangle|^2$ et est résumée dans la tableau suivant :

$2P_{3/2} \ m_J =$	peuplement à partir de l'état 2s
3/2	$A^2 / 4$
1/2	0
-1/2	$A^2 / 12$
-3/2	0

- La décomposition de chaque état ($2P_{3/2} \ m_J$) sur la base des états $|n=2, l=1, s=1/2, m_l, m_s\rangle$ se fait en calculant les coefficients de Clebsch Gordan. Les coefficients de cette décomposition sont donnés dans le tableau suivant pour chaque état ($2P_{3/2} \ m_J$):

$m_l m_s \rightarrow$ m_j \downarrow	1 1/2	1 -1/2	0 1/2	0 -1/2	-1 1/2	-1 -1/2
3/2	1	0	0	0	0	0
1/2	0	1/√3	√2/√3	0	0	0
-1/2	0	0	0	√2/√3	1/√3	0
-3/2	0	0	0	0	0	1

La population de chaque état $|n=2, l=1, s=1/2, m_l \text{ donné}, m_s >$ lors de l'excitation $2S_{1/2} \rightarrow 2P_{3/2}$ est donc déduite des deux tableaux précédents et est résumée ci après:

m_l	population
1	$A^2/4$
0	$2/3 \times A^2/12 = A^2/18$
-1	$1/3 \times A^2/12 = A^2/36$

Lors de l'excitation $2P_{3/2} m_l \rightarrow n = 10 m'_l$ en polarisation σ , les règles de sélection dipolaires électriques n'autorisent que les transitions telles que $m'_l = m_l \pm 1$. Lors de cette excitation on a superposition avec des poids différents, donnés par le tableau qui précède, de toutes les raies d'excitation correspondant aux transitions suivantes:

- (1) $2P_{3/2} m_l = 1 \rightarrow n = 10 m'_l = 0$
- (2) $2P_{3/2} m_l = 1 \rightarrow n = 10 m'_l = 2$

- (3) $2P_{3/2} m_l = 0 \rightarrow n = 10 m'_l = 1$
 (4) $2P_{3/2} m_l = 0 \rightarrow n = 10 m'_l = -1$
 (5) $2P_{3/2} m_l = -1 \rightarrow n = 10 m'_l = 0$
 (6) $2P_{3/2} m_l = -1 \rightarrow n = 10 m'_l = -2$

En tenant compte du fait que l'interaction Stark ne dépend que de la valeur absolue de m'_l et que tous les états ($2P_{3/2} m_l$) sont dégénérés en énergie, on déduit que les spectres cités plus haut sont identiques deux à deux:

$$(1) \leftrightarrow (5) \quad (2) \leftrightarrow (6) \quad (3) \leftrightarrow (4)$$

Lors de l'excitation on a donc superposition des spectres (1), (2) et (3) avec les poids suivants:

$$\begin{aligned} (1) &\rightarrow \frac{A^2}{4} + \frac{A^2}{36} = \frac{5}{18}A^2 = C \\ (2) &\rightarrow \frac{A^2}{4} + \frac{A^2}{36} = \frac{5}{18}A^2 = C \quad \text{avec : } C = \frac{5}{18}A^2 \\ (3) &\rightarrow \frac{A^2}{18} + \frac{A^2}{18} = \frac{1}{9}A^2 = \frac{2}{5}C \end{aligned}$$

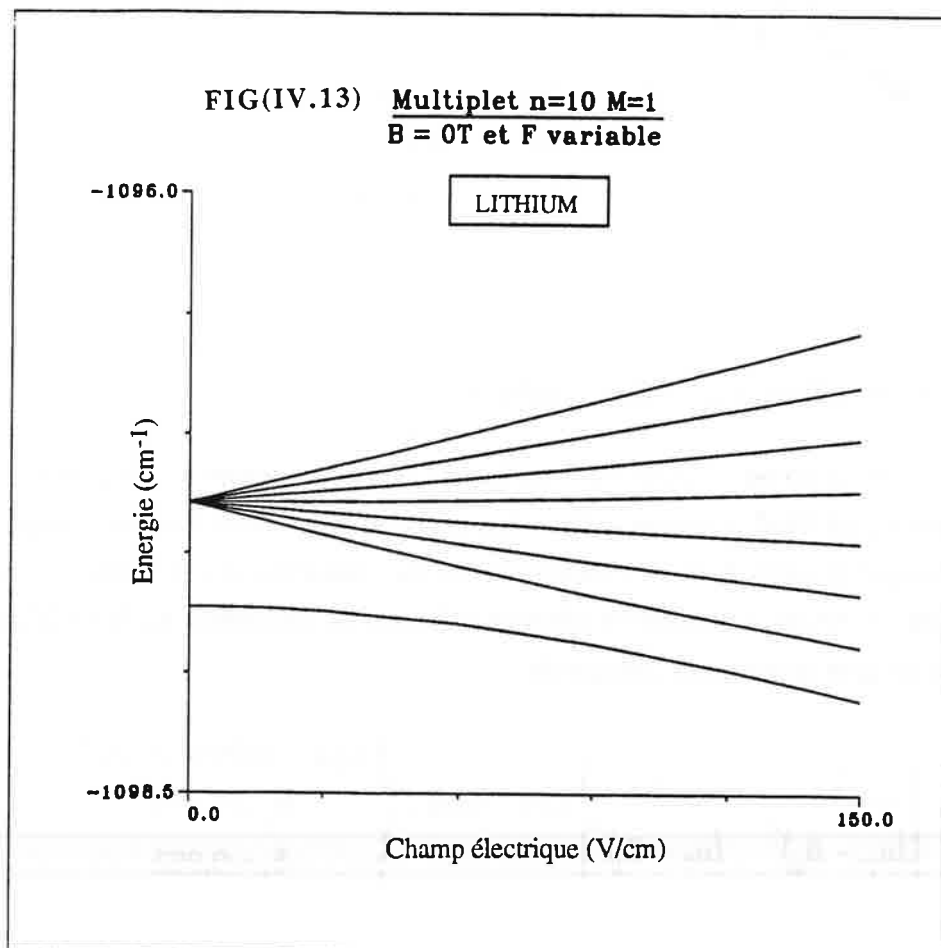
Sur la figure (IV.12b) sont représentés les trois multiplets calculés par diagonalisation de l'interaction Stark ($F = 150 \text{ V/cm}$) dans chacun des sous espaces ($n = 10$, $M = 0, 1, 2$) et excités à partir de l'état $2P_{3/2}$. La superposition de ces trois spectres calculés est faite en tenant compte du facteur multiplicatif 0,25 qui intervient pour les intensités des composantes du multiplet ($n = 10$, $M = 1$).

Les positions en énergie des raies expérimentales sont bien reproduites théoriquement, ceci n'est pas le cas pour leurs intensités à cause de l'instabilité de la puissance du rayonnement UV lors du balayage, de la saturation des raies intenses du spectre et de la résolution laser qui n'est pas suffisante pour séparer toutes les raies excitées. A la place de deux raies non séparées, on observe une seule raie élargie ayant pour intensité la somme des intensités des deux raies non séparées.

B.IV. Vérification de l'état de départ obtenu par Stark Switching.

On accorde la fréquence du laser UV sur l'une des composantes du multiplet Stark incomplet ($F = 150 \text{ V/cm}$) ou sur la composante $10d$ puis on annule adiabatiquement le champ électrique F ; et on excite les atomes sur des états de Rydberg élevés avec le troisième étage laser.

La figure (IV.13) représente l'évolution de chacune des composantes du multiplet Stark incomplet ($n = 10 \text{ M} = 1$) et de celle de la composante $10d$ quand F croît de 0 à 150 V/cm . La composante $10d$ non dégénérée présente un effet Stark quadratique, alors que les composantes dégénérées à $F = 0$, évoluent linéairement avec le champ électrique. A $F = 150 \text{ V/cm}$, la composante $10d$ rejoint le multiplet Stark incomplet et se mélange avec toutes ses composantes.



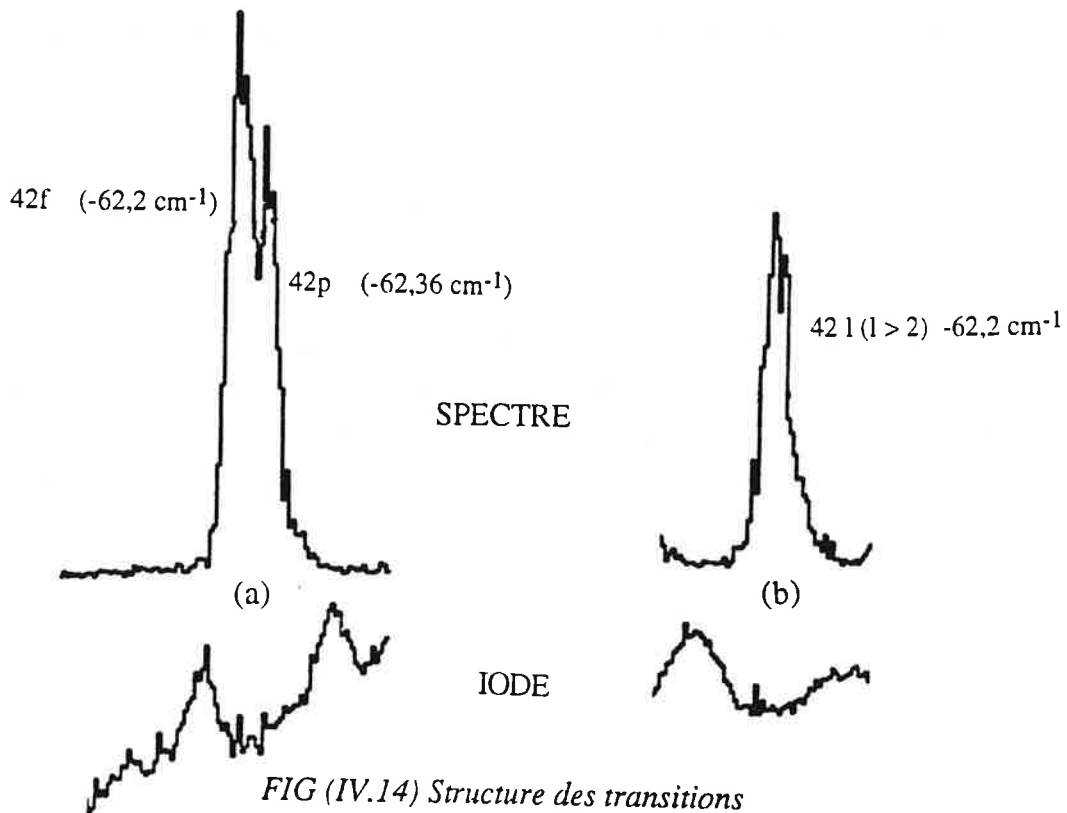


FIG (IV.14) Structure des transitions

(a) $10d \rightarrow n = 42$

(b) $10l > 2 \rightarrow n = 42$

Deux cas différents sont alors possibles:

1°) Si on accorde la fréquence du laser UV sur la composante la plus basse en énergie du multiplet Stark complet à 150V/cm et qu'on fasse décroître adiabatiquement le champ électrique jusqu'à $F = 0$, l'impulsion IR du troisième étage induit la transition suivante : $10d \rightarrow np, nf$. On observe alors en balayant la fréquence du laser IR, les deux composantes np et nf séparées en énergie de :

$$\left[\frac{1}{(n_p - \delta_p)^2} - \frac{1}{(n_f - \delta_f)^2} \right] \text{Ryd} \quad \text{avec : } \begin{cases} \text{Ryd} = 109728,6 \text{ cm}^{-1} \\ \delta_p = 0,054 \\ \delta_f = 0,002 \end{cases}$$

Dans le cas où $n = 42$, cet écart est de : $0,154 \text{ cm}^{-1}$ et la résolution du laser ($< 500 \text{ MHz}$) est suffisante pour séparer les deux raies 42p et 42f. Sur la figure (IV.14a) est représentée la structure de la transition $10d \ M = 1 \rightarrow n = 42$ enregistrée en Stark Switching.

Cette structure comprend deux composantes correspondant à l'excitation des niveaux 42p et 42f. La raie 42p non dégénérée étant peu sensible aux champs électrique parasites (Stark quadratique) est plus fine que la raie 42f qui présente un effet Stark linéaire.

L'élargissement de la raie 42f est la preuve de l'existence d'un champ électrique (faible) lors de l'enregistrement de cette structure. L'origine de ce champ électrique et son éventuelle compensation seront discutées dans le paragraphe qui suit.

2°) Si on accorde la fréquence du laser UV sur une des composantes du multiplet Stark (autre que celle qui redescend sur la raie 10d), à $F = 0$ les atomes se retrouvent sur le niveau ($n = 10, M = 1$) dégénéré constitué des états sphériques ($n = 10, l > 2, M = 1$). L'enregistrement de la structure de la transition ($n = 10, l > 2, M = 1$) $\rightarrow n = 42$ induite par le troisième étage laser est représentée sur la figure (IV.14b).

Cette structure comprend en principe deux composantes correspondant à l'excitation des niveaux 42d et 42 $l > 2$; décalées en énergie de:

$$\left[\frac{1}{(n_p - \delta_p)^2} - \frac{1}{n^2} \right] \text{Ryd} = 0,006 \text{ cm}^{-1}$$

La résolution du rayonnement laser IR ne permet pas de séparer ces deux composantes : on en observe une seule.

Les deux cas 1°) e 2°) constituent une vérification de l'adiabaticité de la décroissance du champ électrique:

- l'observation de deux composantes dans le cas 1°) prouve que l'état le plus bas du multiplet Stark complet (à $F = 150 \text{ v/cm}$) redescend à $F = 0$ sur la composante sphérique 10d.

- l'observation d'une seule composante dans le cas 2°) prouve que l'état du multiplet Stark incomplet redescend à $F = 0$ sur le niveau dégénéré ($n = 10, l > 2, M = 1$).

La largeur des raies excitées avec le troisième étage est la preuve de l'existence d'un champ électrique lors de l'excitation; dans le paragraphe qui suit on discutera ses causes et ses conséquences.

B.V. Champ de Compensation.

Un champ électrique non nul dans la zone d'interaction, lors de l'impulsion laser IR du troisième étage peut avoir plusieurs causes distinctes. Dans notre cas, les causes essentielles sont :

- Champs parasites constants non uniformes (dus aux surfaces des plaques de condensateur de la zone d'interaction non parfaitement conductives)
- Champs parasites rapidement variables (rayonnement des cellules de Pockels des lasers etc)
- Champs résiduels dû à l'impulsion de champ électrique de Stark Switching (champ qui tend vers zéro quand on s'éloigne de l'impulsion).

La configuration de la zone d'interaction (plaques de condensateur permettant l'application d'un champ électrique) ne permet de produire qu'un champ électrique constant longitudinal uniforme. On ne peut donc compenser que le champ résiduel qui est uniforme et un éventuel champ parasite uniforme constant longitudinal. On espère donc que les champs parasites transversaux ou non uniformes ou variables sont faibles (< 100 mV/cm).

L'effet d'un champ électrique sur un état n donné croit comme n^2 ; cet effet augmente donc rapidement avec n . Les états de Rydberg atteints grâce au troisième étage laser étant très excités, ils sont fortement perturbés par un champ électrique même très faible (quelques centaines de mV/cm). Ces états constituent donc une bonne sonde pour tester l'existence de champs électriques lors de l'excitation du troisième étage : le choix de l'intensité du champ électrique de compensation est faite grâce à des expériences sans champ magnétiques semblables à celles décrites au paragraphe 4 de ce chapitre.

La figure (IV.15a) représente la structure de la transition ($10d M = 0 \rightarrow n = 62 M = 1$) enregistrée (sans champ de compensation) en balayant la fréquence du rayonnement laser IR.

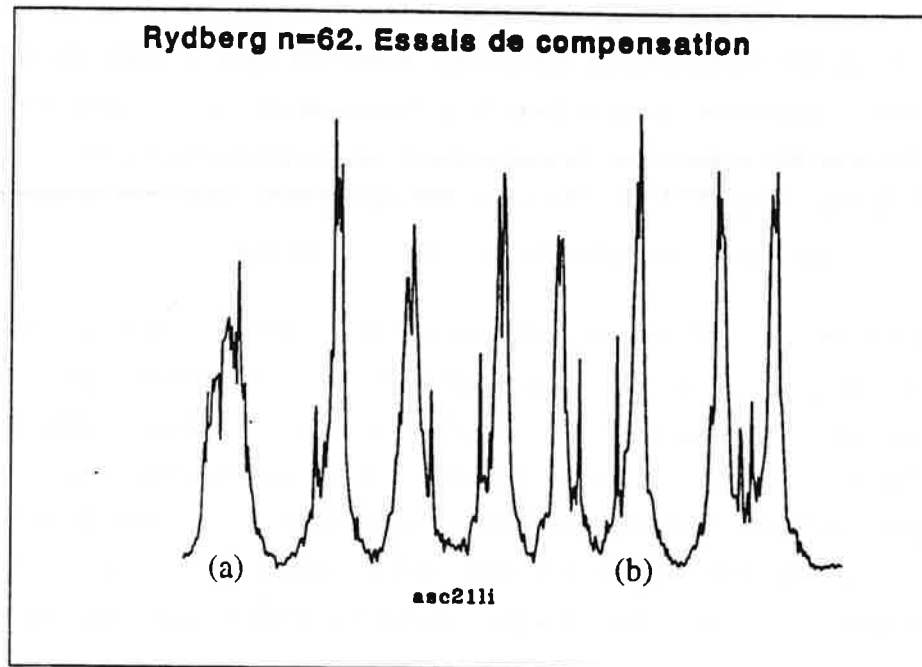


FIG (IV.15) Essais de compensation du champ électrique résiduel de Stark switching sur le Rydberg $n = 62$

(a) sans champ de compensation

(b) avec un champ électrique de compensation de $0,2 \text{ V/cm}$

Cette structure comprend une raie fine correspondant à l'excitation ($10d M = 0 \rightarrow 62p$) et une structure élargie qui constitue la preuve de l'existence d'un champ électrique parasite. Cette structure correspond donc à un multiplet Stark incomplet centré sur la position en champ nul de la composante $62f$. Elle est en réalité composée de 60 raies Stark non résolues par le laser. L'extension du multiplet Stark incomplet ($= 3/2Fn^2$) est tel qu'il inclut la composante $62p$; or cette dernière ne pénètre dans le multiplet que pour une valeur du champ électrique supérieure à la valeur F définie par :

$$\frac{3}{2} F n^2 = \frac{1}{2(n - \delta_f)^2} - \frac{1}{2(n - \delta_p)^2}$$

où δ_p et δ_f sont les défauts quantiques des états p et f de l'atome de lithium. On en déduit que la valeur approximative du champ électrique résiduel est de 0,2 V/cm.

Nous avons fait des essais de compensation de ce champ électrique résiduel en appliquant un champ électrique de différentes intensités dans le sens opposé de celui correspondant à l'impulsion de Stark Switching. La valeur de compensation retenue (celle qui donne la structure centrée sur la composante 62f la plus fine) est de 0,2 V/cm. La structure de la transition ($10d M = 0 \rightarrow n = 62$) enregistrée pour cette valeur de champ électrique de compensation est représentée sur la figure (IV.15b)

La structure centrée sur la composante 62f est plus fine que celle de la figure (IV.15a). D'autre part contrairement à la structure représentée sur cette figure (IV.15a), la raie d'excitation du niveau 62p a une intensité plus faible que celle de la structure (centrée sur 62f sans champ). Cette différence de répartition des intensités entre les deux figures s'explique par le fait qu'en présence du champ électrique parasite (non compensé), l'intensité de la composante 62f en champ nul se répartit sur 60 composante Stark non résolues par le laser, on enregistre alors une "raie" élargie (largeur $3/2 F n^2$) et moins intense que la raie 62p.

Sur la figure (IV.15b) on remarque que même avec le champ électrique de compensation du champ électrique résiduel de Stark Switching; la structure centrée sur 62f reste plus large que la raie 62p puisque plus sensible à un champ électrique parasite. On peut estimer approximativement la valeur maximale de ce champ parasite en faisant l'hypothèse que cette largeur est due (dans sa totalité) à un champ électrique :

$$\frac{\Delta E(62f)}{E(62p) - E(62f)} = 0,5$$

où $\Delta E(62f)$ est la largeur de la structure centrée sur la position 62f en champ nul.

$$\Delta E(62f) = 0,5 [E(62f) - E(62p)] = \frac{3}{2} F_p n^2$$

$$\text{or : } E(62p) - E(62f) = \frac{3}{2} F_p n^2 = \frac{1}{2(n - \delta_p)^2} - \frac{1}{2n^2}$$

on en déduit que :
$$F_p = \frac{0,38}{n^2} \left[\frac{1}{2(n - \delta_p)^2} - \frac{1}{2n^2} \right] \approx 90 \text{ mV/cm}$$

Ce champ électrique parasite même faible, a un effet sur la largeur des raies d'excitation des composantes dégénérées du spectre qui présentent un effet Stark linéaire.

Dans le cas des états de Rydberg très élevés ($n \approx 62$) en champ magnétique de 5T, les effets de coeur atomique du lithium peuvent être complètement négligés devant l'interaction diamagnétique.

- Les états vibrationnels pairs et impairs des multiplets diamagnétiques peuvent être considérés (dans une très bonne approximation) comme dégénérés. Ces états présentent donc un effet Stark linéaire.

- Les états rotationnels pair et impairs sont non dégénérés. Ils présentent un effet Stark quadratique.

C. Spectres Vibrationnels et Rotationnels.

Le dernier étage laser IR (9 - 10 μ m) pulsé, permet de porter les atomes de lithium en présence d'un champ magnétique de 5T, de l'état relais ($n = 10, M, K$) sur des états de Rydberg très élevés (cf figure (II.9) du chapitre II). Temporellement, l'impulsion laser de cet étage arrive à l'instant où l'impulsion de champ électrique de Stark Switching est remise à zéro (cf figure (II.16) du chapitre II).

En balayant la fréquence du rayonnement laser IR exciteur dans une gamme d'énergie s'étendant de la région où le comportement classique est régulier à la région où ce comportement devient complètement chaotique, on est capable de mettre en évidence directement sur le spectre d'excitation enregistré, ces deux régimes de comportement classique distincts et de voir si leur différence (classique) se retrouve quantiquement sur les niveaux d'énergie et leur probabilité d'excitation optique.

Selon la symétrie de l'état relais, le spectre enregistré avec ce troisième étage laser sera appelé "vibrationnel" ou "rotationnel". Les deux études correspondantes seront découplées, on traitera d'abord le cas vibrationnel puis le cas rotationnel.

Dans le cas vibrationnel, le rayonnement laser IR polarisé en π excite les atomes de l'état relais ($n = 10, M = 1, K = 6$) sur des états diamagnétiques appartenant à des multiplets de ($n > 39, M = 0$).

Dans le cas rotationnel, le rayonnement laser IR polarisé en σ excite les atomes de l'état relais ($n = 10, M = 1, K = 0$) sur des états diamagnétiques appartenant à des multiplets de nombre quantique principal $n > 38$, et de moment cinétique $M = \pm 1$. Les deux séries d'états $M = 1$ et $M = -1$ sont décalés en énergie de $2\hbar\omega_C$.

C.I. Spectre Vibrationnel.

C.I.1. Résultats Expérimentaux.

Pour mettre en évidence clairement les différences d'allures du spectre d'excitation optique dans les deux régions d'énergie correspondant à des comportements classiques distincts, nous avons balayé la fréquence du laser IR dans ces deux régions et nous avons enregistré le spectre d'excitation optique du système dans une gamme d'énergie qui s'étend de -80 à -20 cm^{-1} .

La valeur de l'intensité du champ magnétique utilisée lors de cette expérience déterminée par la méthode exposée au 1^{er} paragraphe de ce chapitre vaut environ 4,9 T.

La linéarité du balayage en fréquence du laser est assurée par un sigmamètre (cf chapitre III). La dynamique de balayage en fréquence automatique du laser IR étant limitée à $\approx 30 \text{ GHz}$ (1 cm^{-1}); la longueur en fréquence des spectres enregistrés (sans saut de mode du F.P.E de la cavité) est limitée à cette valeur. D'autre part les problèmes d'acquisition du signal (non expliqués) rencontrés lors de cette expérience nous ont contraints à enregistrer des spectres de longueur en fréquence parfois inférieure à cette valeur.

Le nombre de spectres enregistrés et traités avant d'être raccordés est de 81. Quelques uns de ces spectres sont présentés (avant d'être traités) sur la figure (IV.16) en parallèle avec le spectre d'absorption de l'iode moléculaire enregistré en même temps. L'élargissement des raies de l'iode est du à la présence d'air dans la cellule à iode, ceci ne favorise pas le dépouillement des spectres enregistrés.

Pour pouvoir raccorder deux spectres successifs, les plages de balayage en fréquence du rayonnement laser lors de leur enregistrement se recouvrent. Ce raccord est plus facile à faire quand une raie de l'iode (cf spectres (c) et (d) de la figure (IV.16)) ou une raie du spectre (cf spectres (a) et (b) de la figure (IV.16)) se retrouve sur la fin de l'un et le début de l'autre des deux spectres à raccorder.

L'enregistrement simultané d'au moins deux raies de l'iode (répertoriées dans l'atlas de l'iode) sur un spectre permet de déduire une échelle d'énergie absolue pour le spectre. Une échelle qui relie un canal de l'enregistrement (cf paragraphe (C.II) du chapitre III) à l'énergie est donnée par la relation suivante :

$$\frac{E_{I2} - E_{I1}}{C_{I2} - C_{I1}}$$

où E_{I_n} et C_{I_n} sont respectivement l'énergie et le numéro de canal de la raie de l'iode n .

Sur certains spectres (cf spectres (h) et (i) de la figure (IV.16)), il n'existe qu'une seule raie de l'iode répertoriée, ceci rend impossible l'utilisation de la méthode précédente pour déduire une échelle d'énergie pour ces spectres. Deux situations peuvent alors se présenter :

- Soit une raie du spectre est déjà pointée sur le spectre précédent, et avec la raie de l'iode on déduit une échelle :

$$\frac{E_I - E_S}{C_I - C_S}$$

où E_I est l'énergie de la raie d'iode, E_S celle de la raie (pointée précédemment) du spectre, C_I et C_S les numéros des canaux respectifs de ces deux raies.

- Soit aucune raie du spectre n'est déjà pointée et on ne peut alors déduire une échelle d'énergie. Dans ce cas on suppose que le balayage en fréquence du laser IR est linéaire et on considère que l'échelle d'énergie du spectre est dans une bonne approximation identique à celle du spectre qui le précède.

La correspondance entre deux énergies E_I (iode) et E_S (énergie absolue du spectre) est donnée par la relation suivante :

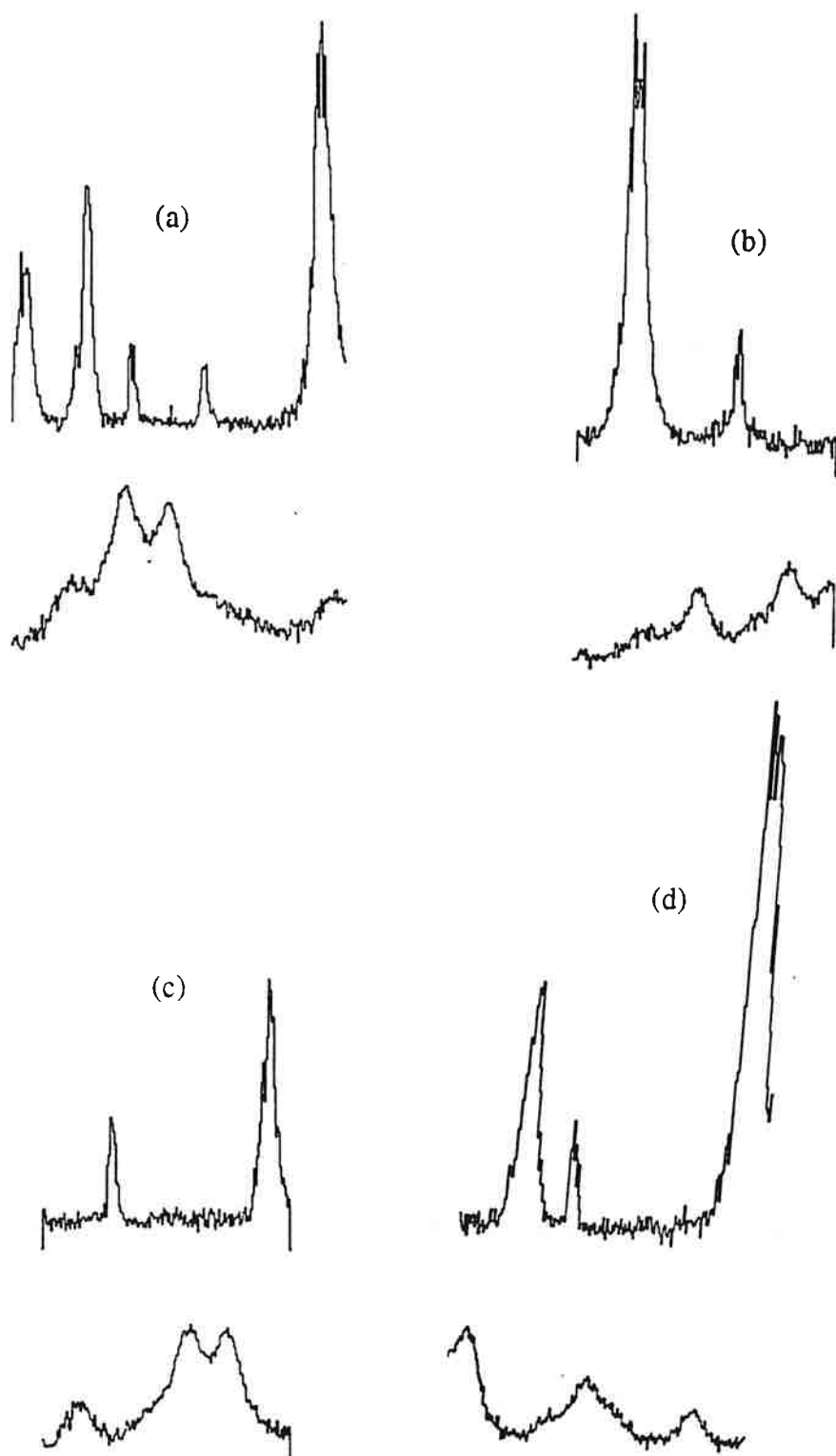


FIG (IV.16) Quelques spectres bruts (sans traitement) sont présentés simultanément avec le spectre de l'iode

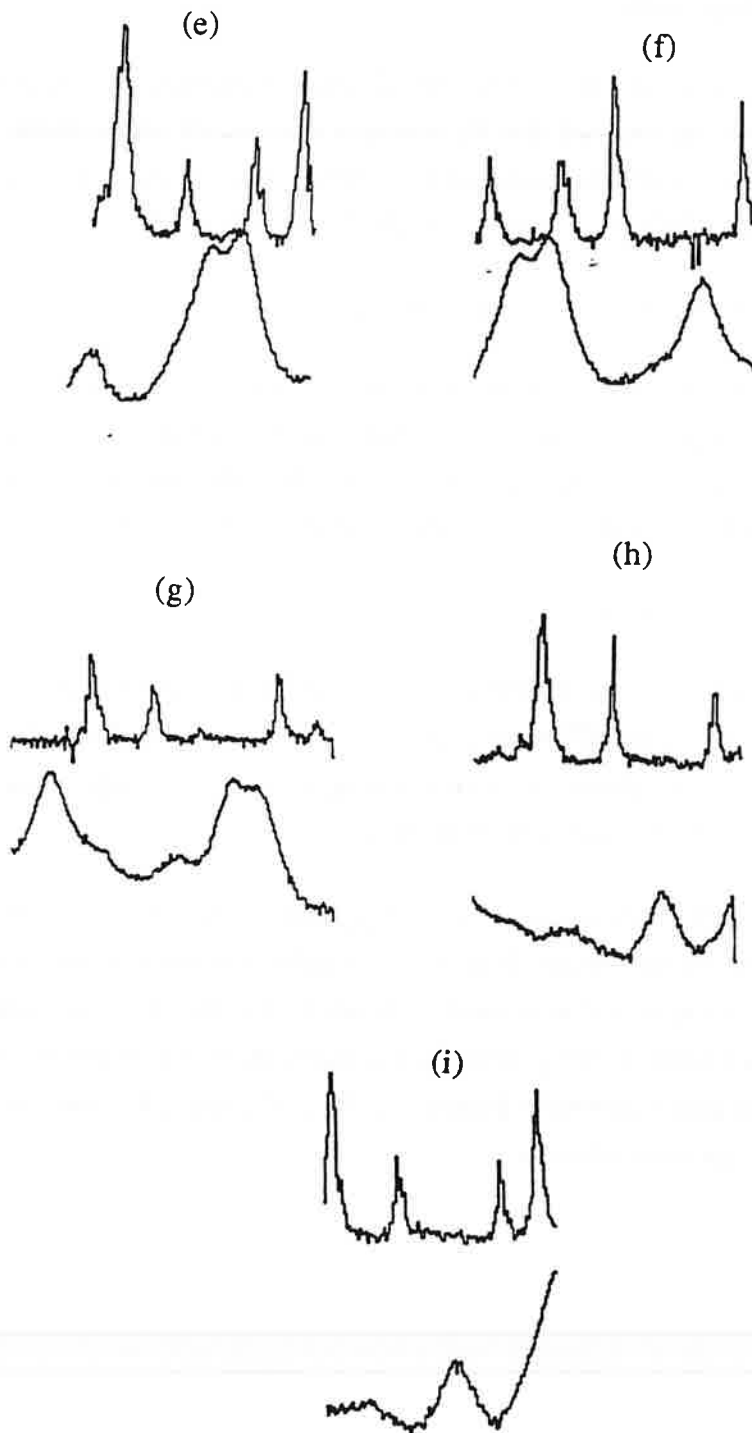


FIG (IV.16) Suite: Quelques spectres bruts (sans traitement) sont présentés simultanément avec le spectre de l'iode

$$(IV.1) \quad E_S = (E_I - 3 \Delta E_V) + E_{10}$$

où $\Delta E_V = 4155,29 \text{ cm}^{-1}$ est le décalage Raman vibrationnel de la molécule d'hydrogène, $E_{10} = 1097,2386 \text{ cm}^{-1}$ l'énergie du niveau profond ($n = 10, M = 1, K = 6$) de la transition induite par le troisième étage laser.

Grâce à cette relation, on déduit l'énergie absolue de chacune des raies du spectre d'excitation vibrationnel. Le raccord des 81 spectres enregistrés séparément, a permis d'obtenir le spectre "vibrationnel" final présenté sur la figure (IV.17) avec l'échelle d'énergie correspondante ainsi que l'échelle du paramètre d'échelle ϵ ($\epsilon = E \gamma^{-2/3}$).

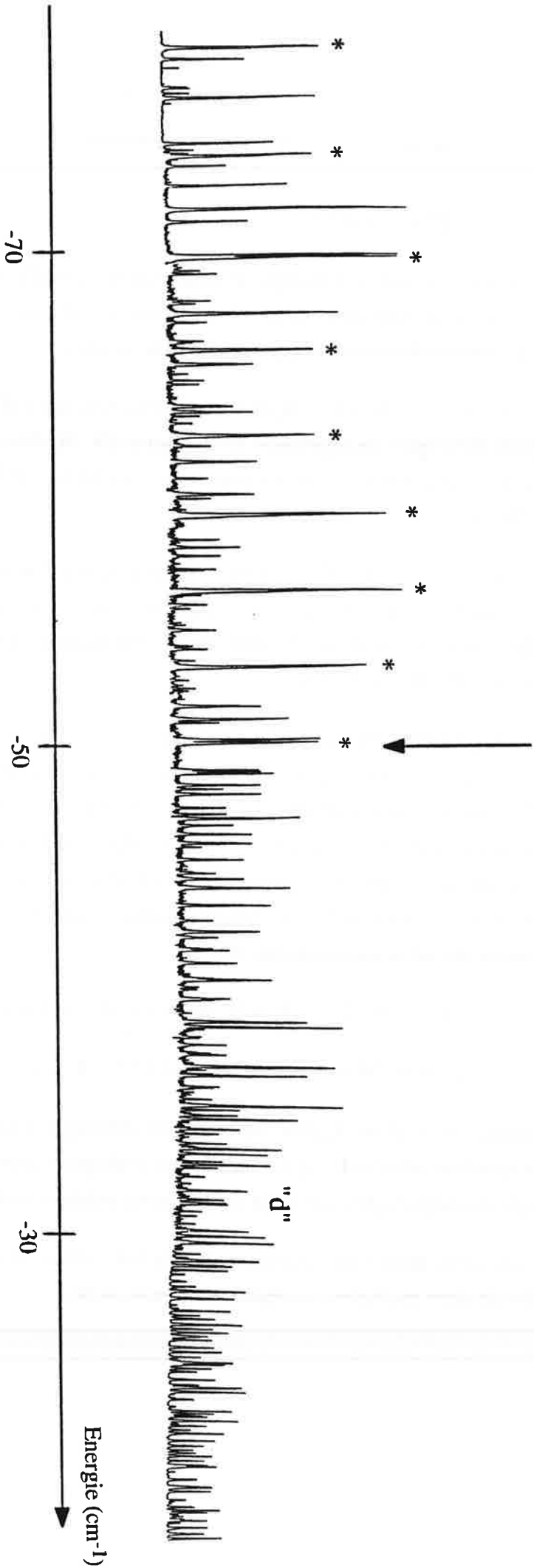
C.I.2. Analyse du Spectre Expérimental.

L'observation du spectre expérimental de la figure (IV.17) permet de distinguer deux régions d'énergie d'aspects différents. Ces deux régions sont délimitées par la flèche portée sur le spectre. La valeur d'énergie qui délimite ces deux régions du spectre est : $E = -50 \text{ cm}^{-1}$, elle correspond à la valeur -0,3 du paramètre d'échelle $\epsilon = E \gamma^{-2/3}$.

$$\epsilon < -0,30 \quad (E < -50 \text{ cm}^{-1})$$

Dans cette partie du spectre, la densité de raies est faible. Cette région correspond à la région d'inter n - mixing, où les différents multiplets diamagnétiques s'interpénètrent sans se perturber intensément. Dans chaque multiplet diamagnétique, il n'y a que trois ou quatre composantes excitées. Ce sont les plus vibrationnelles.

Les raies les plus intenses de cette région du spectre correspondent à l'excitation de la composante la plus élevée en énergie de chaque multiplet. Les raies repérées par * dans cette région du spectre sont approximativement distantes de $3,4 \text{ cm}^{-1}$. Ces raies sont les plus vibrationnelles des multiplets diamagnétiques. En particulier, on observe une grande simplification du spectre dans l'intervalle d'énergie $[-60, -52] \text{ cm}^{-1}$. Sur tout cet intervalle d'énergie, seules 3 raies sont très intenses.



FIG(IV.17) spectre "vibrationnel" ($B = 4,9 \text{ T}$) obtenu après raccord des 81 spectres enregistrés

$$\varepsilon > -0,30 \quad (E > -50\text{cm}^{-1})$$

A partir de cette valeur d'énergie, le spectre prend une allure complexe. La densité de raies du spectre augmente subitement ; il n'y a plus de raies très dominantes, toutes les composantes d'un multiplet diamagnétique donné sont excitées.

Pour mettre en évidence de façon frappante la différence d'aspect du spectre dans ces deux régions d'énergie ; on représente sur la figure (IV.18) deux spectres (a) et (b) à la même échelle d'énergie et d'intensité. Le spectre (a) s'étend de -70 à -60 cm^{-1} et le spectre (b) de -30 à -20 cm^{-1} .

Dans la zone d'énergie $E < -50 \text{ cm}^{-1}$, il est possible d'attribuer les raies les plus intenses aux multiplets diamagnétiques dont elles font partie. Par multiplet donné, ne sont excitées que les composantes qui ont un pourcentage important de la symétrie parabolique de l'état de relais ($n = 10, M = 1, K = 6$).

Sur la figure (IV.19) on représente le spectre dans cette région d'énergie avec l'identification des raies. La première raie du spectre correspond à l'excitation de la composante la plus vibrationnelle du multiplet $n = 37, M = 1$ et le dernier doublet de ce spectre, dont la position d'énergie est à -50 cm^{-1} délimite les deux régions d'aspects différents du spectre, est constitué de la raie la plus vibrationnelle du multiplet $n = 45, M = 1$ et de la deuxième raie vibrationnelle du multiplet diamagnétique $n = 44, M = 1$. Il correspond donc à l'excitation des deux transitions suivantes:

$$(n = 10, M = 1, K = 6) \rightarrow (n = 45, M = 1, K_{\text{MAX}})$$

$$(n = 10, M = 1, K = 6) \rightarrow (n = 44, M = 1, K_{\text{MAX}} - 1)$$

A cette position, on a donc égalité entre l'écart d'énergie coulombienne entre deux composantes de même numéro K appartenant à deux multiplets diamagnétiques successifs et l'écart d'énergie diamagnétique entre deux composantes voisines d'un même multiplet.

L'écart entre deux raies correspondant à l'excitation des composantes les plus vibrationnelles de deux multiplets successifs est d'environ de:

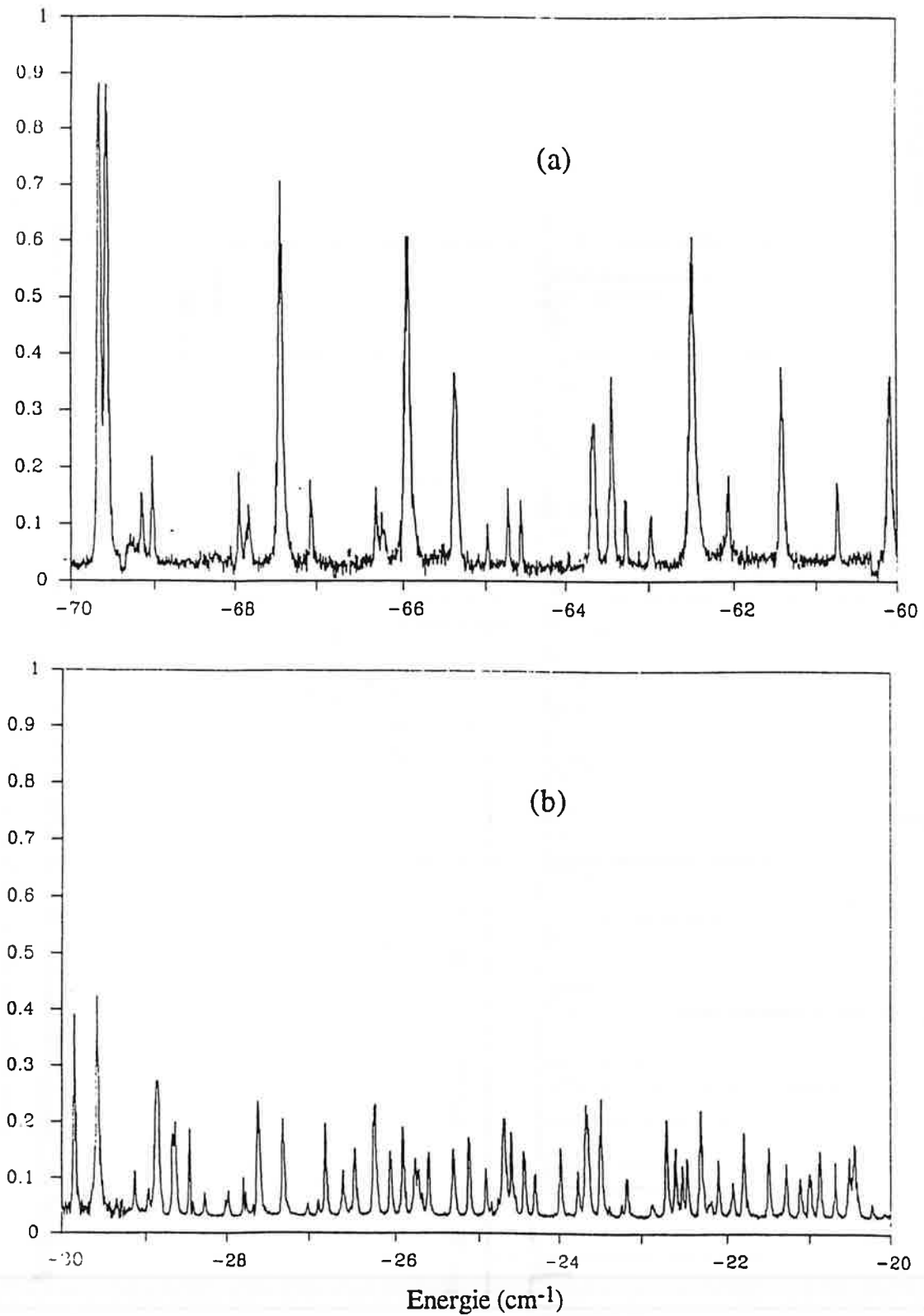


FIG (IV.18) spectre vibrationnel dilaté dans deux intervalles d'énergie:

(a) [-70 -60] cm⁻¹

(b) [-30 -20] cm⁻¹

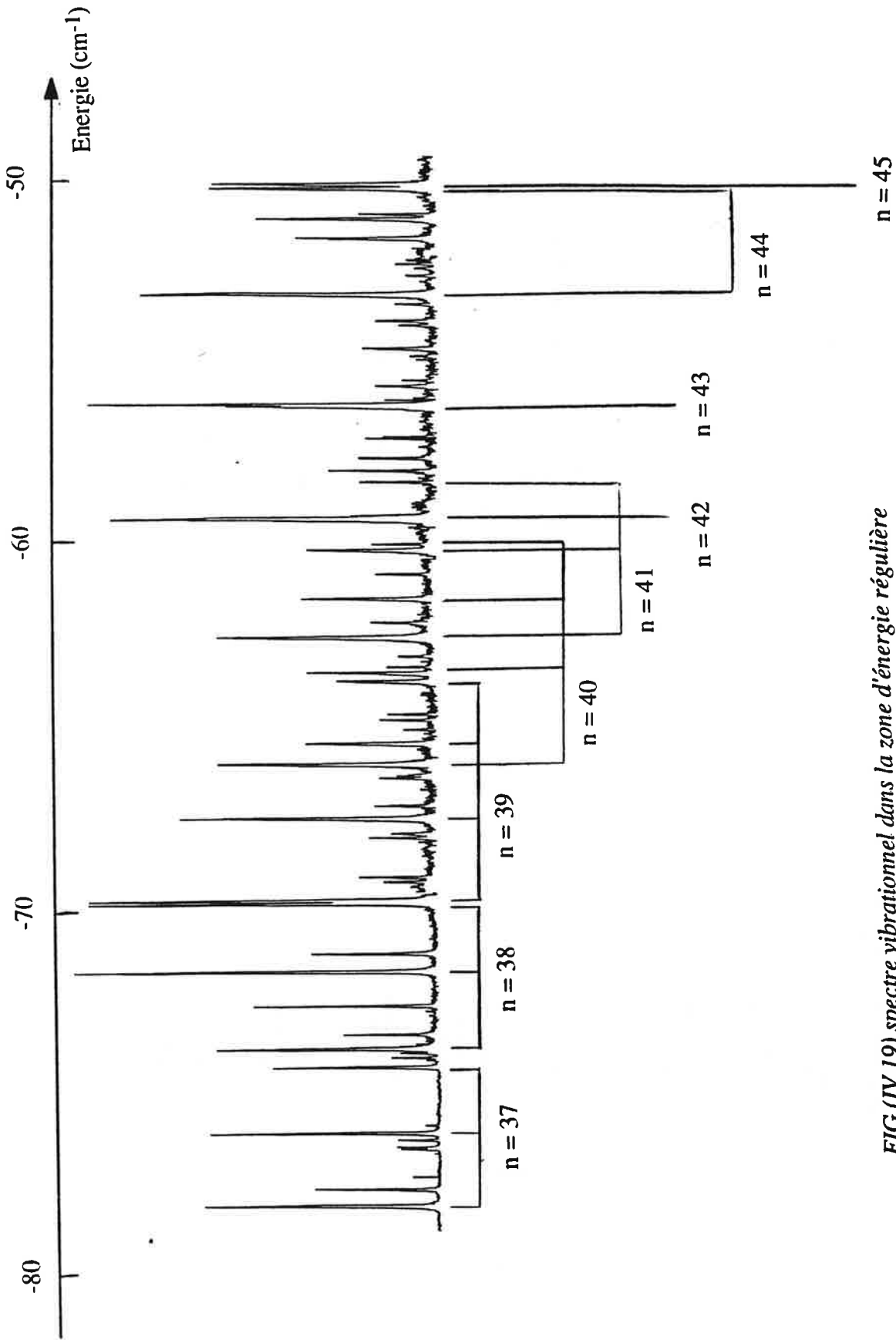


FIG (IV.19) spectre vibrationnel dans la zone d'énergie régulière
avec l'identification des raies intenses

$$\frac{2\text{Ryd}}{n^3} \approx 3,4 \text{ cm}^{-1} \quad \text{où Ryd} = 109728,6 \text{ cm}^{-1} \quad \text{et } n \approx 40$$

Cet écart diminue sensiblement quand n passe de 37 à 47.

Dans un multiplet donné, l'écart en énergie entre deux composantes (vibrationnelles) successives diminue quand l'énergie croît (resserrement des niveaux quand on s'approche de la séparatrice).

Dans la zone d'énergie $E > -50 \text{ cm}^{-1}$, il est impossible d'identifier les différentes raies du spectre (IV.17). Pour cela il est nécessaire de simuler théoriquement le spectre expérimental grâce à des calculs numériques. Ceci a été fait par D.Delande et J.C.Gay; le résultat est présenté dans le paragraphe suivant.

C.I.3. Calcul du Spectre Théorique.

D.Delande et J.C.Gay ont calculé le spectre de raies correspondant au spectre expérimental enregistré, en diagonalisant l'interaction diamagnétique sur une base d'états sturmiennes hydrogénoïde sphérique. Cette base a l'avantage d'être discrète et complète (elle tient compte du continuum). Elle est décrite au paragraphe (A.III.3) du chapitre I. On déduit de cette diagonalisation les énergies des états diamagnétiques hydrogénoïdes ainsi que leurs fonctions d'onde.

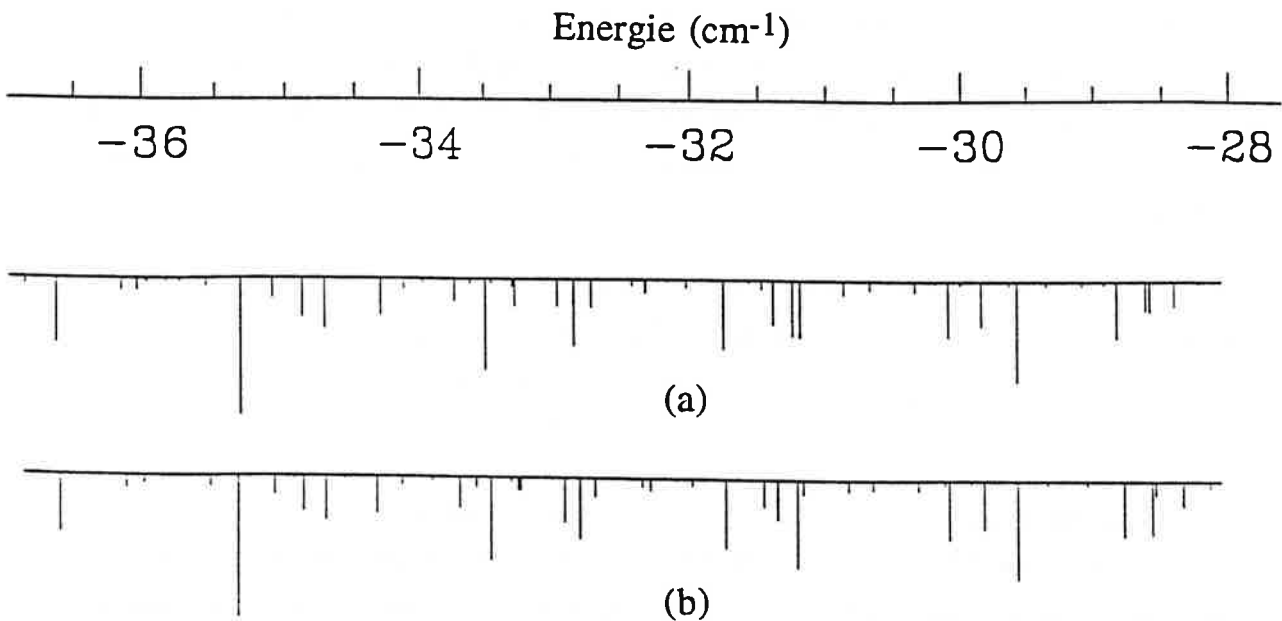
La deuxième étape de cette simulation consiste à calculer les forces d'oscillateur des transitions $(n = 10, M = 1, K = 6) \rightarrow (n, M = 1)$. La fonction d'onde de l'état de départ de cette transition tient compte du défaut quantique de l'état d ($\delta_d = 0,002$) de l'atome de lithium.

L'approximation "hydrogénoïde" pour les états supérieurs de la transition $(n = 10, M = 1, K = 6) \rightarrow (n, M = 1)$ faite lors de ces simulations numériques est justifiée pour les conditions de notre expérience ($B = 5\text{T}$, $n > 35$, $M = 1$). En effet, dans ces conditions l'interaction diamagnétique domine par rapport aux effets du coeur atomique sur l'état p du lithium. Ceci signifie que l'erreur commise en faisant cette approximation est négligeable.

Les premières simulations numériques furent réalisées pour la valeur de l'intensité du champ magnétique ($B = 4,9\text{T}$) déduite de la mesure expérimentale de l'écart

paramagnétique $\hbar\omega_c$ des deux composantes ($M = 1$) et ($M = -1$) de l'état $2p$ excité en polarisation σ à partir de l'état fondamental $2s$ (cf paragraphe I de ce chapitre).

La confrontation de ce spectre théorique calculé à cette valeur du champ magnétique avec le spectre expérimental montre un accord raisonnable entre les deux spectres dans la zone d'énergie basse. A plus haute énergie le désaccord prend de l'importance, ceci s'explique par la présence fréquente d'anticroisements dans cette région d'énergie: au niveau d'un anticroisement, la répartition de la force d'oscillateur sur les états correspondants aux deux niveaux d'énergie qui s'anticroisent évolue très rapidement en fonction de l'intensité du champ magnétique.



FIG(IV.20) Deux spectres calculés ($n=10 M = 1$) \rightarrow ($n, M = 1$) pour deux valeurs de l'intensité du champ magnétique (a) 4,9256 T (b) 4,9138 T

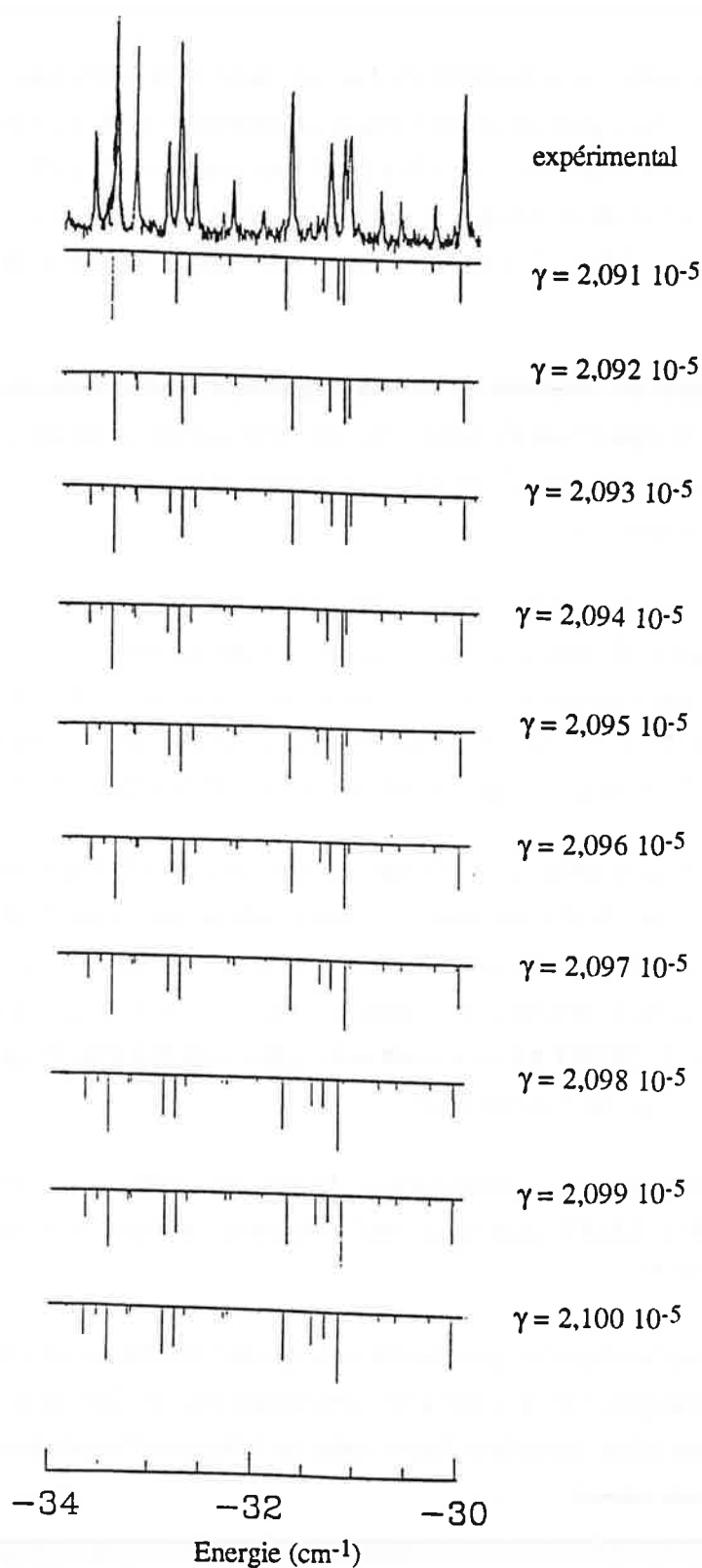


FIG (IV.21) confrontation des spectres simulés pour différentes valeurs de l'intensité du champ magnétique distantes de $23,5 \cdot 10^{-4}$ T avec le spectre expérimental dans l'intervalle d'énergie (-34 -30) cm⁻¹

Pour illustrer la sensibilité de l'allure du spectre à une faible variation du champ magnétique dans la région de haute énergie on confronte sur la figure (IV.20) deux spectres théoriques calculés pour deux intensités du champ magnétiques (4,926T et 4,914T) distantes de 0,012T. La position en énergie et l'intensité des raies du spectre calculé dans l'intervalle d'énergie (-35,5 ; -28)cm⁻¹ sont sensibles à cette faible variation de l'intensité du champ magnétique.

La valeur de l'intensité du champ magnétique pour laquelle la simulation numérique reproduit bien la répartition d'intensité sur les deux raies du doublet "d" repéré sur le spectre expérimental (cf figure IV.17) sera la valeur retenue pour l'intensité du champ magnétique utilisé lors de l'expérience.

La figure (IV.21) illustre la confrontation dans la zone d'énergie (-34, -30) cm⁻¹ qui entoure le doublet "d" repéré sur le spectre expérimental (cf figure (IV.17)) et les différents spectres théoriques simulés pour des valeurs de B variant de 4,935T à 4,911T par pas de 0,00235T ($\Rightarrow \Delta\gamma = 10^{-8}$). La valeur de l'intensité du champ magnétique pour laquelle l'expérience et la théorie sont en accord est de 4,913T ($\gamma = 2,091 \cdot 10^{-5}$).

Sachant la sensibilité de l'allure du spectre à une faible variation de l'intensité du champ magnétique, la détermination de cette valeur par la méthode exposée au premier paragraphe de ce chapitre fut reprise avec plus de précision en tenant compte de toutes les interactions (Zeeman, structure fine, structure hyperfine), cette valeur donnée à 4,907T avec une incertitude de 0,005T est en accord avec celle pour laquelle le spectre théorique simulé reproduit bien le spectre expérimental.

Pour faciliter leur comparaison, le spectre expérimental et le spectre théorique calculé (pour B = 4,913T) sont représentés à la même échelle en image miroir l'un de l'autre sur la figure (IV.22)

Les positions en énergie des raies du spectre expérimental sont bien reproduites par le spectre théorique. Cet accord n'est cependant pas parfait pour toute les raies. Pour certaines d'entre elles, on estime l'écart entre la théorie et l'expérience à 1,5GHz. Cet écart est dû à plusieurs causes :

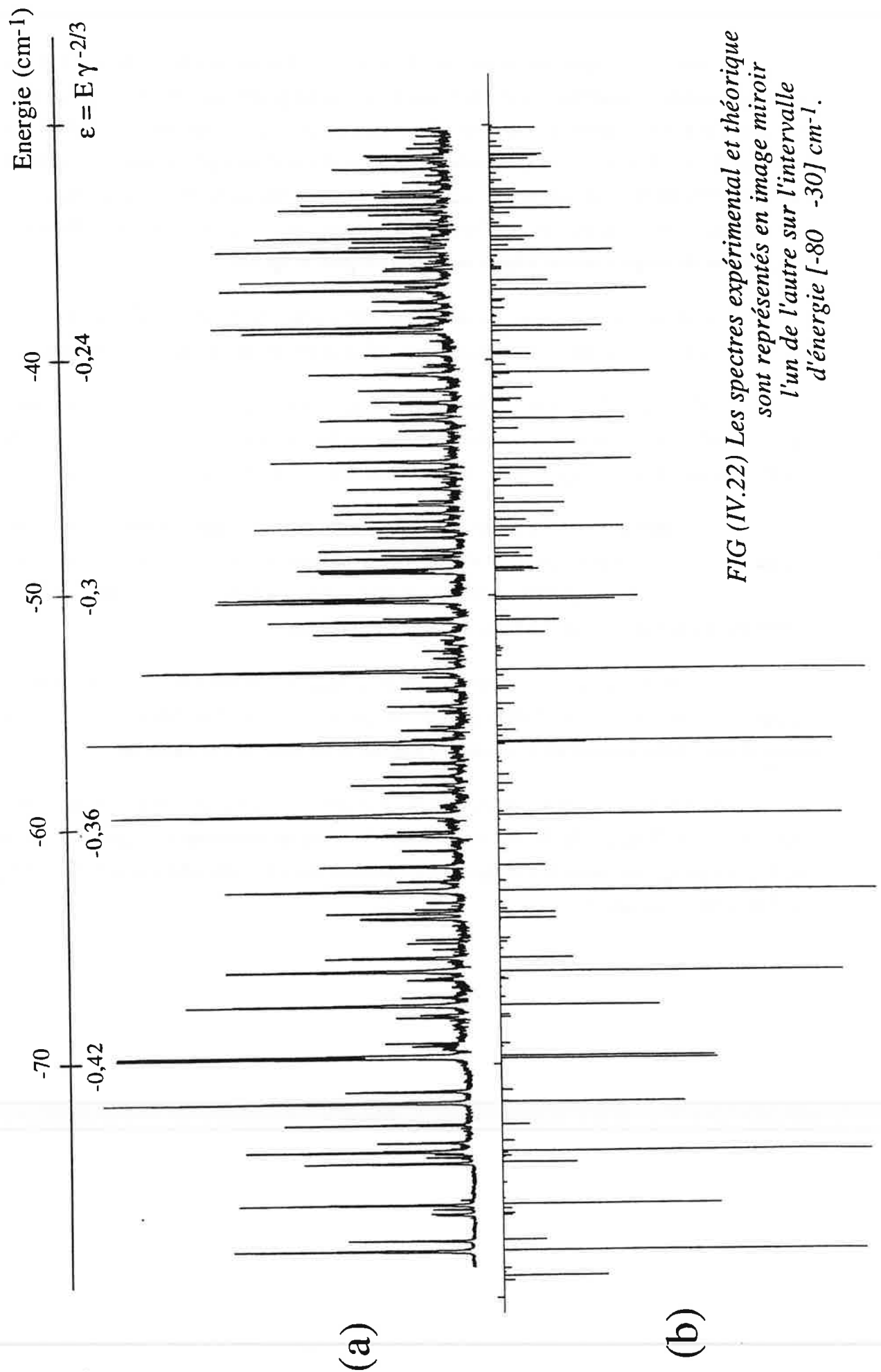


FIG (IV.22) Les spectres expérimental et théorique sont représentés en image miroir l'un de l'autre sur l'intervalle d'énergie [-80 -30] cm⁻¹.

- L'erreur commise sur la mesure de l'énergie absolue des raies du spectre due essentiellement aux conditions expérimentales défavorables pour le spectre d'absorption de la molécule d'iode (infiltration d'air dans la cellule à iode), ainsi qu'à la non parfaite linéarité du balayage de la fréquence du rayonnement laser IR et enfin aux problèmes d'acquisition rencontrés lors de l'expérience et qui ont pour effet l'enregistrement de spectres trop courts pour inclure au moins deux raies de l'iode répertoriées, condition nécessaire à la déduction d'une échelle d'énergie absolue relativement précise pour le spectre.

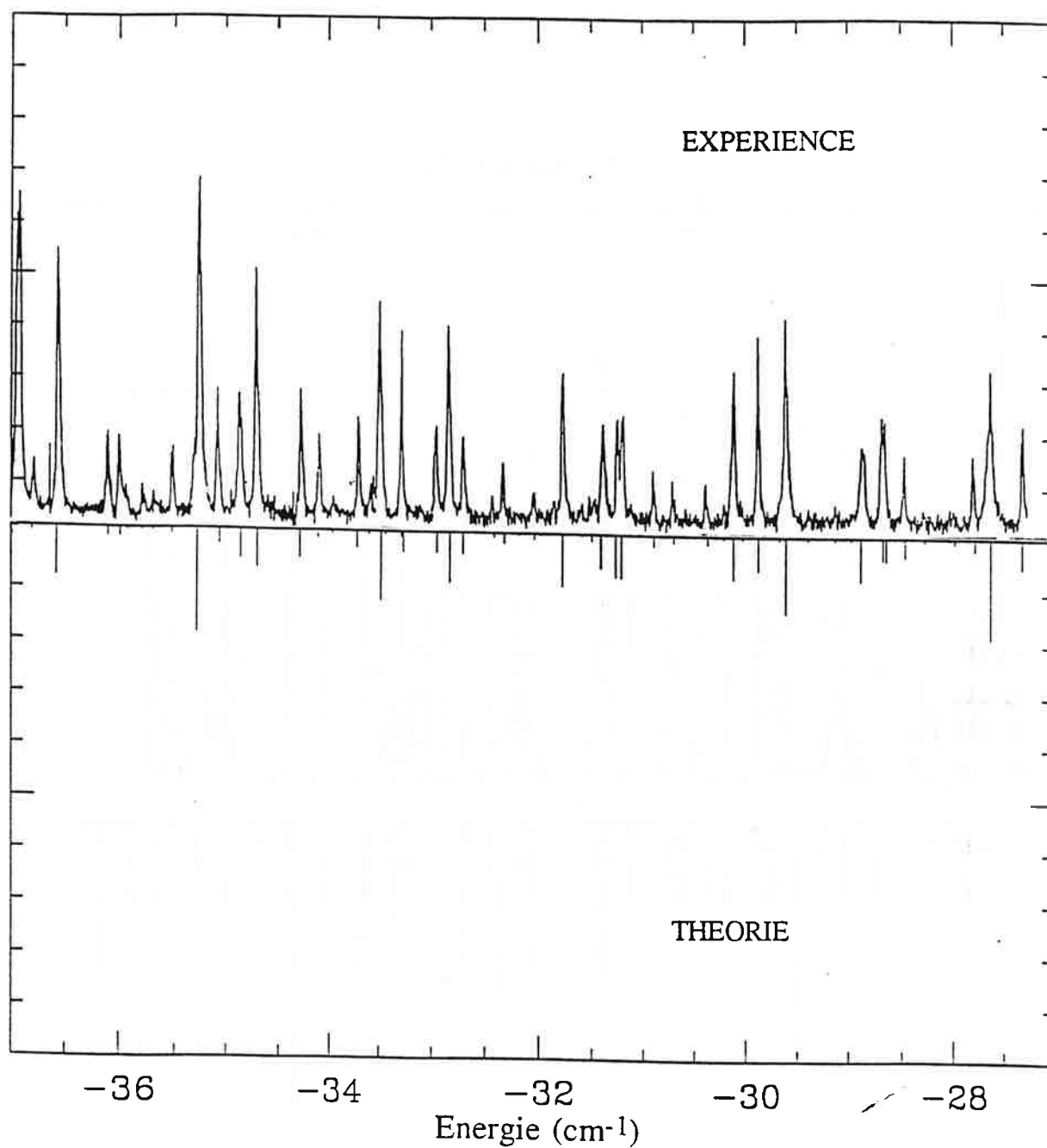
- La deuxième cause probable de cet écart entre la théorie et l'expérience est l'incertitude sur la valeur du champ magnétique utilisé pour simuler le spectre théorique.

Le désaccord observé sur la figure (IV.22) entre les rapports des intensités des raies expérimentales et théoriques est attribué au phénomène de saturation des raies intenses du spectre expérimental. L'élargissement observé pour ces raies confirme cette hypothèse.

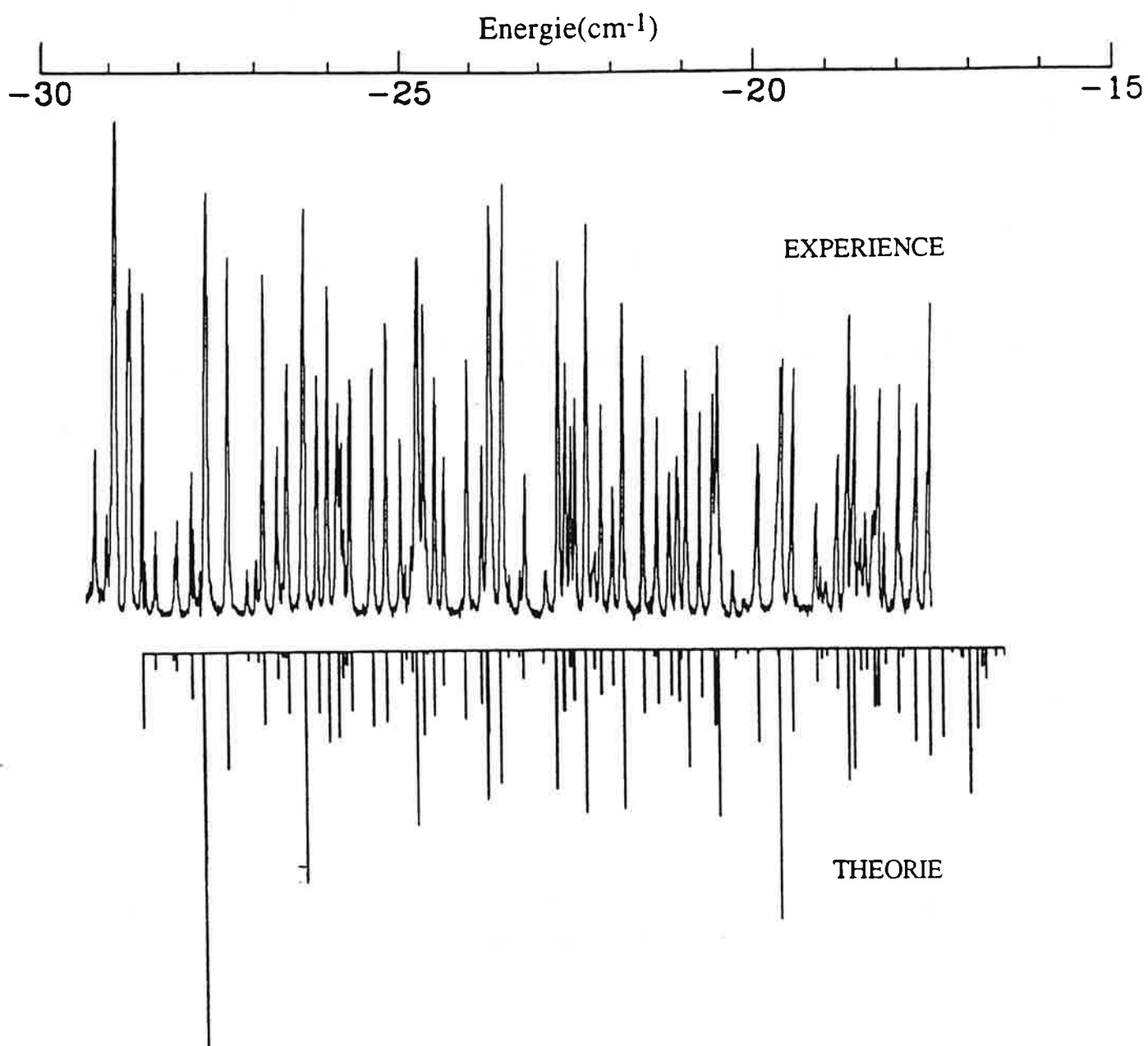
- La largeur en fréquence des raies peu intenses (non saturées) est due essentiellement à la largeur spectrale du rayonnement laser IR, cette largeur mesurée grâce aux raies peu intenses du spectre expérimental est estimée à 1 GHz. Certaines raies intenses du spectre ont une largeur de 2,2 GHz due à leur saturation.

- Une deuxième cause responsable de ce désaccord est l'instabilité de la puissance du rayonnement laser IR lors du balayage en fréquence. Pour s'affranchir de cette dernière cause, il aurait fallu normaliser le signal à la puissance du laser lors du balayage.

Pour faciliter la comparaison raie par raie des spectres expérimental et théorique dans une région d'énergie de densité de raies élevée, nous montrons sur les figures (IV.23a) et (IV.23b) un agrandissement des deux spectres dans les intervalles d'énergie [-37 -27] cm^{-1} et [-30 -15] cm^{-1} .



FIG(IV.23a) Les spectres expérimental et théorique ($B = 4,913 T$) sont représentés en image miroir l'un de l'autre sur l'intervalle d'énergie $[-37 -27] \text{ cm}^{-1}$.



FIG(IV.23b) Les spectres expérimental et théorique ($B = 4,913 T$) sont représentés en image miroir l'un de l'autre sur l'intervalle d'énergie [- 30 - 15] cm^{-1} .

C.I.4. Discussion.

Le passage du système d'un régime classique régulier à un régime chaotique se traduit par des aspects très différents du spectre d'énergie. La différence de comportement classique dans ces deux régimes traduit la physique du système et se manifeste au niveau des propriétés de symétrie des états propres. Dans la partie du spectre telle que ($\epsilon < -0,3$), la dynamique classique du système est régulière et l'on constate qu'on excite effectivement les niveaux supérieurs de chaque multiplet avec une excellente efficacité.

Tous les niveaux d'énergie qui ne possèdent pas la symétrie vibrationnelle sélectionnée sont à peine visibles sur cette partie du spectre expérimental. Ceci signifie que dans la région d'énergie classiquement régulière, la symétrie vibrationnelle déduite de l'étude perturbative subsiste bien que les différents multiplets diamagnétiques se recouvrent.

A plus haute énergie ($\epsilon > -0,3$), l'aspect du spectre change totalement, au lieu d'une série de raies dominantes, toutes les raies ont des intensités comparables: la densité de raies augmente brutalement. La symétrie mise en évidence en champ faible n'est plus valable. Cette région d'énergie du spectre correspond à un comportement classique chaotique.

On peut donc conclure que le passage du régime classique régulier au régime chaotique s'accompagne de *la brisure de symétrie* vibrationnelle approchée mise en évidence en champ faible. Cette brisure de symétrie qui caractérise le début du chaos est clairement observée sur le spectre d'excitation expérimental.

Contrairement aux autres méthodes de caractérisation du chaos utilisées, qui nécessitent un traitement mathématique du spectre expérimental (en faisant une analyse des écarts d'énergie entre niveaux voisins, ou en analysant la transformée de Fourier du spectre), l'observation *directe* de notre spectre expérimental permet de déduire la valeur de l'énergie de transition à laquelle la dynamique classique transite d'un régime régulier à un régime chaotique.

Classiquement, la *résonance* entre la fréquence du mouvement le long de l'axe Oz du champ magnétique (purement coulombienne) et la fréquence de vibration dans le plan perpendiculaire au champ magnétique déstabilise le mouvement selon l'axe Oz et crée une

bifurcation [DEL88]. Cette situation se produit quand $\epsilon \approx -0,39$, valeur à partir de laquelle le mouvement vibrationnel au voisinage de l'axe Oz peut être considéré à une très bonne approximation comme complètement chaotique (la région régulière de l'espace des phases au voisinage de l'axe Oz a un volume relatif d'environ 10^{-4} , pratiquement négligeable).

Cette valeur "classique" ($\epsilon \approx -0,39$) est voisine de celle "quantique" ($\epsilon \approx -0,3$) qui délimite les deux régions d'aspects différents du spectre expérimental. Ceci justifie bien la correspondance classique/quantique suivante:

spectre simple ↔ dynamique classique régulière

spectre complexe ↔ dynamique classique chaotique

Dans l'intervalle d'énergie $(-65, -50) \text{ cm}^{-1}$ correspondant à l'intervalle $(-0,39, -0,3)$ du facteur d'échelle ϵ , l'allure du spectre est particulièrement simplifiée. La sélectivité est excellente, une seule raie par multiplet est très intense. Cette grande simplification du spectre qui survient dans l'intervalle d'énergie qui précède la valeur d'énergie à laquelle le spectre prend une allure complexe, n'est pas expliquée.

Cette expérience de haute résolution a permis, pour la première fois, de mettre en évidence spectralement et de façon directe, le changement qui survient au niveau de la probabilité d'excitation optique des états (quantiques) d'un système, au passage de sa dynamique classique d'un comportement régulier à un comportement chaotique. La valeur du paramètre d'échelle ϵ ($\approx -0,3$) à laquelle ce changement s'opère sur le spectre vibrationnel est voisine de celle ($\epsilon \approx -0,39$) qui correspond à la destruction du dernier tore invariant vibrationnel associé au mouvement classique de l'électron localisé le long de l'axe Oz du champ magnétique.

C.II. Spectre Rotationnel.

La dernière trajectoire classique régulière de l'atome d'hydrogène plongé dans un champ magnétique est détruite quand le paramètre d'échelle $\epsilon = E \gamma^{-2/3}$ dont dépend la dynamique classique atteint la valeur $\epsilon \approx -0,127$. Pour la valeur 4,9T de l'intensité du champ magnétique utilisé dans nos expériences, cette condition est réalisée quand l'énergie du système atteint la valeur d'environ -21 cm^{-1} .

Comme on l'a déjà vu au chapitre II, la polarisation du laser IR, la mieux adaptée à cette étude est la polarisation σ . Nous étudions donc la transition:

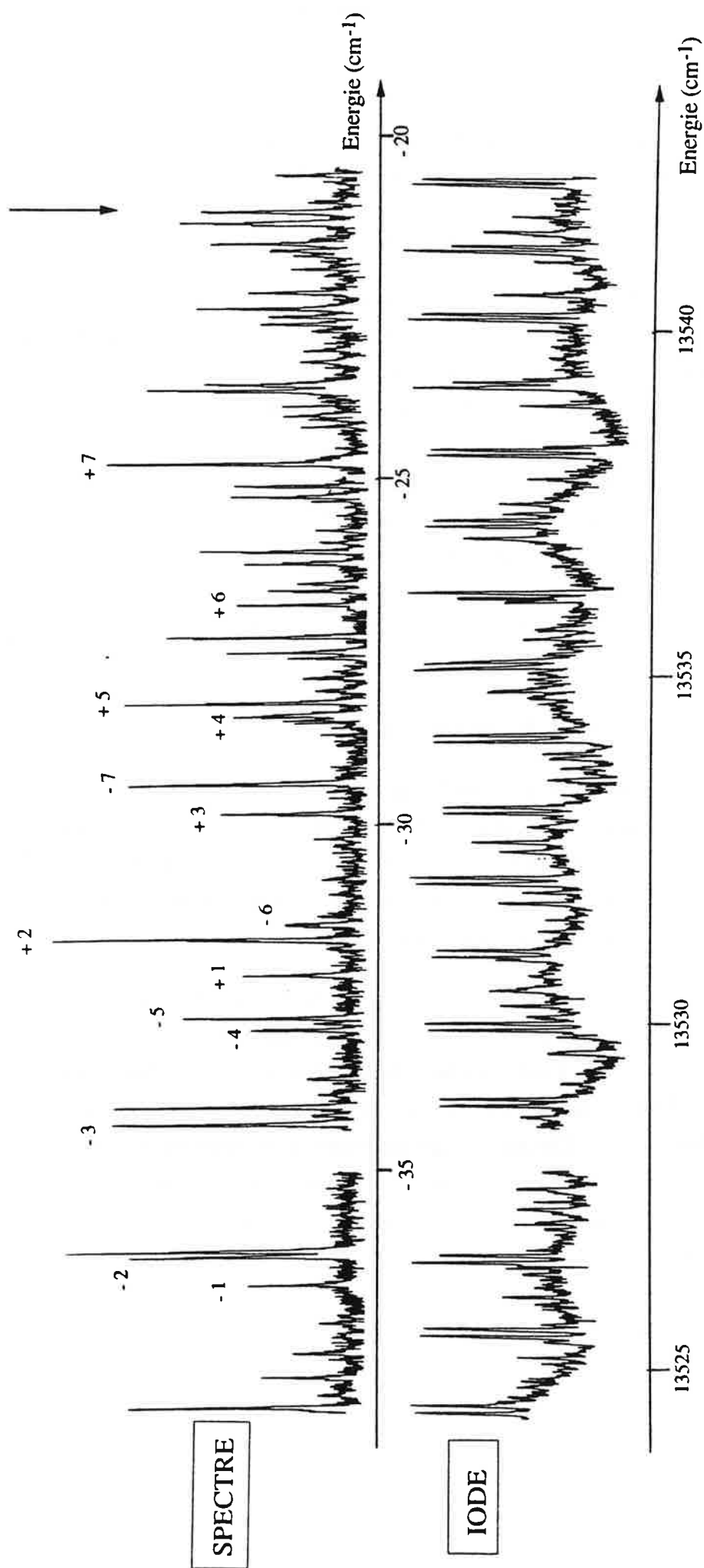
$$(n = 10, M = 0, K = 0) \rightarrow (n, M = \pm 1)$$

Pour mettre en évidence clairement les différences d'allures du spectre d'excitation optique dans les deux régions d'énergie qui correspondent à des comportements classiques distincts, nous devons balayer la fréquence du laser IR dans les deux régions d'énergie délimitées par $E = -21 \text{ cm}^{-1}$ et enregistrer le spectre d'excitation optique. Ceci n'a pas été possible lors de notre expérience suite à des pannes de matériel successives. La cause essentielle de l'extension en énergie limitée du spectre enregistré est due aux problèmes expérimentaux rencontrés sur le 3^{ème} étage laser liés à la faiblesse de puissance du rayonnement IR généré par effet Raman et sa non reproductibilité. Ces problèmes nous ont contraint à abandonner cette méthode, l'expérience en cours utilise un autre processus de génération d'IR (mélange de fréquences dans un cristal d'AgGaS₂) décrit au chapitre III de ce mémoire.

C.II.1. Résultat Expérimental.

Les problèmes d'acquisition du signal rencontrés lors de l'enregistrement du spectre vibrationnel étaient résolus lors de cette étude par la mise en place d'un nouveau micro-ordinateur couplé à l'oscilloscope numérique échantillonneur. La longueur en fréquence des spectres enregistrés est donc d'environ 3 cm^{-1} ; correspondant à 2 sauts de mode du F.P.E de la cavité laser (cf paragraphe(D.II.1) du chapitre III).

Le spectre d'absorption de la molécule d'iode enregistré simultanément avec ces spectres est meilleur que celui enregistré avec les spectres vibrationnels, ceci est dû au changement de la cellule à iode lors de cette deuxième expérience. Sur ce spectre deux raies distantes de 2,5 GHz sont bien résolues; ce qui n'était le cas quand il y avait infiltration d'air dans la cellule à iode. Chaque spectre enregistré comprend au moins 4 raies de l'iode répertoriées, ce qui permet une calibration en énergie précise du spectre. La correspondance entre l'énergie E_I (iode) et l'énergie absolue E_S est donnée comme précédemment par la relation (IV.1).



FIG(IV.24) Spectre "rotationnel" représenté en parallèle avec le spectre d'absorption de la molécule d'iode.

Le spectre obtenu après raccord des 9 spectres enregistrés s'étend sur l'intervalle d'énergie [-38 -35] et [-34,4 -20] cm^{-1} , il est présenté sur la figure (IV.24) avec le spectre d'absorption de l'iode.

Le rayonnement laser IR excitateur ayant une polarisation σ par rapport à l'axe du champ, le spectre expérimental est la superposition de deux spectres d'excitation qui correspondent aux transitions suivantes :

$$(n = 10, M = 0, K = 0) \rightarrow (n, M = 1)$$

$$(n = 10, M = 0, K = 0) \rightarrow (n, M = -1)$$

Ces deux spectres sont décalés de $2\hbar\omega_c$ à cause du terme paramagnétique. Comme le nombre M est un bon nombre quantique, deux états de M différents n'interagissent pas; il apparaît dans le spectre enregistré la simple superposition des deux spectres identiques ($M=1, M=-1$) décalés de $2\hbar\omega_c$. Ceci complique évidemment l'interprétation de ce spectre.

L'intervalle d'énergie sur lequel est enregistré le spectre expérimental ne couvre que la région dite d'inter n -mixing, où les différents multiplets se mélangent sans se perturber intensément. Dans cette région, il est alors possible d'identifier les raies des deux séries $M = 1$ et $M = -1$. Deux raies $M = 1$ et $M = -1$ identiques sont notées $-n$ et $+n$ (n entier) sur le spectre de la figure (IV.24). La mesure de leur décalage d'énergie donne:

$$\hbar\omega_c = 2,27 \pm 0,03 \text{ cm}^{-1}$$

L'incertitude sur cette mesure est due au pointé des raies du spectre de l'iode. La valeur de l'intensité du champ magnétique utilisé lors de cette expérience est reliée à $\hbar\omega_c$ par la relation suivante:

$$2\hbar\omega_c = \gamma \times 2\text{Ryd} \quad \text{avec: } \gamma = \frac{B}{B_c}$$

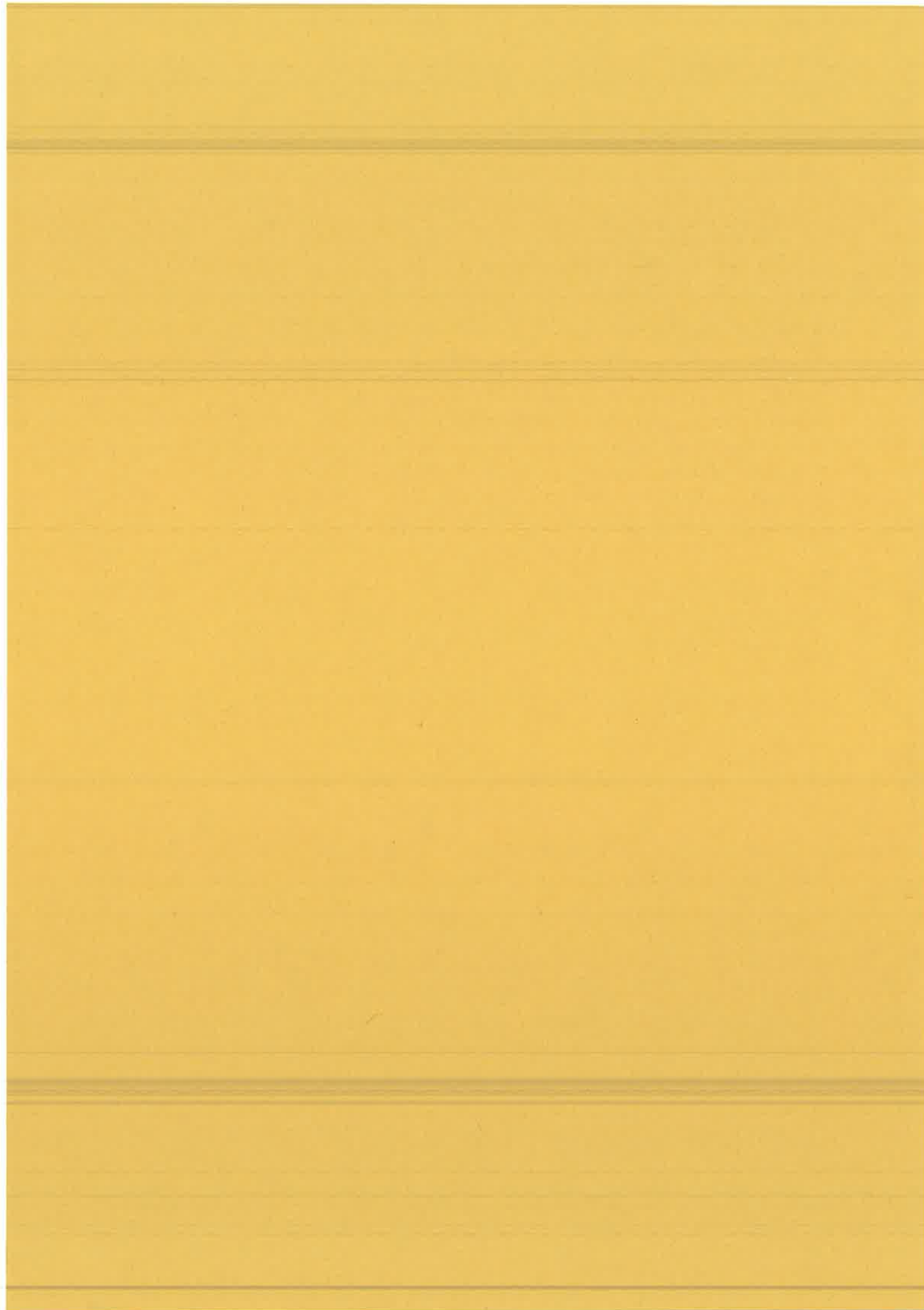
On en déduit la valeur de γ et de B .

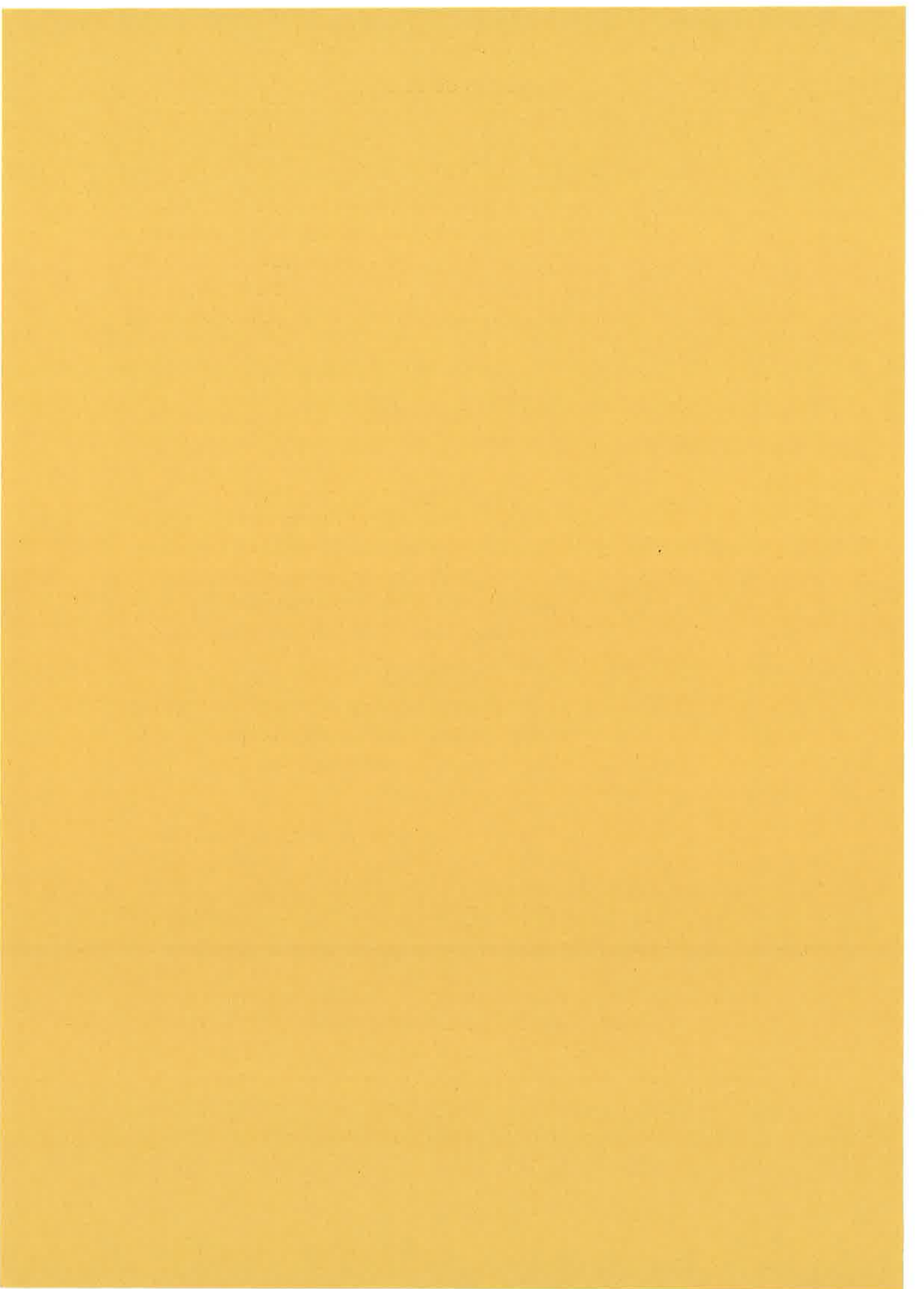
$$\gamma = (2,068 \pm 0,025) 10^{-5} \Rightarrow B = 4,861 \pm 0,06 \text{ T}$$

Les raies intenses du spectre correspondent à l'excitation des composantes les plus rotationnelles des multiplets diamagnétiques. Cette sélectivité est reliée au pourcentage important de la symétrie lambda pour ces états.

La flèche représentée sur le spectre de la figure (IV.24) correspond à la valeur - 0,127 du paramètre d'échelle ϵ , elle indique la position d'énergie (-21 cm^{-1}) à laquelle la dynamique classique du système passe d'un comportement régulier à un comportement chaotique. Au delà de cette position d'énergie, on devrait observer un changement d'aspect du spectre. L'extension limitée du spectre expérimental ne permet pas une telle observation.

L'expérience en cours a pour but l'enregistrement d'un spectre similaire qui s'étendrait sur un plus grand intervalle d'énergie pour permettre de mettre en évidence directement sur le spectre la transition entre la régularité et le chaos.





L'étude que nous avons entreprise est consacrée au système: " ATOME + CHAMP MAGNETIQUE " qui est un système quantique réel, simple, pour lequel l'étude de la dynamique classique montre l'apparition de trajectoires chaotiques. Il constitue donc un prototype pour l'étude de ce que nous appelons le chaos "quantique". Sa simplicité permet des études classique et quantique assez complètes, sa réalité rend possible une étude expérimentale.

Notre étude a permis de mettre en évidence une modification de l'allure du spectre expérimental au moment où classiquement le système passe d'un comportement régulier à un comportement chaotique [BOU92].

L'étude classique montre que toute la dynamique du système ne dépend que d'une énergie réduite ($\epsilon = E \gamma^{-2/3}$). Par l'analyse des surfaces de Poincaré qui visualisent les portions régulières et chaotiques de l'espace des phases, la transition progressive d'un régime totalement régulier à un régime totalement chaotique est clairement mise en évidence lorsqu'on augmente le paramètre ϵ . L'existence d'un régime mixte montre l'importance de la nature de la trajectoire: pour une même énergie, suivant les conditions initiales, la trajectoire peut être soit régulière soit chaotique.

D'autre part, on comprend bien l'importance des deux trajectoires limites toujours solutions du système: celle le long de l'axe du champ magnétique et celle dans le plan perpendiculaire: dans leur voisinage, le caractère régulier-chaotique est directement relié à leur nature stable-instable.

Nous retrouvons la spécificité de ces deux trajectoires de natures différentes dans l'étude quantique lorsque l'interaction diamagnétique est faible devant l'interaction coulombienne. Les deux types de symétrie "parabolique" et "lambda" décrivant les composantes extrêmes d'un multiplet diamagnétique y sont directement rattachés. La déstabilisation des trajectoires correspond quantiquement à la perte de ces symétries.

Expérimentalement, sans précaution particulière, les spectres observés doivent leur complexité autant à l'augmentation de la densité de niveaux qu'à une manifestation éventuelle du chaos classique. Nous avons montré comment il est possible de séparer les deux contributions en prenant comme état de départ, un niveau possédant une des symétries extrêmes du diamagnétisme. Excitant préférentiellement les niveaux de même symétrie, le spectre se simplifie dans la zone régulière où l'on observe une seule série de

niveaux. A partir d'une valeur d'énergie donnée, il devient brutalement complexe et l'on peut confronter cette valeur à celle déduite des études classiques.

Pour réaliser cette étude nous avons utilisé un jet atomique de lithium dont les atomes sont excités en 3 étages sur des états de Rydberg élevés par des lasers monomodes, longitudinaux, accordables, continus ou pulsés.

La première étape consiste à porter l'atome dans une des composantes extrêmes du multiplet $n = 10$ qui possède une symétrie diamagnétique bien marquée. Le caractère non hydrogénoïde de l'atome de lithium nécessite une excitation en deux étages à partir du niveau fondamental $2s$ par l'intermédiaire du niveau $2p$ puis à partir du niveau $2p$ vers le caractère d des états $n = 10$. Pour augmenter l'efficacité de cette excitation nous avons mis au point une technique de débranchement adiabatique du champ électrique (méthode de Stark-switching).

Grâce à ces deux étages d'excitation de l'atome de lithium nous avons enregistré des spectres dont l'analyse a permis d'améliorer quelques données sur la raie de résonance $2s \rightarrow 2p$ de l'élément lithium, de calibrer le champ magnétique utilisé dans les expériences et de tester l'efficacité de l'excitation des composantes rotationnelle et vibrationnelle du multiplet $n = 10$.

La deuxième étape est la transition optique de cet état relais ($n = 10$) vers des états très excités, pour la réaliser nous avons développé une source laser monomode accordable dans la gamme $8-10 \mu\text{m}$. Ce rayonnement est obtenu par un processus non linéaire (effet Raman (3^{ème} Stokes) ou mélange de fréquences dans un cristal d' AgGaS_2) utilisant deux laser pulsés, puissants, accordables et de haute résolution spectrale.

Ce montage expérimental de haute performance est d'une grande délicatesse. En dépit de nombreuses difficultés nous avons enregistré un spectre expérimental obtenu en sélectionnant comme état de départ la composante hydrogénoïde la plus basse du multiplet $n = 10$ (symétrie parabolique). Dans la zone d'énergie correspondant à un comportement classique régulier, le spectre est assez simple, la force d'oscillateur est répartie sur seulement 2 à 3 séries de composantes. A partir d'une valeur d'énergie voisine de celle à laquelle est prévue l'apparition de trajectoires classiques chaotiques, le spectre devient complexe: la densité de niveaux excités augmente brutalement et la classification en séries devient impossible.

Pour la première fois, un spectre d'énergie d'un atome perturbé par un champ magnétique a été enregistré dans des conditions d'expérience qui permettent une observation directe du changement s'opérant sur ses propriétés quantiques (forces d'oscillateur) quand la dynamique classique correspondante passe d'un comportement régulier à un comportement chaotique. La brisure de symétrie qui caractérise l'apparition du chaos est visible sur le spectre et la simple observation de ce spectre permet de déduire la valeur d'énergie qui délimite les deux régions d'énergie de comportements classiques différents.

Une collaboration avec D.Delande et J.C. Gay a permis la comparaison du spectre expérimental à un spectre théorique calculé sur l'hydrogène mais incluant le caractère non hydrogénoïde du lithium sur l'état de départ; l'accord est remarquable si l'on tient compte d'un effet de saturation sur les composantes les plus intenses.

Nous avons enregistré un spectre d'excitation à partir de la composante la plus élevée du multiplet $n = 10$ ayant la symétrie rotationnelle. A cause des difficultés expérimentales rencontrées lors de cette expérience, l'extension en énergie du spectre est limitée à la région classiquement régulière. Ceci ne permet pas d'observer la brisure de symétrie rotationnelle qui caractérise le passage des trajectoires classiques rotationnelles d'un comportement régulier à un comportement chaotique. Ce spectre qui s'étend sur un intervalle d'énergie où les trajectoires vibrationnelles sont déjà toutes chaotiques est la preuve que le passage de la régularité au chaos des trajectoires vibrationnelles et rotationnelles a lieu à des valeurs d'énergie différentes.

L'expérience actuellement en cours a pour but l'enregistrement d'un spectre similaire s'étendant sur un plus grand intervalle d'énergie. Des résultats identiques à ceux obtenus pour la symétrie vibrationnelle sont attendus. Cependant comme la symétrie λ des états hauts d'un multiplet est plus pure que la symétrie parabolique des états bas du multiplet, les états rotationnels sont plus stables (vis à vis du chaos) que les états vibrationnels et la brisure de symétrie qui caractérise le début du chaos apparaît à une énergie plus élevée.

Dans la partie haute énergie où classiquement la dynamique du système est chaotique, les spectres de raies calculés révèlent que le désordre n'est pas complet: la brisure de symétrie qui caractérise le début du chaos n'est pas complète et au lieu d'exciter une série de raies individuelles, on excite des paquets de raies dont la distribution en énergie présente une certaine périodicité [DEL87].

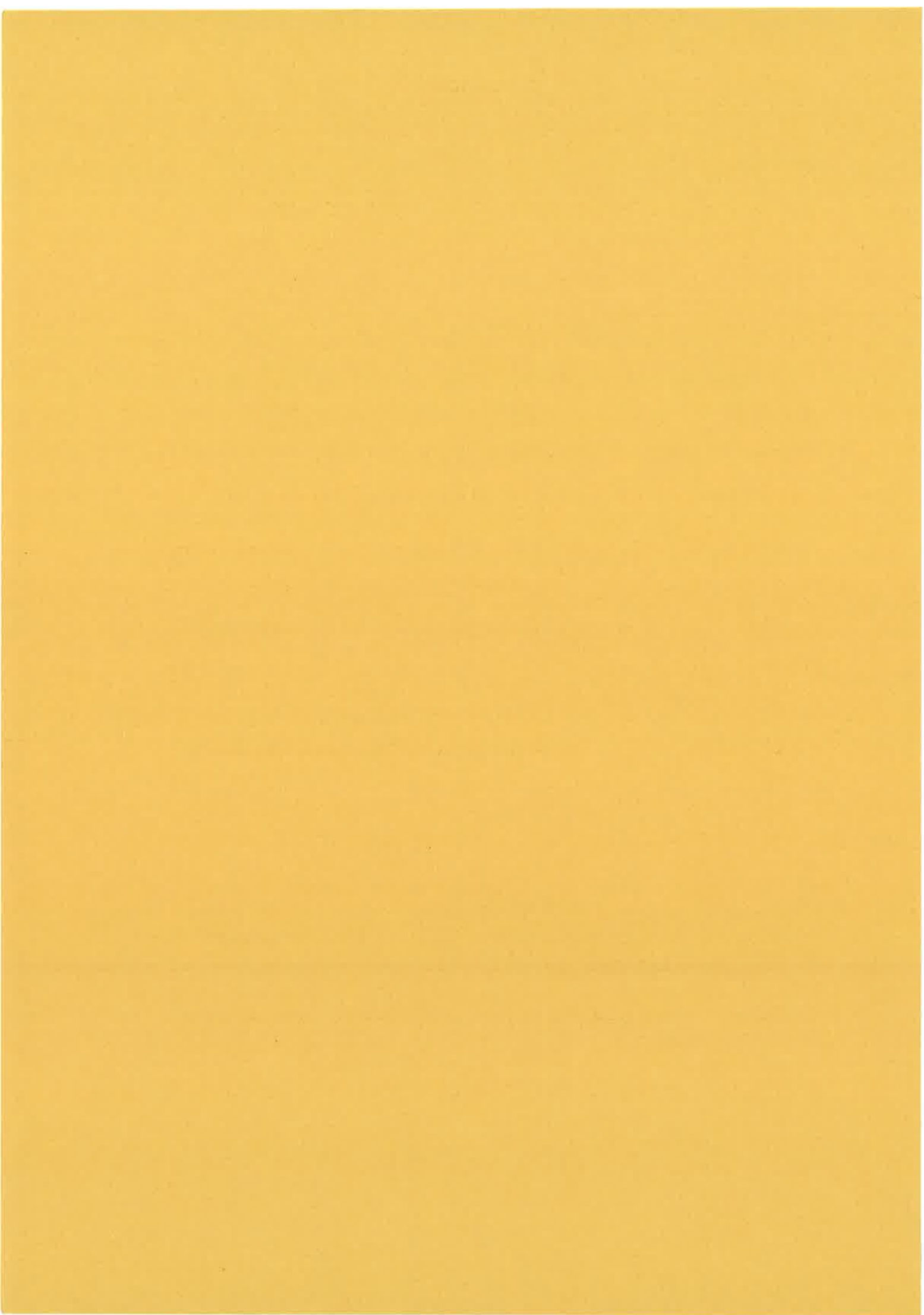
Sur le spectre expérimental, il n'est pas possible d'observer directement cet ordre qui subsisterait dans la zone d'énergie complexe. Il serait donc instructif de compléter l'analyse de ce spectre par un calcul de transformée de Fourier qui permettrait de déduire la fréquence des éventuelles modulations qui apparaissent dans cette zone d'énergie.

Cette étude faite sur des spectres non sélectifs dont l'excitation démarre sur un état profond a montré que les fréquences des modulations qui apparaissent dans la zone complexe du spectre sont directement reliées aux périodes des trajectoires fermées instables qui apparaissent dans le régime classiquement chaotique [MAI87].

Une telle analyse de notre spectre sélectif mettrait en évidence dans la zone régulière une seule fréquence correspondant à la périodicité de la série de raies principales qui apparaissent dans cette zone. Dans la zone complexe une éventuelle périodicité ne peut être mise en évidence visuellement mais apparaîtrait dans une analyse par transformée de Fourier. Le caractère sélectif du spectre permettrait peut être de mettre en évidence de façon plus frappante, les fréquences des modulations reliées aux trajectoires fermées instables qui résultent de la bifurcation de la trajectoire vibrationnelle localisée selon l'axe du champ magnétique.

L'étude spectroscopique de haute résolution présentée dans ce mémoire devrait être poursuivie par une analyse du système dans le domaine d'énergie supérieur à la limite d'ionisation en champ nul. Cette région d'énergie est caractérisés par l'existence de résonances fines reliées à des trajectoires classiques de l'atome qui passent un temps long près du noyau [IU 91]. L'exploration de cette zone d'énergie gagnerait peut être à être faite en excitation sélective à partir d'une composante diamagnétique rotationnelle qui du fait de sa localisation au voisinage du plan $z = 0$ minimise la probabilité d'ionisation.





-
- [ABR51] Abragam, A.Pryce, M.H.L, Proc.Roy.Soc.A205 (1951), 135
- [BEC74] A.Beckmann, K.D.Böeklen, D.Elke, Z.Physik 270 (1974), 173-186.
- [BED77] M.Bednar, Phys.Rev.A 15(1977) 27.
- [BEN84] G.Bennetin, Physica.D 13 (1984) 211.
- [BER84] P.Bergé, Y.Pommeau, Ch.Vidal, "L'ordre dans le chaos" Ed. Hermann (1984)
- [BHA80] A.K.Bhatia, J.Sucher, J.Phys.B 13 (1980), L409-L413.
- [BOH84] O.Bohigas, M.J.Giannoni, C.Schmit, Phys.Rev.Lett 52 (1984) 1.
- [BOH84] O.Bohigas, MJ.Giannoni, " Chaotic Motion and Random Matrix Theories ",
Lecture Notes in physics, Vol 209 Ed Springer Verlag (1984)
- [BOU92] N.Bouloufa, P.Cacciani, D.Delande, C.Delsart, J.C.Gay, E.Luc-Koenig,
J.Pinard, Journal de Physique II (1992) 671
- [BRA83] P.A.Braun, J.Phys.B 16 (1983) 4323.
- [BRU68] G.Bruhat "cours de physique générale: thermodynamique" Ed.Masson (1968)
- [CAB82] L.Cabaret, mémoire d'ingénieur CNAM (1982).
- [CAB86] L.Cabaret, thèse de docteur ingénieur, Paris XI (1986).
- [CAC84] P.Cacciani, thèse de 3^{ième} cycle, Paris XI (1984).
- [CAC86a] P.Cacciani, E.Luc-Koenig, J.Pinard, C.T.Thomas, S.Liberman, Phys.Rev.
Lett.56 (1986) 1124.
- [CAC86b] P.Cacciani, E.Luc-Koenig, J.Pinard, C.T.Thomas, S.Liberman, J.Phys.B
19 (1986) L519.
- [CAC88a] P.Cacciani, E.Luc-Koenig, J.Pinard, C.T.Thomas, S.Liberman, J.Phys.B
21 (1988) 3473.

- [CAC88b] P.Cacciani, S.Liberman, E.Luc-Koenig, J.Pinard, C.Thomas, *J.Phys.B* 21(1988) 3473, 3499, 3523.
- [CAC89] P.Cacciani, S.Liberman, E.Luc.Koenig, J.Pinard, C.Thomas, *Phys.Rev.A* 40 (1989) 3026.
- [CAC92] P.Cacciani, C.Delsart, E.Luc-Koenig, J.Pinard, *J.Phys.B* (1992)
- [CAS80] J.C.Castro, M.L.Zimmerman, R.G.Hulet, D.Kleppner, *Phys.Rev.Lett.* 15 (1980) 1780.
- [CHA83] Chardonnet, thèse de doctorat de 3^{ème} cycle, Paris (1983)
- [CLA82] C.W.Clarck, K.T.Taylor, *J.Phys.B* 15 (1982) 1157.
- [COH73] C.Cohen-Tannoudji, B.Diu, F.Laloe, "Mécanique Quantique" Tome II (1977) 1243-1244.
- [DEG73] John.J.Degnan, *Appl.Optics*, Vol 12 (1973) 1026.
- [DEL'83] J.B.Delos, S.K.Knudson, D.W.Noid, *Phys.Rev.A* 28 (1983) 7.
- [DEL'84] J.B.Delos, S.K.Knudson, D.W.Noid, *Phys.Rev.A* 30 (1984) 1208.
- [DEL81a] D.Delande, J.C.Gay, *Phys.Lett.* 82A (1981) 393.
- [DEL81] D.Delande, Thèse de 3^{ème} cycle, Paris VI (1981)
- [DEL83] D.Delande, J.C.Gay, *J.Phys.B* 16 (1983) L693.
- [DEL84] D.Delande, J.C.Gay, *J.Phys.B* 17 (1984) L335.
- [DEL86a] D.Delande, J.C.Gay, *Comments Atom.Phys* 19 (1986) 35
- [DEL86b] D.Delande et J.C.Gay *Phys Rev Lett* 57 (1986) 2006.
- [DEL86c] D.Delande, J.C.Gay, *J.Phys.B* 19 (1986) L 173-L178.
- [DEL87] D.Delande, J.C.Gay, *Phys.Rev.Lett* 59 (1987) 1809.
- [DEL88] D.Delande, thèse de doctorat d'état, ParisVI (1988)

-
- [DEL90] D.Delande, "Nato Les houches Lecture Notes 1989" Chaos ans Quantum Physics, North Holland (1990).
- [DUC76] J.Ducuing,R.Frey, F.Pradère: In Tunable Lasers and Applications, ed by A.Mooradian, TJaeger, P.Stokseth. Springer Series in Optical Sciences 3, 1976) 81-87.
- [DYS63] F.J.Dyson, M.L.Mehta, J.Math.Phys 4 (1963) 70.
- [ENG79] M.J.Englefield "Group Theory and the Coulomb Problem" Ed.Wiley, New York (1979)
- [ERI80] T.Ericsson, A.Ruhe, Math.Comp.35 (1980) 1251 et les références qui y sont.
- [FEN77] S.Feneuille, S.Liberman, J.Pinard, P.Jaquinot, CR Acad.Sci, Paris 284B, (1977) 291
- [FEN82] S.Feneuille, S.Liberman, E.Luc Koenig, J.Pinard et A.Taleb, J.Phys B 15, (1982)1205 .
- [FLY75] C.Flytzanis : Theory of Non Linear Optical Susceptibilities pages in Quantum Electronics, ed by Herbert Rabin , C.L TangVolume I, Part A (1975)
- [FRE76] R.Frey, P.pradère, J.Ducuing: Opt.Comm 18, (1976) 204
- [GAR69] W.R.S.Garton, F.S.Tomkins, Astrophys.J 158 (1969) 839.
- [GAR77] R.G.Garstang, Rep.Prog.Phys.40 (1977) 105.
- [GAY80] J.C.Gay, D.Delande, F.Biraben, J.Phys.B13 (1980) L720.
- [GER78] S.Gerstenkorn, P.Luc, "Atlas du spectre d'absorption de la molécule d'iode" (1978).
- [GUT90] M.C.Gutzwiller "Chaos in Classical and Quantum Mechanics" Springer Verlag (1990).
- [HAL86] E.Haller, H.Koppel, Phys.Rev.Lett 56 (1986) 2594.
- [HAR79] W.Hartig, W.Schmidt,Appl.Phys 18, (1979) 235-241

- [HAR83] A.Harada, H.Hasegawa, J.Phys.A16 (1983) L259.
- [HAR91] K.C.Harvey, C.J.Myatt, Optics Letters Vol16 n°12 (1991) 910
- [HER50] G.Herzberg, Spectra of diatomic molecules Snd edition, Ed Van.Nostrand.Reinhold.Compagny (1950).
- [HER82] D.R.Herrick, Phys.Rev.A26 (1982) 323.
- [HOL86] A.Holle, G.Wiebusch, J.Main, B.Hager, H.Rottke, K.H.Welge, Phys.Rev. Lett 56 (1986) 2594.
- [HOL87] A.Holle, G.Wiebusch, J.Main, K.H.Welge, G.Zeller, G.Wunner, T.Ertl, H.Ruder, Z.Phys.D 5 (1987) 279.
- [HON89] A.Hönig, D.Wintgen, Phys.Rev.A 39 (1989) 5642.
- [IMA 89] T.Imasaka, S.Kawasaki, and N.Ishibashi, Appl.Phys.B 49, (1989) 389-392.
- [IU 91] C.Iu, G.R.Welch, M.M.Kash, D.Kleppner, D.Delande, J.C.Gay, Phys.Rev.Lett 66 (1991) 145
- [JEN39] F.A.Jenkins, E.Segré, Phys.Rev 55 (1939) 52.
- [JUN75] J.Juncar et J.Pinard, Optics Comm 14, (1975) 438
- [KLA71] M.Klapisch, Comp.Phys.Com 2 (1971) 239.
- [LAB81] J.J.Labarthe, J.Phys B 14 (1981) L467.
- [LAN69] Landau, Lifchitz, "Mécanique" Ed.Mir, Moscou (1969).
- [LAU89] Phillipe Laurent, thèse de 3ème cycle, Paris XI (1989)
- [MAI87] J.Main, A.Holle, G.Wiebusch, K.H.Welge, Phys.Rev.Lett 56 (1987) 295.
- [MES64] A.Messiah, Mécanique quantique, tome2, Dunod, Paris (1964) 145.
- [O'MA89] P.F.O'Mahony, Phys.Rev.Lett 63 (1989) 2653.
- [ORT75] H.Orth, H.Ackermann, E.W.Otten, Z.Physik A 273 (1975), 221-232.

-
- [PAR86] J.P.Partanen and M.J.shaw, *J.Opt.Soc.Am B* 3, (1986).
- [PEN83] F.Penent, C.Chardonnet, D.Delande, F.Biraben, J.C.Gay, *J.de Physique c7* (1983) 193.
- [PUL84] R.A.Pullen, A.R.Edmonds, *J.PHys.A* 14 (1984) L477.
- [RAB75] H.Rabin, C.L.Tang, "Quantum Electronics: Thory of Non Linear Optical Susceptibilities" VolumeI, part A (19...) 74,199.
- [RAB76] P.Rabinowitz, A.Kaldor, R.Brickman, W.Schmidt, *Appl.Optics* Vol 15, (1976) 2005.
- [ROB81] M.Robnik, *J.Phys.A* 14 (1981) 3195.
- [ROT62] M.Rotenberg, *Ann.Phys.NY* 19 (1962) 262.
- [SHE84] The principles of non linear optics YR.Shen, A.Wiley-Interscience Publication 1984.
- [SHI87] F.Shimizu, K.Shimizu, Y.Gomi, H.Takuma, *Phys.Rev A* 35 (1987), 3149.
- [SIN70] Y.Sinaï, *Russ.Math.Surv* 25 (1970) 137.
- [SOL81] E.A.Solov'ev, *JETP Letters* 34 (1981) 265.
- [SOL82] E.A.Solov'ev, *JETP Letters* 55 (1982) 1017.
- [TAL82] A.Taleb, thèse de doctorat ,(1982).
- [THO88] C.Thomas Carre, thèse de doctorat, (1988).
- [VIA80] J.L.Vialle, Thèse de doctorat, Paris XI (1980).
- [VIA82] F.Viala, Thèse de 3ème cycle, Paris XI (1982)
- [WEL89] G.R.Welch, M.M Kash, C.Iu, L.Hsu, D.Kleppner, *Phys Rev Lett* 62 (1989) 893.
- [WIL79] W.Wilke and W.Schmidt, *Appl.Phys* 18, (1979) 177-181.

- [WIN86a] G.Wintgen, A.Holle, J.Main, G.Wiebusch, H.Friedrich, K.H.Welge,
J.Phys.B 19 (1986) L557.
- [WIN86b] D.Wintgen, H.Friedrich, J.Phys.B 19 (1986) 1261
- [WIN86c] D.Wintgen, H.Friedrich, Phys.Rev.Lett 57 (1986) 571.
- [WIN87] D.Wintgen, H.Friedrich, Phys.Rev.A 35 (1987) 1464.
- [WUN86] G.Wunner, U.Woelk, I.Zech, G.Zeller, T.Ertl, F.Geyer, W.Schweizer,
H.Ruder, Phys.Rev.Lett 57 (1986) 3231.
- [ZIM80] M.L.Zimmerman, M.M.Kash, D.Kleppner, Phys.Rev.Lett.45 (1980) 1092.
- [ZIM83] M.L.Zimmerman, R.C.Hulet, D.Kleppner, Phys Rev A 27 (1983) 2731.

Nom: BOULOUFA

Prénom: Nadia

Titre: DE LA REGULARITE AU CHAOS: ETUDE DE L'ATOME DE
LITHIUM EN PRESENCE D'UN CHAMP MAGNETIQUE INTENSE.

RESUME:

L'étude que nous avons entreprise dans ce mémoire est consacrée au système: atome + champ magnétique qui est un système quantique réel, simple, pour lequel l'étude de la dynamique classique montre l'apparition de trajectoires chaotiques. Il constitue donc un prototype pour l'étude de ce que nous appelons le chaos "quantique". Sa simplicité permet des études classique et quantique assez complètes, sa réalité, la possibilité d'une étude expérimentale.

Nous avons réalisé une expérience sur l'atome de lithium plongé dans un champ magnétique intense de 4,9 T utilisant une excitation laser à plusieurs étages des états proches de la limite d'ionisation. Le schéma d'excitation utilisé exploite les symétries dynamiques approchées du diamagnétisme. Son intérêt réside dans l'extrême simplicité du spectre dans la zone classiquement régulière, liée aux règles de sélection. A une énergie donnée, la complexité soudaine du spectre exprime la limite de validité de la symétrie considérée (brisure de la symétrie) et peut être directement reliée à l'apparition de trajectoires classiques chaotiques. Le spectre expérimental enregistré montre un accord remarquable avec le spectre calculé pour l'hydrogène.

MOTS CLES:

Lithium	Chaos classique
Etat de Rydberg	Chaos "quantique"
Champ magnétique	Laser
Brisure de symétrie	Spectroscopie haute résolution