

Orsay
N° d'ordre :

UNIVERSITE DE PARIS-SUD
U.F.R. SCIENTIFIQUE D'ORSAY

THESE

Présentée pour obtenir :

LE GRADE DE DOCTEUR EN SCIENCES
DE L'UNIVERSITE PARIS XI ORSAY

par

Bruno LABURTHE TOLRA

Sujet :

Atomes, molécules et plasmas ultra-froids :

- Transition d'un gaz de Rydberg gelé vers un plasma ultra-froid.
- Contrôle de collisions de photoassociation dans des schémas de résonance de Feshbach et de transition Raman stimulée.

Soutenue le 29 juin 2001 devant la commission d'examen

M. Alain ASPECT

M. Thomas F. GALLAGHER

M. Bertrand GIRARD

M. Jean-Claude KELLER

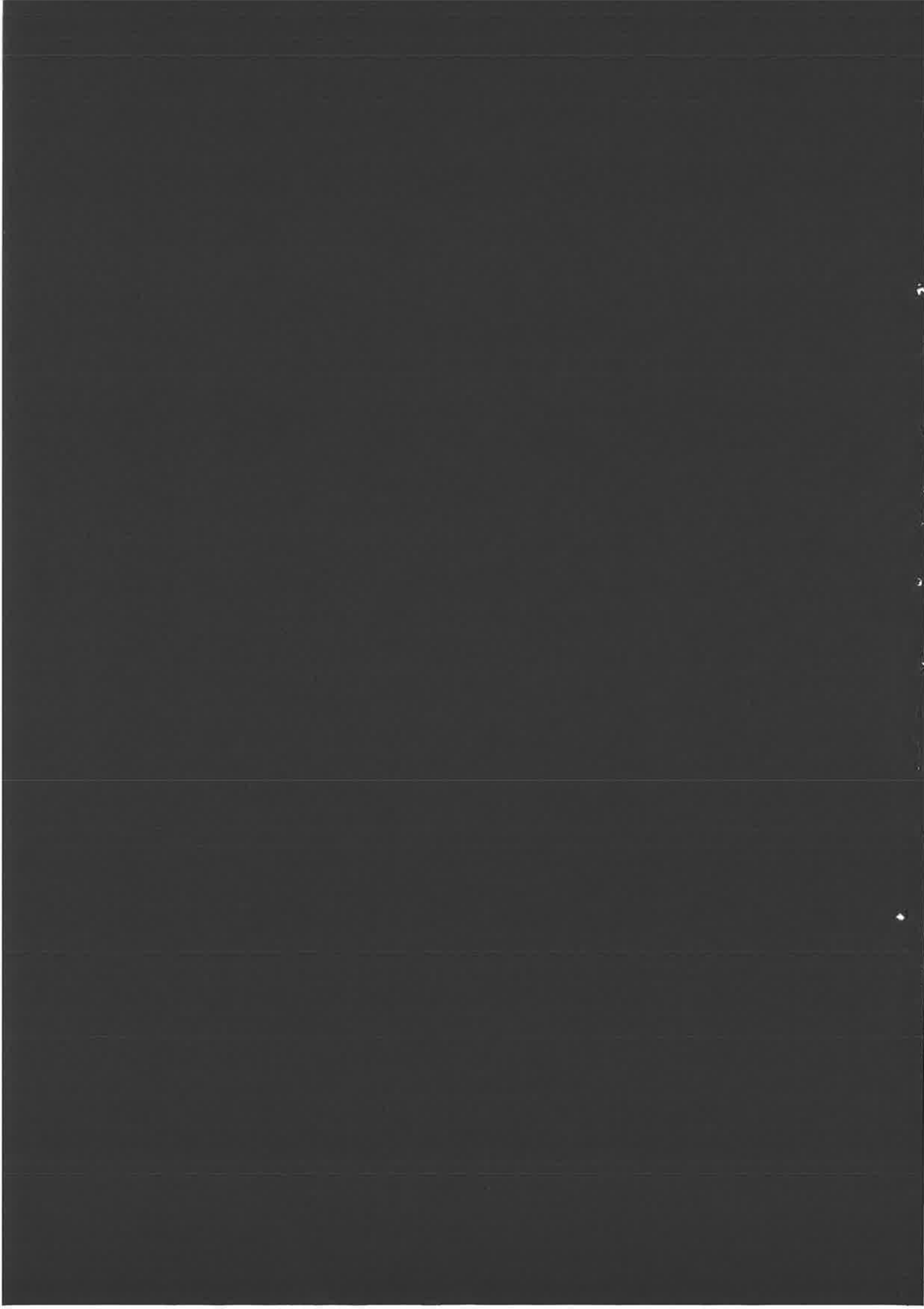
M. Pierre PILLET

M. Jean-Michel RAIMOND

Rapporteur

Directeur de thèse

Rapporteur



Orsay
N° d'ordre :

UNIVERSITE DE PARIS-SUD
U.F.R. SCIENTIFIQUE D'ORSAY

THESE

Présentée pour obtenir :

LE GRADE DE DOCTEUR EN SCIENCES
DE L'UNIVERSITE PARIS XI ORSAY

par

Bruno LABURTHE TOLRA

Sujet :

Atomes, molécules et plasmas ultra-froids :

- Transition d'un gaz de Rydberg gelé vers un plasma ultra-froid.
- Contrôle de collisions de photoassociation dans des schémas de résonance de Feshbach et de transition Raman stimulée.

Soutenue le 29 juin 2001 devant la commission d'examen

M. Alain ASPECT

M. Thomas F. GALLAGHER

M. Bertrand GIRARD

M. Jean-Claude KELLER

M. Pierre PILLET

M. Jean-Michel RAIMOND

Rapporteur

Directeur de thèse

Rapporteur

Tout d'abord, je souhaite remercier M. Colliex, pour avoir eu la gentillesse de m'accueillir au Laboratoire Aimé Cotton. Je tiens aussi à adresser à Pierre Pillet, mon directeur de thèse, ma plus vive reconnaissance, pour la manière avec laquelle il m'a introduit dans son équipe. J'apprécie tout particulièrement sa disponibilité et la confiance qu'il sait placer dans ses étudiants.

J'adresse ici tous mes remerciements à Jean-Claude Keller et Jean-Michel Raimond, qui ont eu la gentillesse d'accepter d'être les rapporteurs de ce manuscrit, ainsi qu'à Alain Aspect, Thomas F. Gallagher, et Bertrand Girard, pour avoir accepté de participer au jury de ma soutenance de thèse.

Cette thèse s'est inscrite dans un travail de groupe, et je voudrais ici souligner combien je suis redevable de l'ensemble des échanges que j'ai eus avec les expérimentateurs comme avec les théoriciens. La première année de ma thèse m'a permis de travailler de façon continue avec Cyril Drag, et je me souviens avec un grand plaisir des nombreuses expériences que nous avons réalisées ensemble. C'est aussi avec beaucoup de plaisir que j'ai travaillé avec Daniel Comparat, ainsi que, plus récemment, avec Nicolas Vanhaecke et Wilson de Souza Melo, et plus brièvement Antonio Zelaquet Khoury, Kirsten Jaspers et Christian Lisdat.

J'ai aussi travaillé pendant plusieurs mois avec Mike Robinson, et avec Thomas F. Gallagher. Merci à tous deux pour la gentillesse avec laquelle ils m'ont accueilli à l'Université de Virginie. Merci aussi mille fois à Tom, qui m'a transmis un peu de sa passion, et avec qui discussion et réflexion ont toujours été passionnantes !

Les conversations fréquentes avec l'équipe des « condenseurs » ont aussi été très précieuses pour moi. J'ai en particulier aimé côtoyer les « petits » Salah Boussen et Nathalie Hoang, ainsi que leurs aînés Samuel Guibal, Laurence Pruvost, Dan Marescaux et Jacques Pinard. Tous, à un moment ou à un autre, ont su se mettre à mon écoute et m'aider. Merci !

Je souhaite souligner combien la synergie entre le groupe des expérimentateurs et le groupe des théoriciens a été cruciale dans l'aboutissement des expériences que je présente dans ce manuscrit. J'ai collaboré avec beaucoup de plaisir et d'intérêt avec Benoît T'Jampens et Anne Crubellier sur la détermination des longueurs de diffusion. L'apport de Claude Dion, Olivier Dulieu et Françoise Masnou-Seeuws pour les calculs de taux de formation de molécules froides a de même été très précieux.

Je tiens à remercier Slava Kokoouline, Mihaela Vatasescu, Igor Mourachko, ainsi que Ricardo Gutierrez et Claude Amiot, dont le travail m'a été très utile, même si je n'ai pas réellement eu l'occasion de collaborer avec eux.

Je suis par ailleurs très reconnaissant à de nombreuses personnes au Laboratoire, qui ont assuré avec beaucoup d'efficacité (et de gentillesse !) le support administratif et technique de nos expériences. Je pense par exemple à Louis Cabaret qui m'a fait profiter de ses grandes compétences de lasériste. Je pense aussi en particulier aux « mécaniciens » Patrice Leroy, Jean-Louis Tutou, Daniel Civiale et Alain Drouet de l'atelier mécanique, Roger Leroux pour l'électronique ($U=RI$), Monique Durand, Josiane Dehoubert, Claudine Leroux et Mireille Frémont pour le support administratif et Roland Brémont pour la logistique. Merci à tous et toutes !

Je me souviens aussi tout particulièrement de Loïc et Ivan, mes copains de bureau, ainsi que de tous les membres du « groupe dji midji », Martial, Claude, Wilson, Ricardo, Pierre, Samuel, Nathalie, Salah, Nicolas, Philippe, Christian, Olivier, Daniel. C'était bien sympa !

Table des matières

1	Mise en oeuvre expérimentale	11
1.1	La source d'atomes froids	12
1.1.1	Refroidissement et piégeage d'atomes par laser	12
1.1.2	Dispositif expérimental : la source d'atomes froids.	19
1.1.3	Caractérisation du nuage d'atomes froids	24
1.1.4	Séquence de refroidissement sub-Doppler	27
1.1.5	Pompage optique	27
1.1.6	Polarisation des atomes	29
1.2	Formation et détection d'atomes de Rydberg	32
1.2.1	Généralités sur les atomes de Rydberg	32
1.2.2	Préparation des atomes de Rydberg	35
1.2.3	Détection des atomes de Rydberg	37
1.3	Expériences de photoassociation moléculaire	41
1.3.1	La molécule de césium	41
1.3.2	La réaction de photoassociation	47
1.3.3	Les lasers de photoassociation	52
1.3.4	Photoassociation et Trap-Loss	55
1.3.5	Détection des molécules formées	59
2	Evolution spontanée d'un gaz de Rydberg gelé vers un plasma ultra-froid	63
2.1	Notions de physique des plasmas	65
2.1.1	Définition	66
2.1.2	Longueur de Debye	66
2.1.3	Fréquence plasma	68
2.1.4	Energie d'un plasma	68
2.1.5	Plasma fortement corrélé	70
2.2	Evolution spontanée d'un gaz de Rydberg gelé vers un plasma ultra-froid	70
2.2.1	Etude en fonction de la densité d'atomes	72
2.2.2	Etude en fonction du nombre quantique principal.	74
2.2.3	Analyse temporelle	74

2.2.4	Scénario proposé	79
2.3	Accumulation d'une charge d'espace	80
2.3.1	Taux d'ionisation par le rayonnement du corps noir et collisions avec les atomes chauds	80
2.3.2	Charge d'espace	84
2.3.3	Bilan	85
2.4	Mécanisme de formation du plasma	86
2.4.1	Collisions électrons-atomes de Rydberg.	88
2.4.2	Energie cinétique des électrons	90
2.4.3	Modèle	92
2.5	Dynamique de formation du plasma	95
2.5.1	Effet d'une radiofréquence sur la dynamique de formation du plasma	95
2.5.2	Formation du plasma en présence d'un champ électrique constant	98
2.5.3	Modèle	99
2.6	Questions et perspectives	101
2.6.1	Propriétés du plasma formé	102
2.6.2	Transition vers un plasma	103
2.6.3	Conclusion	105
3	Détermination des paramètres collisionnels de l'atome de césium par spectroscopie de photoassociation	107
3.1	La spectroscopie de photoassociation	110
3.1.1	Les spectres	110
3.1.2	Les données spectroscopiques	116
3.1.3	Les traitements semi-classiques	117
3.2	Détermination de la longueur de diffusion par analyse des minima d'intensité dans les spectres de PA	120
3.2.1	La spectroscopie de l'état 0_g^-	122
3.2.2	Spectre 4-4 et longueur de diffusion triplet.	123
3.2.3	Etude expérimentale d'une résonance de Feshbach	132
3.3	La spectroscopie de frustration de photoassociation par effet Autler-Townes	148
3.3.1	Spectroscopie de l'état 1_u	149
3.3.2	Spectroscopie par frustration de photoassociation par effet Autler-Townes	152
3.3.3	Analyse des données ; comparaison avec les données Feshbach.	160
3.4	Conclusion	161
4	Formation et piégeage de molécules froides	163
4.1	Formation de molécules froides.	164
4.1.1	Temps de vie des molécules détectées	164
4.1.2	Mesure de la température des molécules	166

4.1.3	Les différents mécanismes conduisant à la formation de molécules froides. . .	170
4.1.4	Taux de formation.	182
4.2	Formation de molécules froides par photoassociation Raman stimulée	183
4.2.1	Modèle perturbatif	184
4.2.2	Formation de molécules froides par PA Raman stimulée.	195
4.2.3	Bilan et perspectives	205
4.3	Réalisation d'un piège magnétique de molécules froides.	206
4.3.1	Règles de sélection et force de piégeage	207
4.3.2	Mise en oeuvre du dispositif	212
4.3.3	Piège magnétique de molécules froides	215
4.3.4	Perspectives	219
4.4	Conclusion	220
A	Eléments de physique moléculaire	227
A.1	Approximation de Born Oppenheimer	227
A.2	Symétries des fonctions d'onde	228
A.2.1	Symétries du hamiltonien total	228
A.2.2	Symétries des états électroniques	228
A.3	Energie des états électroniques	230
A.3.1	Développement multipolaire	231
A.3.2	Interactions hyperfines	231
A.4	Mouvement des noyaux	232
A.4.1	Fonctions d'onde de rotation-vibration	232
A.4.2	Energie de rotation-vibration	232
A.4.3	Spectroscopie LeRoy-Bernstein	233
A.5	Fonction d'onde au dessus de la limite de dissociation	236
A.5.1	Fonction d'onde de deux atomes en collision	236
A.5.2	Longueur de diffusion	238
A.6	Interaction d'une molécule avec un champ extérieur	239
A.6.1	Terme électronique	239
A.6.2	Moment dipolaire $\langle \alpha' f_q^k \alpha \rangle$	240
A.6.3	Principe de Franck-Condon	241
A.7	Limites de l'approximation de Born-Oppenheimer : les équations couplées	241
A.7.1	Les équations couplées	242
A.7.2	Couplage résonant.	243
A.7.3	Largeur de la résonance	243
A.7.4	Effet du couplage sur la fonction d'onde des atomes en collision	244

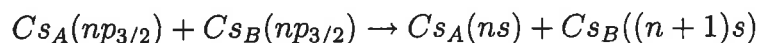
B	Théorie de la photoassociation, modèle perturbatif	247
B.1	Définition du problème	247
B.1.1	Etat initial	247
B.1.2	Etat final	249
B.2	Calcul du taux	249
B.2.1	Evolution de la matrice densité	249
B.2.2	Terme de couplage dipolaire	251
B.2.3	Intégrale de recouvrement	253
B.3	Taux de photoassociation	254
B.3.1	Taux de photoassociation	254
B.3.2	Prise en compte de l'émission spontanée	255
C	Interaction entre des électrons piégés dans une charge d'espace et le rayonnement du corps noir.	257
C.1	Rappel : émission spontanée et déplacement de Lamb ; règle d'Or de Fermi.	257
C.2	Dipôle et largeur naturelle des niveaux de la charge d'espace	259
C.3	Rayonnement des électrons	261

INTRODUCTION

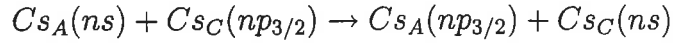
Le développement fantastique, à partir du début des années 1980, du refroidissement d'atomes par laser puis du refroidissement évaporatif nous permet aujourd'hui de disposer d'outils très nouveaux pour la physique atomique et moléculaire, comme les gaz d'atomes ultra-froids, ou les condensats de Bose-Einstein d'atomes. De très nombreuses équipes à travers le monde utilisent ces dispositifs pour des expériences très variées de métrologie, d'optique quantique, ou de physique atomique et moléculaire. Dans de tels dispositifs, les phénomènes de collision et d'interaction entre atomes froids sont souvent au centre de la compréhension des phénomènes observés - on sait l'importance des collisions pour comprendre le fonctionnement d'un piège magnéto-optique, mais aussi dans les dispositifs d'horloges en fontaine, ou encore pour le refroidissement évaporatif, qui permet d'atteindre la condensation de Bose-Einstein. Les collisions entre atomes froids (ou collisions froides) présentent des propriétés très différentes des collisions à énergie thermique ; leur étude permet d'appréhender de très nombreux effets nouveaux.

Ma thèse se situe dans la thématique développée au Laboratoire Aimé Cotton portant sur le problème des collisions et des interactions entre atomes froids et de leurs applications. Deux sujets distincts sont abordés dans cette thèse : l'un concerne l'étude d'un gaz ultra-froid d'atomes de Rydberg, et son évolution spontanée vers un plasma ultra-froid ; l'autre consiste en l'étude du processus de photoassociation d'atomes froids : en particulier, l'utilisation de la spectroscopie de photoassociation pour la détermination de paramètres de collision comme les longueurs de diffusion, et surtout la formation de molécules froides.

La physique des gaz d'atomes froids est en particulier régie par les collisions froides à grande distance. Les atomes de Rydberg froids offrent des conditions extrêmes de ce comportement avec une grande richesse de situations. Atomes géants dont la taille varie comme le carré du nombre quantique principal, les atomes de Rydberg sont très sensibles aux interactions interatomiques. De plus, la vitesse des atomes de Rydberg froids est si faible qu'ils peuvent à l'échelle de leur durée de vie ou du temps de l'expérience être considérés comme quasi-immobiles (le déplacement d'un atome est petit comparé à la distance interatomique moyenne). On parle de gaz de Rydberg gelé, dont les propriétés peuvent s'apparenter à celles d'un solide amorphe. Un exemple étudié dans la thèse d'Igor Mourachko [79] est le processus de transfert d'énergie interne :

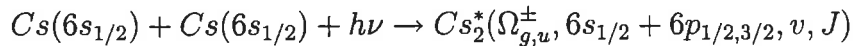


très efficace à cause des grandes valeurs des moments dipolaires. Ce processus est résonant en amenant en énergie par effet Stark le niveau $np_{3/2}$ à mi-chemin entre les deux niveaux s adjacents. Il a été montré que la migration d'excitation dans le milieu



affecte l'évolution d'une paire d'atomes proches, dans l'environnement créé par les autres atomes (effets à N-corps). A la frontière de la physique de l'état solide, les gaz de Rydberg froids sont aussi à la frontière de la physique des plasmas. L'étude de plasmas ultra-froids obtenus par photoionisation d'un gaz froid d'atomes de xénon métastables a été réalisée au NIST ([18], [16],[23]). Ces plasmas sont des systèmes physiques très originaux avec des propriétés de corrélation très forte entre le mouvement des ions et des électrons. Nous avons pour notre part montré que pour des densités suffisamment élevées, les gaz de Rydberg froids de nombre quantique principal assez élevé ($n > 30$) présentent un caractère d'instabilité et évoluent vers un plasma ultra-froid quasi-neutre. Cette propriété inattendue fait l'objet du chapitre 2 de cette thèse.

La photoassociation d'atomes froids, proposée en 1987 [93], correspond également à des collisions à grande distance, avec la formation de molécules de très grande élongation (jusqu'à 10 nm). La réaction de photoassociation est une réaction de photochimie. Dans notre cas, deux atomes de césium en collision dans leur état fondamental absorbent de façon résonante un photon, et forment une molécule électroniquement excitée dans un niveau de rotation-vibration d'un état moléculaire attractif corrélé à l'une des limites de dissociation $6s+6p_{1/2,3/2}$. Une écriture simplifiée de la réaction est :



où $\Omega_{g,u}^\pm$ est la symétrie de l'état moléculaire électroniquement excité et v, J désignent la vibration et la rotation de la molécule. L'efficacité de la réaction de photoassociation est d'autant plus grande qu'on forme des molécules de très grande élongation interatomique (voir partie a) de la figure 1). Pour les molécules excitées, asymptotiquement reliées à $6s+6p$, le potentiel d'interaction est en C_3/R^3 (contrairement au potentiel de Van-der-Waals en C_6/R^6 de l'état fondamental). Ce comportement asymptotique assure l'existence de nombreux niveaux de rotation-vibration électroniquement excités de grande extension spatiale qu'on peut atteindre par photoassociation. Du fait de la très basse température ($\sim 100\mu K$), il est possible de réaliser une spectroscopie de très haute résolution par photoassociation des molécules électroniquement excitées sous les limite de dissociation (états très difficilement atteignables par les méthodes de spectroscopie traditionnelles).

Une application fondamentale de la photoassociation est la possibilité de former des molécules froides dans l'état fondamental par désexcitation radiative des états électroniquement excités peuplés par photoassociation. En effet, l'extension des atomes aux molécules des techniques de refroidissement laser est rendue très difficile par le fait qu'il n'existe pas de transition moléculaire fermée permettant d'exercer efficacement une force de pression de radiation. Plusieurs groupes ont proposé des voies nouvelles pour obtenir des gaz de molécules froides. La première démonstration a été réalisée en 1997 au Laboratoire Aimé Cotton. Elle utilise pour cela la photoassociation d'états

présentant un puits de potentiel à longue distance (états 0_g^- et 1_u), qui, outre une probabilité de photoassociation importante, présentent un rapport de branchement important pour la formation de molécules froides (transition lié-lié par émission spontanée) par rapport à la dissociation (transition lié-libre). Ce point est illustré figure 1b). Une deuxième méthode a été développée avec succès en 1998 par l'équipe de J. M. Doyle à Harvard [70] où des molécules de CaH ont été refroidies par collision avec un gaz tampon de 3He , puis piégées dans un piège magnétique. Finalement, le groupe de G. Meijer a démontré que des gradients de champs électriques pulsés pouvaient être utilisés pour ralentir et piéger ND₃ [71]. De ces méthodes, seule la photoassociation permet d'atteindre le domaine du micro-kelvin. Les autres ne descendent pas pour l'instant sous 300 mK. L'utilisation d'atomes froids pour former des molécules *via* la réaction de photoassociation a permis d'étendre le champ des atomes froids aux molécules.

Le passage des molécules électroniquement excitées à des molécules froides dans l'état fondamental par émission spontanée est loin d'être trivial. En effet, les états dans lesquels les atomes sont photoassociés sont des états de grande élongation qui sont conduits la plupart du temps à se dissocier lors de l'émission spontanée. L'efficacité de production de molécules froides dans le cas du césium repose sur l'existence de puits de potentiel à longue distance qui présentent une barrière répulsive douce à distance intermédiaire (cas des états 1_u et 0_g^- corrélés à la limite de dissociation $6s+6p_{3/2}$). La probabilité de présence des molécules excitées à relativement courte distance interatomique est alors suffisamment élevée pour permettre un taux important de formation de molécules froides lors de la désexcitation, comme l'illustre la figure 1b). Notons que les états 0_g^- et 1_u corrélés à la limite de dissociation $6s+6p_{3/2}$ sont des états assez curieux, où les atomes sont en permanence séparés de plus de 25 ou 30 a_0 . Ces molécules, pour lesquelles les fonctions d'onde électroniques ne se recouvrent pratiquement pas, constituent à peine des édifices moléculaires, mais plutôt une paire d'atomes, dont la cohésion est assurée uniquement par les interactions électrostatiques à longue distance (connues sous le nom de "pure long range molecules" [65]). On est à la frontière entre physique atomique et moléculaire.

Ce mémoire comporte quatre chapitres. Les chapitres 2, 3 et 4 sont consacrés aux résultats les plus importants obtenus au cours de ma thèse. Le chapitre 2 porte sur l'évolution spontanée d'un gaz de Rydberg vers un plasma ultra-froid. Le chapitre 3 traite de l'utilisation de la spectroscopie de photoassociation pour la détermination des longueurs de diffusion du césium. Le chapitre 4 porte sur les différents mécanismes de formation de molécules froides, la photoassociation Raman stimulée, et le piégeage de molécules froides. Toutes ces expériences ont été réalisées sur le même montage expérimental (un piège magnéto-optique en cellule), qui présente la particularité de permettre une détection ionique. Celle-ci permet la détection sélective d'atomes de Rydberg, mais aussi des molécules froides formées. Dans le premier chapitre de ma thèse, je décris les principales caractéristiques du montage expérimental, ainsi que des notions de base sur les atomes de Rydberg, et sur la photoassociation d'atomes froids. Je décris aussi les différentes procédures expérimentales utilisées, ainsi qu'une mesure du taux de photoassociation moléculaire.

Dans le deuxième chapitre, j'aborde le sujet du gaz de Rydberg ultra-froid, et l'analyse de son évolution spontanée vers un plasma ultra-froid. Ce résultat a fait l'objet d'une publication [17], et de commentaires dans *Physical Review Focus* [25] et dans *Physics World* [26]. Ce travail a été mené en parallèle au Laboratoire Aimé Cotton et à l'Université de Virginie, où une étude complémentaire, utilisant un piège magnéto-optique de rubidium, a été menée par le groupe de T. F. Gallagher.

Nous avons observé l'évolution spontanée d'un gaz de Rydberg gelé vers un plasma ultra-froid, qui se produit lorsque la densité initiale d'atomes de Rydberg est suffisamment élevée, et que le nombre quantique principal des atomes est grand. Deux phases ont été mises en évidence dans cette évolution : dans une première phase, on observe la création d'une charge d'espace ionique. Deux mécanismes ont été identifiés pour l'ionsation des atomes de Rydberg. D'une part l'absorption du rayonnement du corps noir, et d'autre part des collisions entre les atomes de Rydberg froids et des atomes de Rydberg chauds, excités depuis le gaz résiduel présent dans la cellule. Du fait de ces deux processus, il se développe une charge d'espace. Lorsque celle-ci est suffisante, le piégeage par celle-ci d'électrons entraîne un phénomène d'ionisation en avalanche qui conduit à la formation d'un plasma quasi-neutre, ultra-froid.

Les chapitres 3 et 4 de ma thèse concernent la photoassociation moléculaire d'atomes froids, et certaines de ses applications. Ces résultats constituent le travail de ma thèse pour lequel j'ai consacré le plus de temps. Deux thématiques différentes apparaissent. La première concerne la détermination des paramètres de longueurs de diffusion, et aussi l'étude d'une résonance de Feshbach par spectroscopie de photoassociation. Ceci est retracé dans le chapitre 3. Ces mesures sont motivées par l'importance de ces paramètres pour concevoir des expériences en vue de réaliser la condensation de Bose-Einstein avec le césium. La spectroscopie de photoassociation a été largement étudiée pour Cs_2 . Je développe dans cette thèse essentiellement son application à la détermination des longueurs de diffusion du césium. L'étude de l'intensité des raies de photoassociation est un outil qui permet d'acquérir des informations sur la fonction d'onde radiale à longue distance interatomique des atomes en collision. En effet, l'efficacité de la photoassociation est liée aux facteurs de Frank-Condon correspondant au recouvrement des fonctions d'onde radiales initiale et finale de la réaction de photoassociation ; on peut comprendre sur la figure 1a) que pour des niveaux de nombre vibrationnel grand, ce facteur est proportionnel au carré du module de la fonction d'onde des atomes en collision, prise au point tournant classique externe du niveau final. Les zéros d'efficacité de photoassociation sont ainsi reliés aux noeuds de la fonction d'onde radiale des atomes en collision. L'étude de ces zéros nous permet de donner une mesure de la longueur de diffusion de l'état triplet [35]. Cette étude est généralisée dans ce manuscrit à l'étude d'une résonance de Feshbach. Dans ce travail de détermination des longueurs de diffusion de l'atome de césium, très peu de paramètres *ab-initio* sont nécessaires : quasiment tous les paramètres nécessaires peuvent être déduits de l'expérience.

J'ai également mené d'autres expériences pour déterminer les longueurs de diffusion du césium.

Il s'agit de la frustration de la réaction de photoassociation par effet Autler-Townes dû au couplage laser résonant entre le niveau atteint par photoassociation et un niveau de l'état moléculaire fondamental. Ceci permet la spectroscopie des derniers niveaux liés de l'état fondamental. Des développements théoriques sont en cours au Laboratoire Aimé Cotton pour l'analyse des données obtenues.

Avec le quatrième chapitre, j'aborde l'utilisation de la photoassociation pour obtenir un gaz de molécules froides. Je décris des mesures de température des molécules produites *via* photoassociation ; on montre que le nuage de molécules formées est à la même température que le nuage atomique de départ. L'efficacité de formation de molécules est mesurée entre 0,05 et 0,2 molécules par atome et par seconde dans nos conditions expérimentales, ce qui permet d'espérer former plusieurs millions de molécules par seconde. Je détaille dans ce chapitre les mécanismes favorables à la production de molécules froides, en insistant sur un nouveau mécanisme, mis en évidence lorsqu'on excite l'état 0_u^+ corrélé à la limite de dissociation $6s+6p_{1/2}$. Cet état, en effet, est couplé par couplage radial à courte distance avec l'état de même symétrie 0_u^+ , corrélé à $6s+6p_{3/2}$. De ce fait, la molécule excitée présente une forte probabilité de présence à courte distance internucléaire, ce qui est favorable à la production de molécules froides. Ce mécanisme est presque aussi efficace que le mécanisme du double-puits mis en évidence dans le cas la photoassociation des états 1_u et 0_g^- évoqué précédemment (illustré figure 1b)). L'avantage de ce nouveau mécanisme est qu'il est probablement plus généralisable à d'autres systèmes moléculaires que Cs_2 .

Ces mécanismes de formation de molécules froides permettent de former plusieurs millions de molécules par seconde dans nos conditions expérimentales. Deux problèmes se posent cependant pour exploiter ces gaz froids de molécules : d'une part ces molécules ne sont pas piégées, et elles tombent sous l'effet de la gravité ; d'autre part, elles sont formées dans plusieurs états de rotation-vibration du fondamental. Pour résoudre ces problèmes, j'ai réalisé deux expériences. L'une a consisté à produire les molécules par photoassociation Raman stimulée. Ce schéma, qui consiste à stimuler la désexcitation des molécules photoassociées vers un niveau choisi, permet de produire des molécules froides qui sont toutes dans le même état. Nous avons montré que ce mécanisme est assez efficace, même dans un piège magnéto-optique, puisque nous avons observé un taux de 10^5 molécules par seconde. L'autre expérience a consisté à piéger les molécules froides produites *via* photoassociation dans l'état triplet du fondamental, en utilisant un piège magnétique. Le temps de vie du piège obtenu est de l'ordre de la seconde.

Chapitre 1

Mise en oeuvre expérimentale

Le travail dont je rends compte dans ce manuscrit est principalement un travail expérimental. Je décris dans ce chapitre les dispositifs qui ont permis la réalisation des expériences détaillées dans les chapitres 2, 3, et 4. Je résume par ailleurs un certain nombre de notions qui, pour certaines, sont développées dans des thèses précédentes (Igor Mourachko [79], Daniel Comparat [7], et Cyril Drag [4]). Pour autant, ce chapitre n'est pas seulement un chapitre introductif, et j'y décris aussi les procédures et les expériences qui permettent de caractériser les différents dispositifs.

Pour l'essentiel, notre dispositif expérimental consiste en un piège magnéto-optique de césium (décrit paragraphe 1.1). Sa spécificité réside principalement dans la détection ionique qui y a été implantée : le piège magnéto-optique est entouré de grilles, sur lesquelles des champs électriques peuvent être appliqués, de manière à accélérer des ions ou des électrons vers des galettes micro-canaux. Dans un premier temps, après avoir rappelé brièvement les principes du refroidissement et du piégeage d'atomes par laser, je décrirai en détail le montage expérimental ainsi que quelques expériences de caractérisation du piège magnéto-optique, notamment en termes de densité et de température. Des séquences temporelles de refroidissement sub-Doppler et de polarisation atomique sont aussi présentées dans ces paragraphes.

Une partie de mon travail de thèse a consisté en l'étude de l'évolution d'un gaz de Rydberg gelé vers un plasma ultra-froid. Je décris donc dans la partie 1.2 les éléments spécifiques du montage expérimental, liés à l'excitation et à la détection d'atomes de Rydberg. Les atomes de Rydberg sont excités grâce à un laser à colorant pulsé, et ils sont détectés sélectivement par l'application d'une rampe de champ électrique. Notre dispositif expérimental permet ainsi d'obtenir des atomes de Rydberg, pour des nombres quantiques principaux compris entre 23 et 60.

La troisième partie de ce chapitre (partie 1.3) détaille la mise en oeuvre expérimentale des expériences de photoassociation. La réaction de photoassociation consiste à exciter une paire d'atomes au cours de leur collision, pour former une molécule électroniquement excitée. Comme il est expliqué en introduction, après émission spontanée, ces molécules peuvent soit se dissocier (processus le plus probable), soit former des molécules froides (on verra dans quelles conditions). Je rappelle succinctement les résultats essentiels d'un modèle perturbatif de cette réaction ; puis, je décris l'ensemble des lasers et des techniques utilisées pour produire et détecter le processus de

photoassociation. Je détaille en particulier les expériences que nous avons réalisées pour déterminer précisément le nombre de molécules électroniquement excitées produites par photoassociation. Le taux de photoassociation, qui varie entre 0,1 et 5 molécules par atome et par seconde dans nos conditions expérimentales, est comparé à celui prédit par le modèle théorique. Finalement, je décris la méthode de détection des molécules froides.

1.1 La source d'atomes froids

Les expériences que nous avons développées concernent les problèmes de collisions et d'interactions entre atomes froids. Je commencerai par décrire les principes et la mise en oeuvre d'un piège magnéto-optique. Au laboratoire Aimé Cotton, le piège sur lequel j'ai travaillé contient typiquement 50 millions d'atomes ; la densité moyenne est de $4 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-3}$, la densité maximale au centre du piège 10^{11} cm^{-3} , et la température, $130 \mu\text{K}$. C'est à partir de cet échantillon d'atomes que sont menées les expériences que je retracerai dans les chapitres 2, 3 et 4. Pour certaines applications cependant, il est nécessaire de raffiner la préparation des atomes de césium. Sont décrites dans ce paragraphe des procédures expérimentales qui permettent : l'obtention d'un échantillon encore plus froid (de l'ordre de $30 \mu\text{K}$) ; le pompage optique des atomes dans un niveau hyperfin donné ($F=3$) ; la polarisation des atomes dans un sous-niveau Zeeman déterminé $F=4 m_F = 4$ ou $F=3 m_F = 3$.

1.1.1 Refroidissement et piégeage d'atomes par laser

Nous décrivons ici les procédures de refroidissement d'atomes dans un piège magnéto-optique. La manipulation d'atomes par laser constitue un champ de recherche très actif. Les principes fondamentaux en sont pourtant bien connus, et la mise en oeuvre d'un piège magnéto-optique, sans être aisée, est aujourd'hui chose courante dans un laboratoire de recherche. Pour une approche extensive, non seulement du refroidissement d'atomes par laser, mais aussi, plus globalement, la manipulation et le piégeage d'atomes neutres, on peut consulter de très nombreux articles, mais aussi le livre de synthèse de H. J. Metcalf et P. van der Straten [76].

a) Principe du refroidissement laser

L'absorption ou l'émission d'un photon de vecteur d'onde \vec{k} par un atome peut être interprétée comme l'échange d'une quantité de mouvement $\hbar \vec{k}$ entre le rayonnement et l'atome, de sorte que la conservation de l'impulsion totale du système {atome, photon} soit assurée. Ainsi, lors de l'absorption d'un photon, l'atome subit une variation d'impulsion :

$$m\Delta \vec{v} = \Delta \vec{p} = \hbar \vec{k}$$

La variation en vitesse de l'atome est de l'ordre de 3,5 mm/s pour l'atome de césium lors de l'absorption ou de l'émission d'un photon à 852 nm. Lors de l'interaction d'un atome avec un laser, l'atome subit des cycles d'absorption suivie d'émission spontanée¹. L'émission spontanée d'un photon se produit avec la même probabilité dans une direction et dans la direction opposée, si bien qu'en moyenne, un cycle absorption-émission spontanée se traduit par une variation d'impulsion de l'atome de $\hbar \vec{k}$.

Il en résulte une force moyenne dirigée dans le sens de propagation du faisceau : c'est la force de pression de radiation. L'utilisation de cette force, en configuration de mélasse optique permet de refroidir des atomes : on applique trois paires de lasers contre-propageants, suivant trois directions perpendiculaires de l'espace ; si la fréquence des faisceaux laser est légèrement inférieure à la fréquence de résonance de l'atome, du fait de l'effet Doppler, les atomes en mouvement absorbent préférentiellement des photons dans le faisceau laser dont la direction de propagation est la plus opposée à leur vitesse. Il en résulte une force opposée à la vitesse de l'atome, c'est-à-dire une force de friction.

Un atome de césium à 300K a une vitesse typique de 100 m/s. Il peut donc être stoppé par un faisceau laser de direction opposée à sa vitesse, pourvu qu'il subisse environ 40 000 cycles d'absorption-émission spontanée. Ceci signifie qu'après excitation, l'électron doit se désexciter dans le même niveau que le niveau de départ : la transition électronique doit être fermée. Ceci est une condition très restrictive, qui limite l'application du refroidissement laser aux atomes, et rend en particulier quasi-impossible leur extension aux molécules. Dans la pratique, dans le cas des alcalins, du fait de la structure hyperfine, l'émission spontanée dépompe les atomes dans d'autres niveaux électroniques que le niveau de départ. Un autre laser est alors nécessaire pour repomper les atomes dans le niveau initial.

b) Force de pression de radiation

Comme on l'a vu au paragraphe précédent, pour pouvoir décélérer un atome en utilisant la force de pression de radiation, il est nécessaire que la transition électronique soit fermée. De fait, le modèle simpliste de l'atome à deux niveaux suffit à évaluer la force de pression de radiation. On considère un atome à deux niveaux, séparés de $\hbar\omega_0$. On montre en utilisant le formalisme des équations de Bloch que la probabilité d'excitation par un laser est :

$$p = \frac{\Omega^2/4}{\delta^2 + \Gamma^2/4 + \Omega^2/2} \quad (1.1)$$

où Ω est la pulsation de Rabi du laser, Γ est la largeur naturelle du niveau excité, et δ est le décalage à résonance dans le référentiel de l'atome. On note par ailleurs :

¹L'absorption peut aussi être suivie d'émission stimulée. Cependant, dans ce cas, l'atome ne subit pas de variation d'impulsion, car l'impulsion du photon absorbé est égale à celle du photon émis.

$$\Omega^2 = \frac{I}{2I_{sat}} \Gamma^2 \quad (1.2)$$

$$I_{sat} = \frac{1}{6} \hbar c k^3 \frac{\Gamma}{2\pi}$$

I_{sat} vaut dans le cas du césium 1,1 mW/cm². $\Gamma/2\pi$ vaut pour le césium 5,23 MHz. $k = 2\pi/\lambda$, où λ est la longueur d'onde de la transition considérée, 852 nm dans notre cas (voir figure 1.1)

Alors, la force exercée par ce laser est

$$\vec{F}(\delta, \vec{k}) = \hbar \vec{k} \Gamma \frac{\Omega^2/4}{\delta^2 + \Gamma^2/4 + \Omega^2/2} \quad (1.3)$$

$\hbar \vec{k}$ est l'impulsion transférée à chaque cycle à l'atome, et on reconnaît dans le dernier terme l'état d'excitation moyen de l'atome.

c) Principe de piège magnéto-optique

Dans un piège magnéto-optique, on applique trois paires de lasers contre-propageants, suivant trois directions perpendiculaires de l'espace. Leur fréquence est décalée vers le rouge d'une transition atomique fermée (décalage noté δ_0). La transition considérée est une transition du type $J \rightarrow J' = J + 1$, où J et J' représentent le moment angulaire total de l'état fondamental et de l'état excité. Comme nous l'avons expliqué ci-dessus, il en résulte une force de friction, que l'on peut calculer (dans le cas d'un atome à deux niveaux) d'après l'équation 1.3 :

$$\vec{F} = -\beta \vec{v}$$

En outre, on applique, à l'aide d'une paire de bobines en position anti-Helmholtz, perpendiculairement à l'axe Z, un gradient de champ magnétique. La divergence du champ magnétique étant nulle, et par raison de symétrie, on a :

$$\frac{\partial B_x}{\partial x} = \frac{\partial B_y}{\partial y} = -\frac{1}{2} \frac{\partial B_z}{\partial z} \quad (1.4)$$

Du fait de l'effet Zeeman, il se produit une levée de dégénérescence des différents sous-niveaux Zeeman des niveaux fondamental (de moment total J) et excité (de moment total J'). Alors, pour un bon choix de la polarisation des faisceaux laser, plus l'atome est éloigné du centre du dispositif (c'est-à-dire le point où le champ magnétique B est nul), plus il est à résonance avec les lasers, et plus il ressent la force de pression de radiation. Il en résulte une force de rappel :

$$\vec{F} - \kappa \vec{z}$$

L'effet général de la force de pression de radiation en présence d'un gradient de champ magnétique est donc la combinaison d'une force de friction et d'une force de rappel. Ces deux forces permettent le refroidissement et le piégeage des atomes, ce qui permet la réalisation d'un piège magnéto-optique. On montre que la force de friction est maximale pour $\delta_0 = -\Gamma/2$ et $\Omega = \Gamma$.

d) Application à l'atome de césium

Les modalités d'application des principes sur lesquels reposent le refroidissement et le piégeage d'atomes neutres varient en fonction de la structure électronique des atomes. Dans le cas du césium la force de friction maximale est obtenue pour une intensité de l'ordre de $2,2 \text{ mW/cm}^2$ ($= 2I_{sat}$). Dans ces conditions, on a $\beta = \frac{k^2 \hbar}{4}$ et $\kappa = \frac{k \mu_B B'}{4}$ où μ_B est le magnéton de Bohr (1,4 MHz par Gauss) et B' est le gradient du champ magnétique. Lorsque B' est de l'ordre de 10 Gauss/cm, le mouvement dans le piège magnéto-optique est sur-amorti. En effet, la fréquence d'oscillation $\sqrt{\kappa/M}$ vaut 1 kHz, et la fréquence d'amortissement β/M 6 kHz. Le temps d'amortissement est de κ/β , c'est-à-dire 5 ms. Notons par ailleurs qu'en utilisant le théorème d'équipartition de l'énergie, on peut déduire de la température du piège magnéto-optique sa taille ϕ :

$$\kappa \phi^2 = k_B T \quad (1.5)$$

Comme on le verra, la température dans un piège magnéto-optique est typiquement de quelques centaines de micro-Kelvins, si bien que la taille d'un piège magnéto-optique est de l'ordre de quelques centaines de micromètres.

La structure de l'atome de césium Le césium est un atome alcalin. Il contient 55 électrons. L'électron de valence est situé sur l'orbitale 6s. La structure électronique des premiers niveaux d'énergie du césium est donnée figure 1.1. On distingue, de gauche à droite, la structure fine, la structure hyperfine, et l'effet Zeeman de structure hyperfine. L'atome de césium est piégé en utilisant la transition fermée D_2 à 852 nm $6s(F=4) \rightarrow 6p_{3/2}(F'=5)$.

Structure hyperfine et laser repompeur Dans le cas de la transition $F = 4 \rightarrow F' = 5$, la situation est assez complexe, notamment parce que les énergies des sous-niveaux Zeeman de l'état $F=4$ sont modulées spatialement par effet Zeeman. De nombreuses transitions interviennent avec des forces d'oscillateur déterminées par les coefficients de Clebsh-Gordan. La théorie du refroidissement est donc complexe, mais les principes généraux et la mise en oeuvre du piège magnéto-optique n'en sont pas modifiés.

Cependant, il y a une probabilité non négligeable pour que le laser excite l'état $6p_{3/2}(F'=4)$. Ce processus dépompe par émission spontanée les atomes dans l'état $6s(F=3)$. Les atomes dans

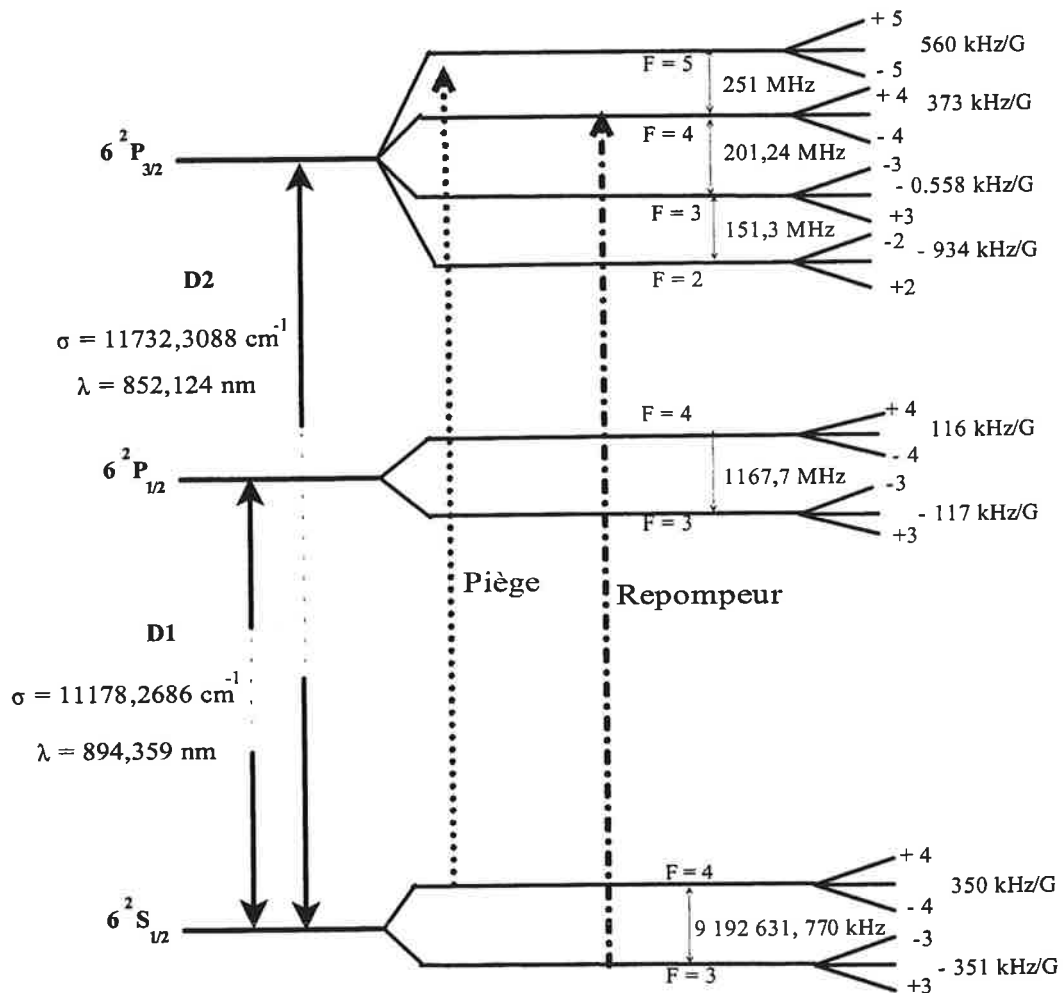


FIG. 1.1: Premiers niveaux d'énergie du césium. On a représenté la structure fine et la structure hyperfine. On peut consulter la référence [78] pour une mise à jour régulière des données sur le césium, en particulier pour la raie D₂. L'effet Zeeman qui est représenté correspond à l'effet Zeeman pour $m_F = +1$. Sont aussi représentés les lasers piège et repompeur nécessaires à l'obtention du piège magnéto-optique.

l'état hyperfin $F=3$, ne ressentent pas l'effet des lasers de piégeage. Si on n'y remédie pas, ce dépompage empêche l'obtention du piège magnéto-optique : dans le cas du césium (voir figure 1.1), la probabilité d'excitation (équation 1.1) par le laser piège de l'état $F'=4$ est de $2 \cdot 10^{-2}$. Cela signifie un taux d'absorption de $6 \cdot 10^5 \text{ s}^{-1}$, et donc un temps de dépompage vers l'état $F=3$ de l'ordre de $2 \mu\text{s}$.

Pour remédier à ce problème, il est nécessaire d'appliquer un laser, dit "repompeur", qui pompe les atomes de l'état $6s(F=3)$ vers l'état $6s(F=4)$. La longueur d'onde de ce laser est choisie résonante avec la transition $6s(F=3) \rightarrow 6p_{3/2}(F=4)$.

Notons que dans ce cas précis, du fait de la structure hyperfine, la transition piégeante n'est donc pas complètement fermée. Le cas reste cependant favorable, car il n'y a qu'une voie de "fuite" de la transition cyclante, si bien qu'un seul laser "repompeur" est nécessaire à l'obtention du piège magnéto-optique. Pour des systèmes beaucoup plus complexes comme les molécules, le nombre de lasers repompeurs qui seraient nécessaires pour utiliser le même mécanisme de refroidissement laser semble rédhibitoire.

e) Vitesse de capture et taux de chargement

Un atome peut être capturé dans le piège magnéto-optique s'il peut être "stoppé" par la pression de radiation avant d'être ressorti du volume de piégeage, défini par la taille des faisceaux piège, notée D . Ceci définit une vitesse maximale, au dessus de laquelle les atomes ne sont pas capturés dans le piège magnéto-optique : c'est la vitesse de capture. Celle-ci peut être estimée grossièrement en supposant la force de friction valoir la moitié de sa valeur maximale (c'est-à-dire $\hbar k \Gamma / 4$). Alors :

$$v_{\max} \approx \sqrt{\frac{\hbar \Gamma k D}{2 m_{Cs}}}$$

Typiquement, D est de l'ordre du centimètre, si bien que la vitesse de capture est de l'ordre de 25 m/s (c'est-à-dire une température de capture de 4 K).

La source de césium dans notre cas est constituée d'un queusot, à l'origine rempli de 1 gramme de césium à 300 K . La pression de vapeur saturante du césium à cette température est de l'ordre de 10^{-6} mbar [79] ; le césium diffuse dans l'enceinte, elle-même maintenue, comme nous le verrons à une pression de 10^{-9} mbar environ. Ceci, d'après la loi des gaz parfaits, correspond à une densité n_0 de $5 \cdot 10^7 \text{ cm}^{-3}$; à 300 K , la proportion d'atomes dont la vitesse est inférieure à 25 m/s est de l'ordre de 10^{-3} . Dans ces conditions, le taux de chargement du piège magnéto-optique est de l'ordre de $10^{-3} n_0 \frac{v_{\max}}{2} D^2 \sim 5 \cdot 10^7 \text{ at/s}$. Ceci est en bon accord qualitatif avec les mesures de temps de chargement du piège magnéto-optique que nous avons effectuées.

f) Limites du refroidissement

Limite Doppler L'émission spontanée, inhérente au processus de refroidissement laser, engendre une marche au hasard dans l'espace des vitesses, puisque la probabilité d'émission du

photon dans une direction donnée est égale à la probabilité d'émission dans la direction opposée. Ceci représente une source d'échauffement du système². L'équilibre entre ce réchauffement et le refroidissement Doppler donne la limite de refroidissement par les mécanismes étudiés ici. La température minimale, dite "Doppler", obtenue lorsque $\delta_0 = -\Gamma/2$ est

$$k_B T \approx \frac{\hbar\Gamma}{2}$$

Cette température est de $125 \mu K$ pour l'atome de césium. Ceci correspond à la température typique mesurée dans notre piège.

Mécanisme sub-Doppler (effet Sisyphe) Notons qu'il est courant d'observer dans des pièges magnéto-optiques des températures inférieures à la température Doppler. L'explication de telles températures repose sur des phénomènes de pompage optique entre les différents sous-niveaux Zeeman de l'état $6s(F=4)$ [9]. Lors de ces pompages optiques, à cause de la vitesse non nulle des atomes, les variables internes ne suivent pas adiabatiquement l'évolution des variables externes, ce qui est à l'origine d'une dissipation supplémentaire. La température n'est alors plus limitée que par l'énergie de recul lors de l'émission spontanée $\frac{1}{2}m[(\Delta \vec{v})_{recul}]^2$, qui est de l'ordre de 200 nK pour le césium. On montre que, typiquement, les températures dans les mélasses correspondent à dix fois l'énergie de recul, soit environ $2 \mu K$.

Diffusion multiple Au sein d'un piège magnéto-optique, on ne peut généralement pas négliger la réabsorption par les atomes de photons issus de l'émission spontanée. Celle-ci est très probable, car l'énergie des photons émis est exactement l'énergie de résonance des atomes à vitesse presque nulle. La direction de propagation de ces photons est aléatoire, si bien que leur réabsorption engendre une marche au hasard dans l'espace des vitesses, et donc un réchauffement. La température au sein d'un piège magnéto-optique de césium suit une loi empirique, étudiée dans la référence [5] :

$$T[\mu K] \simeq 3 + 1,2 \frac{N^{1/3}\Omega}{|\delta_0|} \quad (1.6)$$

La diffusion multiple limite par ailleurs la densité au sein d'un piège magnéto-optique.

Au cours de nos expériences, nous avons observé un effet de diffusion multiple dans notre piège : l'expérience consiste à exciter des atomes de Rydberg dans un état $39d$ (voir 1.2), puis à les détecter. Les atomes de Rydberg sont excités depuis l'état $6p_{3/2}$. Le nombre d'atomes de Rydberg est proportionnel au nombre d'atomes dans l'état $6p_{3/2}$. La mesure du nombre d'atomes de Rydberg est ici une mesure indirecte du nombre d'atomes dans l'état $6p_{3/2}$. A un instant $t=0$,

²Par ailleurs, lorsque la vitesse de l'atome est très faible, l'atome peut absorber un photon dans n'importe quel faisceau, ce qui est aussi une source d'échauffement.

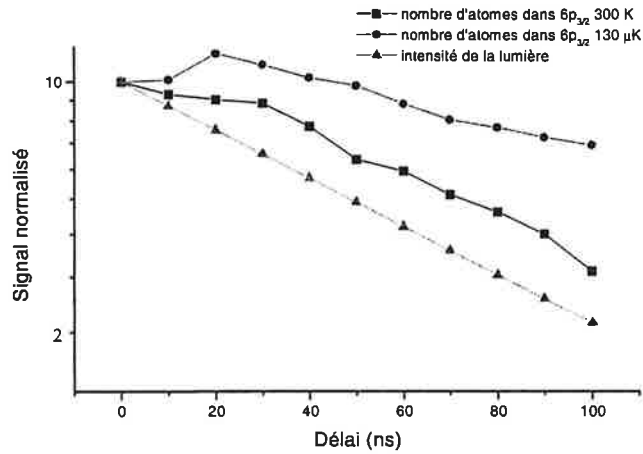


FIG. 1.2: *Effet de diffusion multiple dans le piège magnéto-optique. Les trois signaux sont normalisés à 10 à $t=0$. Sont tracés en échelle logarithmique, en fonction du délai entre la commande de suppression de la lumière et l'instant de la mesure (formation des atomes de Rydberg) : le nombre d'atomes $6p_{3/2}$ froids (ronds); le nombre d'atomes $6p_{3/2}$ du gaz résiduel (carrés); une exponentielle décroissant $\exp(-t/\tau)$ figurant l'intensité lumineuse des lasers piège (triangles). $\tau = 80$ ns est évalué en mesurant avec une photodiode rapide le temps de commutation de la cellule de Pockels. Après un délai de l'ordre de 30 ns (égal à la durée de vie dans l'état $6p_{3/2}$), le nombre d'atomes chauds dans l'état $6p_{3/2}$ décroît proportionnellement à l'intensité des lasers piège; par contre, la décroissance du nombre d'atomes froids dans l'état $6p_{3/2}$ est retardée et ralentie, du fait de la diffusion multiple.*

les lasers piège sont éteints avec une cellule de Pockels. Puis, après un délai variable (entre 0 et 500 ns), on excite par un laser à colorant les atomes de Rydberg. Alors que le temps de vie atomique dans l'état $6p_{3/2}$ est de 30 ns, et que le temps de coupure mesuré de la lumière est de 80 ns, on peut détecter des atomes de Rydberg (et donc des atomes dans l'état $6p_{3/2}$) pendant plus de 300 ns. Ceci est la signature d'un effet de diffusion multiple au sein du piège magnéto-optique; on peut dire que le piège magnéto-optique se comporte comme un piège à lumière, pendant quelques centaines de nanosecondes.

1.1.2 Dispositif expérimental : la source d'atomes froids.

Nous allons maintenant décrire le dispositif expérimental servant à la réalisation du piège magnéto-optique. Celui-ci a déjà été décrit dans plusieurs thèses avant ce mémoire (voir par exemple [7] et [4]). On pourra se reporter à la figure 1.3 pour la description de l'ensemble des sources laser.

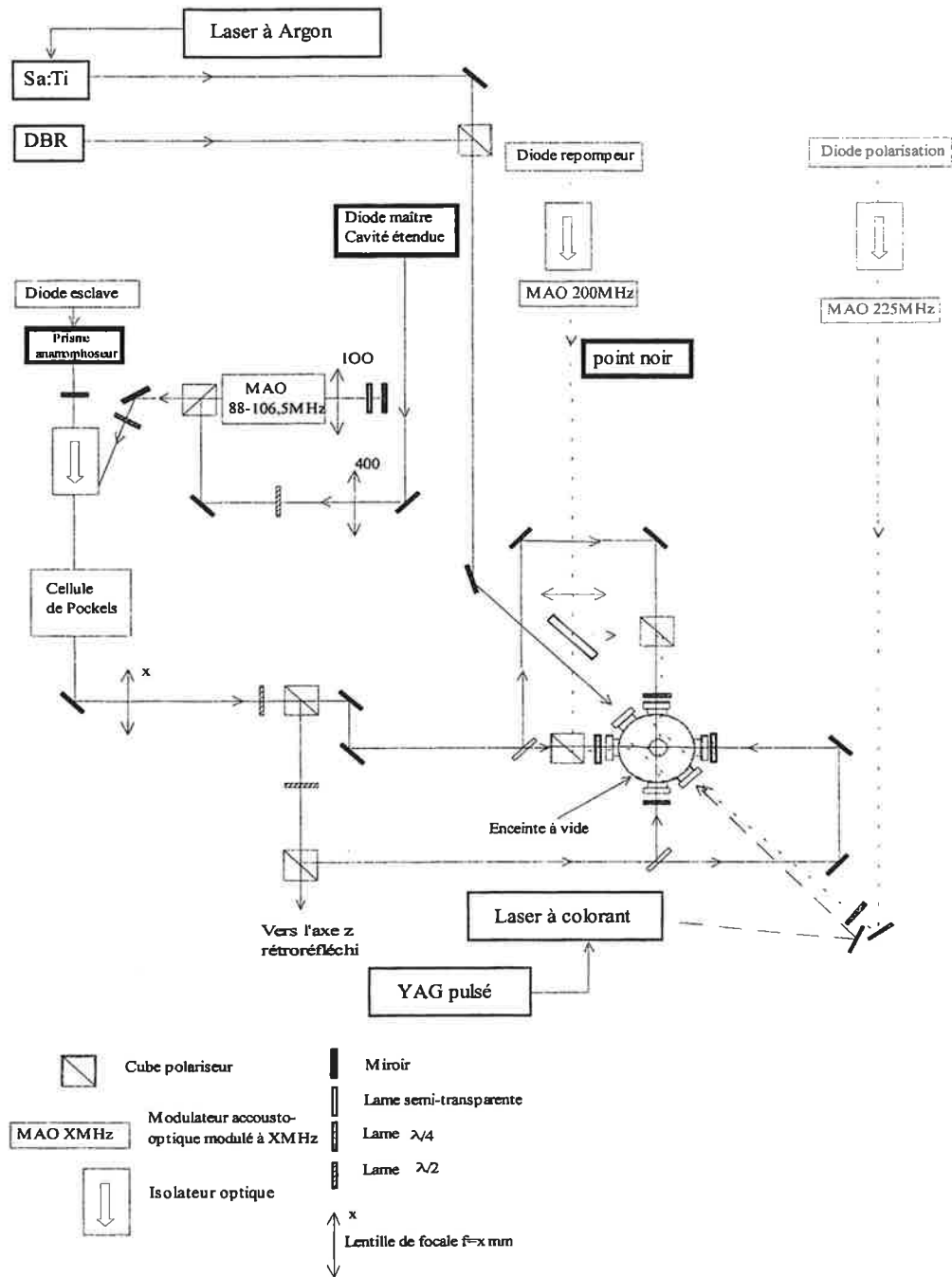


FIG. 1.3: Vue d'ensemble du dispositif expérimental. Dans cette figure, sont principalement représentés les différents lasers utilisés : les lasers de refroidissement et de piégeage (diodes maître, esclave, et repompeur), les lasers de photoassociation (DBR et Sa :Ti), et les lasers utiles à la détection (laser à colorant). Ne sont pas représentés les dispositifs utilisés pour repérer la longueur d'onde des lasers et réaliser éventuellement les asservissements. A noter le dispositif dit "en oeil de chat" qui permet l'injection de la diode esclave par la diode maître sur une large plage en fréquence. Tous les lasers convergent vers une cellule à ultra-vide. Une autre figure précise le dispositif expérimental à ce niveau.

a) Sources laser

Deux types de lasers sont nécessaires : les lasers de refroidissement, et les lasers de repompage.

Lasers de piégeage Comme nous l'avons vu, l'intensité laser optimale pour les lasers du piège magnéto-optique est de l'ordre de quelques mW/cm^2 . Cela rend favorable l'utilisation de diodes laser pour réaliser le piégeage. Par ailleurs, la force de friction est très sensible à la valeur du décalage en fréquence du laser. Il est donc nécessaire d'obtenir un laser dont la largeur spectrale est très inférieure à δ . Typiquement, une largeur de l'ordre du MHz est requise. Pour cette raison, il n'est pas en général souhaitable d'utiliser des diodes laser en fonctionnement libre.

Les six faisceaux lasers sont issus d'une seule diode laser. Celle-ci est une diode de puissance 150 mW (SDL5412) injectée par une diode, selon le schéma "maître-esclave". La diode "maître" est une diode STC LT50A-O34. Elle est montée en cavité étendue du type Littrow (réseau en optique de sortie de cavité). Cette cavité est asservie en utilisant un signal d'absorption saturée sur une vapeur de césium. Le signal d'erreur est généré grâce à une modulation à 2,5 kHz de la cale piézo-électrique qui supporte le réseau, et la correction est appliquée sur la cale elle-même. Ceci assure une stabilité en fréquence de l'ordre de $\Gamma/10$. La largeur spectrale est alors de l'ordre de 100 kHz ; la puissance, environ 6 mW. De façon à pouvoir injecter la diode esclave sur une grande plage de longueur d'onde (de l'ordre de 50 MHz ; la limitation provient ici de l'acousto-optique utilisé), le faisceau de la diode maître traverse un modulateur acousto-optique en double passage, ce qui permet de faire varier sa fréquence sans faire varier sa direction de propagation, et donc sans modifier les conditions d'injection de la diode esclave (dispositif en "oeil de chat"). Le temps de réponse du modulateur acousto-optique est de quelques centaines de nanosecondes.

En régime de fonctionnement permanent, la fréquence des lasers de piégeage est décalée de $\delta_0 = 2,5 \Gamma$ par rapport à la résonance atomique, de façon à maximiser le nombre d'atomes dans le piège. Cette valeur est essentiellement empirique.

Trois intensités laser différentes sont utilisées pour l'obtention du piège magnéto-optique, correspondant à trois courants de la diode laser esclave pour lesquels l'injection par le laser maître peut être réalisée. Ces trois intensités sont rassemblées dans le tableau suivant.

Intensité totale (mW/cm^2)	$\frac{\Omega_{tot}^2}{\Gamma^2}$	$p = \frac{\Omega_{tot}^2/4}{\Gamma^2/4 + \Omega_{tot}^2/2 + \delta_0^2}$
5,2	2,4	8%
10,4	4,7	13%
14,6	6,6	17%

L'intensité totale est l'intensité cumulée des six faisceaux du piège magnéto-optique. Ω_{tot} est la fréquence de Rabi correspondante. p est la proportion des atomes du piège magnéto-optique dans l'état $6p_{3/2}$.

Laser repompeur Le laser de repompage est quant à lui asservi en utilisant le signal d'absorption simple dans une vapeur de césium. Il est asservi sur la transition $6s(F=3) \rightarrow 6p_{3/2}(F=4)$. Il s'agit d'une diode SDL5712-DBR dont la largeur spectrale est de 3 MHz. Le signal d'erreur de l'asservissement est appliqué sur l'alimentation en courant de la diode.

b) Champs magnétiques

Il faut appliquer aux atomes un gradient de champ magnétique. Il est de plus nécessaire de compenser les champs magnétiques parasites.

Gradient de champ magnétique Le gradient de champ magnétique nécessaire pour la réalisation d'un piège magnéto-optique est de l'ordre de 10 Gauss/cm. pour appliquer un tel champ, on dispose d'une paire de bobines. Chacune comporte 100 tours. Le rayon de ces bobines vaut 6 cm. Elles sont en configuration anti-Helmholtz, ce qui assure l'existence d'un gradient de 15 Gauss/cm selon l'axe vertical (et donc de 7,5 Gauss pour les directions horizontales) pour un courant de 4,2 A. De nouvelles bobines visant à produire des champs bien plus élevés ont été implantées récemment. Je donnerai leurs caractéristiques au chapitre 4.

Compensation du champ magnétique terrestre Par ailleurs, il convient de compenser le champ magnétique terrestre ainsi que tout autre champ magnétique parasite. Pour ce faire, nous utilisons trois paires de bobines en configuration Helmholtz. Les champs à compenser sont typiquement de 100 mGauss.

c) Vide

La réalisation d'un piège magnéto-optique nécessite une enceinte à ultra-vide. Un tel vide, après prévidage par une pompe turbo-moléculaire jusqu'à 10^{-6} mbar environ, est assuré grâce au fonctionnement permanent de deux pompes ioniques. Le régime de fonctionnement courant est de $2 \cdot 10^{-9}$ mbar. Ce régime est atteint après environ 3 semaines de pompage, l'enceinte étant étuvée à 200 °C environ.

Un cellule contenant un gramme de césium liquide assure la diffusion de vapeur de césium en continu dans l'enceinte à ultra-vide. La pression de vapeur saturante du césium à 300 K est de l'ordre de 10^{-6} mbar, mais du fait du fonctionnement permanent des pompes ioniques, la pression dans l'enceinte est maintenue à $2 \cdot 10^{-9}$ mbar. La loi thermodynamique $PV = nk_B T$, permet d'évaluer que la densité d'atomes de césium au sein de l'enceinte à vide est de l'ordre de $5 \cdot 10^7 \text{ cm}^{-3}$. Cette valeur est en bon accord qualitatif avec l'estimation de 10^8 cm^{-3} d'Igor Mourachko, qui a réalisé des mesures d'absorption dans l'enceinte à vide [79].

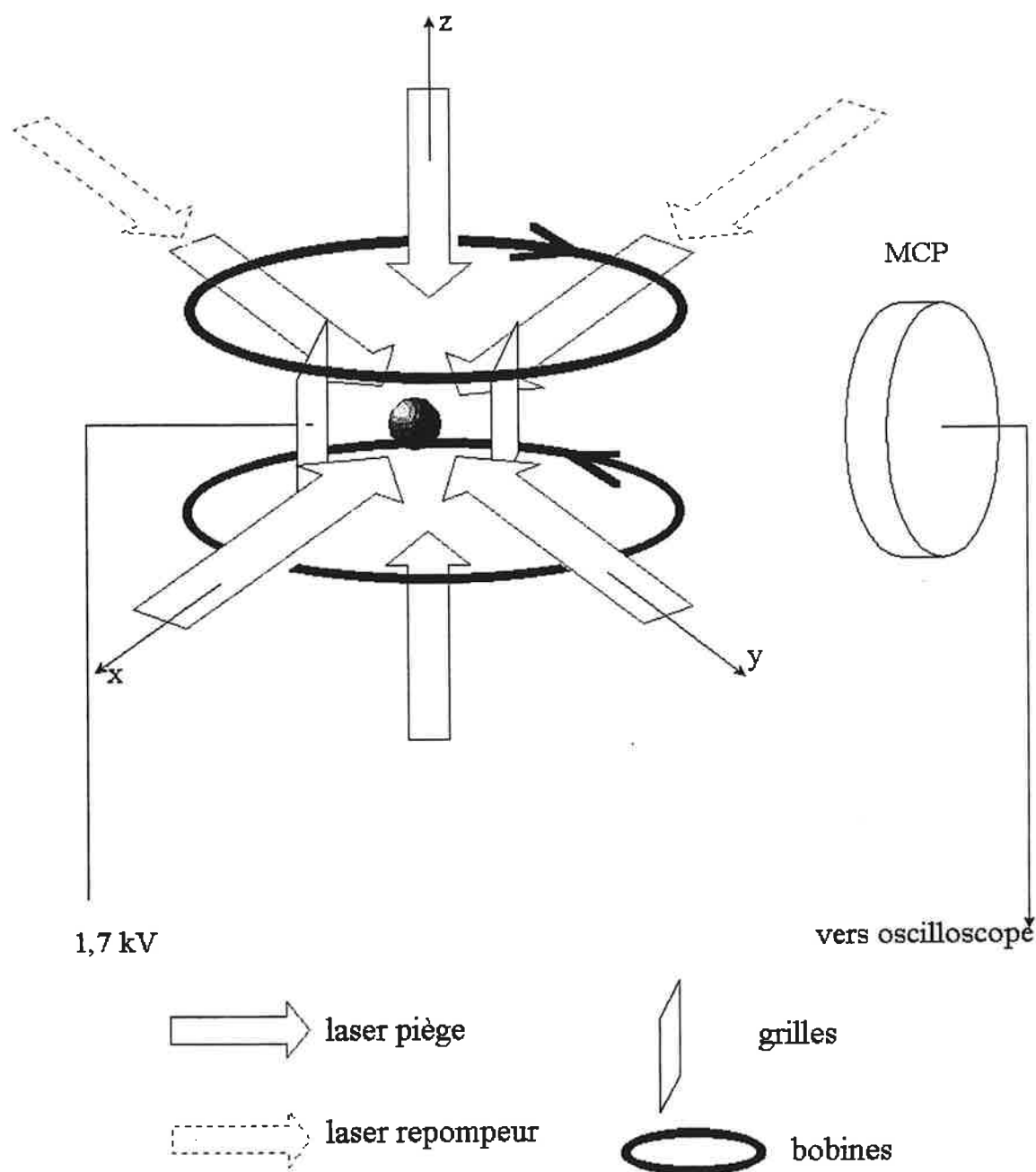


FIG. 1.4: Le piège magnéto-optique. La taille des faisceaux laser est de l'ordre du centimètre. Le laser repompeur est superposé à deux bras du piège magnéto-optique. Celui-ci est entouré de deux grilles parallèles, séparées de 1,6 cm. Une région de 6 cm, où le champ électrique est nul, sépare la grille de droite des galettes micro-canaux (MCP). Les deux bobines (auxquelles il faut rajouter trois paires de bobines pour compenser le champ magnétique terrestre -non représentées ici) sont hors de l'enceinte à vide. Elles sont en permanence parcourues par un courant de 4,2 A.

1.1.3 Caractérisation du nuage d'atomes froids

On visualise le piège magnéto-optique grâce à une camera infra-rouge et une photodiode calibrée. Ceci permet la caractérisation du nuage d'atomes froids, à la fois en termes de nombre d'atomes et de densité.

a) Nombre d'atomes

Le nombre d'atomes est évalué en observant la fluorescence du piège magnéto-optique. Celle-ci est collectée par une lentille, dans un angle solide de $4,75 \cdot 10^{-2}$ rad, vers une photodiode calibrée (180 nW/V), ce qui permet une mesure du nombre d'atomes dans l'état $6p_{3/2}$. La formule 1.1 permet de connaître le rapport des populations dans l'état excité et dans l'état fondamental. On en déduit le nombre d'atomes total. Il convient cependant de raffiner légèrement cette évaluation, de façon à prendre en compte l'existence des sous-niveaux Zeeman, et les variations dans les forces d'oscillateur qui en découlent, liées aux coefficients de Clebsch-Gordan. Dans la pratique, on définit dans un piège magnéto-optique deux coefficients C_1 et C_2 qui peuvent être compris comme des coefficients de Clebsch-Gordan moyens. On évalue alors la puissance diffusée par atome, sous forme de photons émis :

$$P \simeq \hbar\omega_0\Gamma \frac{C_1^2\Omega_{tot}^2/4}{\delta^2 + \Gamma^2/4 + C_2^2\Omega_{tot}^2/2}$$

Ω_{tot} est la fréquence de Rabi totale des faisceaux laser ; les coefficients C_1 et C_2 sont difficiles à évaluer, car ils correspondent à une répartition effective dans le piège magnéto-optique de la distribution dans les sous-niveaux Zeeman, distribution difficile à sonder. Nous prenons $C_1 = C_2 = 0,73$, en suivant le travail expérimental de la référence [6], où ces paramètres sont ajustés pour reproduire la fluorescence observée en faisant varier l'intensité des lasers pièges.

Le nombre d'atomes mesuré dans le cas du piège magnéto-optique que je décris ici est ainsi estimé à $5 \cdot 10^7$, à un facteur 2 près.

b) Densité

Le piège magnéto-optique est observé grâce à une caméra CCD. Cela permet la visualisation du profil du piège, selon deux axes notés (O,x) et (O,y) (voir figure 1.5). Le piège observé selon ces axes est gaussien ; les largeurs mesurées ($\sigma_x = 275\mu m$ et $\sigma_y = 310\mu m$) sont approximativement égales. On suppose que le profil du piège est aussi gaussien suivant l'axe (O,z), de largeur σ_z . Comme on l'a vu équation 1.4, le gradient de champ magnétique n'est pas isotrope. Construire un piège magnéto-optique de symétrie sphérique nécessite de modifier les intensités relatives des faisceaux pièges suivant les trois directions. Pour ce faire, on a imposé $I_z = I_x/2 = I_y/2$ ($I_{x,y,z}$ est l'intensité laser suivant chacune des trois directions). On suppose alors que $\sigma_z \sim \sigma_x \sim \sigma_y$. On en déduit une densité moyenne de l'ordre de $4 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-3}$, et une densité au centre du piège de l'ordre

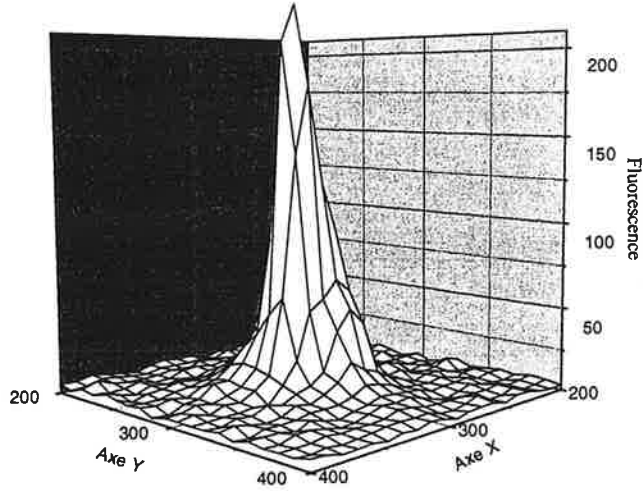


FIG. 1.5: Profil de densité du piège magnéto-optique. Les largeurs du piège mesurées selon les axes X et Y (respectivement 275 et $310 \mu\text{m}$) sont approximativement égales. La densité atomique mesurée est de 10^{11} cm^{-3} au centre du piège.

de 10^{11} cm^{-3} . Est représentée figure 1.5 l'image du piège magnéto-optique prise par une caméra CCD. Le profil de densité suivant les axes (O,x) et (O,y) est bien gaussien, si bien que la densité au sein du piège s'écrit :

$$n(x, y, z) = n(0) \exp\left(-\frac{x^2 + y^2 + z^2}{2\sigma_n^2}\right) \quad (1.7)$$

c) Temps de chargement

La dynamique du piège magnéto-optique est gouvernée par le taux de chargement et les taux de collision à un corps (collisions avec le gaz résiduel), ou à deux corps (collisions froides entre atomes du piège). On néglige les collisions à trois corps. L'équation dynamique du piège s'écrit :

$$\frac{dN_{at}}{dt} = L - \gamma N_{at} - \beta \int_{vol} n_{at}^2(r) d^3r$$

où γ est le taux de pertes dues aux collisions avec les atomes du gaz résiduel; β est le taux de pertes dues aux collisions binaires entre atomes froids en présence du rayonnement des lasers piège et L le taux de chargement du piège. On suppose qu'à $t=0$ on "allume" le piège magnéto-optique. Si on introduit la densité moyenne \bar{n} , et si on suppose cette densité constante lors du chargement du piège, l'équation précédente se ré-écrit :

$$\frac{dN_{at}}{dt} = L - \gamma N_{at} - \beta \bar{n} N_{at} \text{ et donc : } N_{at} = \frac{L}{\gamma + \beta \bar{n}} (1 - \exp(-(\gamma + \beta \bar{n})t))$$

Nous avons réalisé des expériences consistant à observer le chargement du piège magnéto-optique en temps réel ; pour ces expériences, l'intensité totale des lasers piège valait $5,2 \text{ mW/cm}^2$, et le décalage à résonance $2,5 \Gamma$. Le signal de fluorescence, proportionnel au nombre d'atomes dans l'état $6p_{3/2}$, est enregistré en fonction du temps. Ceci permet de déterminer à la fois le temps de chargement du piège $(\gamma + \beta \bar{n})^{-1}$ (on mesure dans le cas présent $0,67 \text{ s}$) et $\frac{L}{\gamma + \beta \bar{n}}$ (on mesure environ $5 \cdot 10^7$ atomes). On pourra se reporter à la figure 1.23, prise dans des conditions légèrement différentes. Cela signifie que le taux de chargement est ici $3,3 \cdot 10^7$ atomes par seconde, ce qui, compte tenu des approximations réalisées (force de friction, densité constante, nombre absolu d'atomes) est en bon accord qualitatif avec notre évaluation précédente (environ $5 \cdot 10^7 \text{ s}^{-1}$: voir paragraphe 1.1.1 e)).

Nota :

Nous n'avons pas réalisé de mesures de β . Ce paramètre, qui résume les pertes de piège dues aux différentes collisions binaires entre atomes en présence des lasers pièges (collisions avec changement de structure fine ou hyperfine par exemple), dépend de l'intensité et du décalage à résonance de ceux-ci. Il dépend aussi de la vitesse de capture, et donc du bon alignement des lasers pièges. On pourra se reporter à la référence [81] ou à la thèse d'Andrea Fioretti [82]. Si on suppose, en accord avec ces références, que β est de l'ordre de 10^{-11} cm^3 , alors le taux de pertes due à des collisions binaires est typiquement de $\beta \bar{n} \sim 0,5 \text{ s}^{-1}$. On en déduit que $\gamma \sim 1 \text{ s}^{-1}$. Cela signifie que les collisions avec le gaz résiduel l'emportent sur les collisions interatomiques. Au dernier chapitre, nous étudierons un piège magnétique à molécules. Nous verrons alors que le temps de vie de ce piège (1s) est lui aussi déterminé par les collisions avec le gaz résiduel.

d) Température

La température n'est pas mesurée de façon routinière dans notre dispositif expérimental. La configuration expérimentale ne permet pas de détecter les atomes suffisamment bas sous le piège pour réaliser des mesures de température précises par lâcher d'atomes et analyse de leur expansion balistique. Quelques expériences de lâcher d'atomes ont cependant été réalisées ; elles montrent que la température atomique est de l'ordre de 100 à $200 \mu\text{K}$. On a cependant mesuré précisément, dans les mêmes conditions expérimentales, la température de molécules froides produites via photoassociation (voir paragraphe 4.1.2). La température des molécules est alors de $130 \mu\text{K}$ ($\pm 10 \mu\text{K}$), ce qui est en accord avec la température atomique théorique donnée par la formule empirique 1.6 issue de la référence [5].

1.1.4 Séquence de refroidissement sub-Doppler

Le principe de la phase de refroidissement expliquée ici est de se placer dans les conditions où les mécanismes de refroidissement sub-Doppler de type Sisyphe sont efficaces. Elle permet aussi de réduire la diffusion multiple, c'est-à-dire la réabsorption de photons produits par émission spontanée. Il convient de réduire la probabilité d'excitation d'un atome au sein du piège magnéto-optique, donnée par la formule 1.1. Ceci peut être réalisé soit en diminuant Ω , c'est-à-dire l'intensité des faisceaux pièges, soit en augmentant leur décalage en fréquence δ_0 . En pratique, les deux solutions sont mises en oeuvre simultanément. Comme il n'est pas possible de réaliser de cette façon un piège magnéto-optique en continu sans perdre en nombre d'atomes, on procède par une séquence temporelle qui consiste à refroidir les atomes à partir du piège magnéto-optique usuel, juste avant de les utiliser pour les expériences visées (photoassociation par exemple).

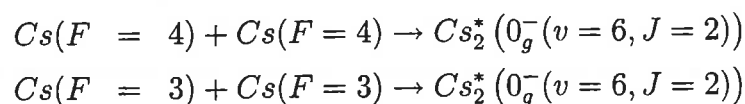
On procède de la façon suivante (voir figure 4.2) : le décalage en fréquence des lasers pièges à $\delta = -9\Gamma$ est réalisé à un instant $t=-10$ ms. Simultanément, leur intensité est réduite d'un facteur 2. A $t=-6$ ms, nous coupons le gradient de champ magnétique. Ceci a pour but de se placer dans le régime de mélasse, plus froid qu'un piège magnéto-optique, tous les autres paramètres étant égaux par ailleurs.

On change la fréquence des lasers piège en modifiant la fréquence d'injection de la diode esclave, comme expliqué au paragraphe 1.1.2. L'intensité des lasers pièges est modifiée grâce à une cellule de Pockels, dont le temps de commutation τ est de 80 ns ($I(\tau)=I(t=0)/e$). Le champ magnétique est coupé en trois millisecondes en interrompant le courant dans les bobines de gradient grâce à un transistor.

La température atomique n'a pas été mesurée dans ces conditions. La température moléculaire mesurée est, elle, de 20_{-5}^{+15} μ K, en accord avec la température atomique empirique 1.6..

1.1.5 Pompage optique

Les atomes du piège magnéto-optique sont dans l'état hyperfin $6s(F=4)$. Comme nous l'avons vu, le temps de dépompement des atomes dans l'état $F=4$ vers l'état $F=3$ est de l'ordre de 2 μ s en l'absence de laser repompeur. Pour certaines applications (photoassociation avec des atomes dans l'état $F=3$, étude d'une résonance de Feshbach -voir paragraphe 3.2.3-, piégeage des atomes), il est nécessaire de préparer les atomes froids dans l'état $F=3$. Pour ce faire, il suffit d'agir sur le laser repompeur. Je décris dans les prochains paragraphes trois méthodes de pompage optique vers $F=3$. Dans tous les cas, on teste l'efficacité du dépompement dans l'état $F=3$ en comparant les intensités relatives 0_g^- ($v=6, J=2$) des réactions de photoassociation :



Ces deux résonances sont séparées de 18,38 GHz ; l'intensité de la première réaction doit tomber

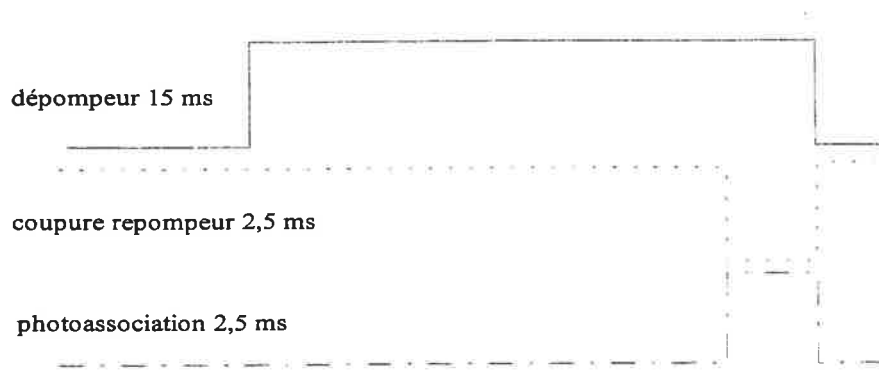


FIG. 1.6: Schéma de pompage des atomes vers $F=3$.

à zéro et celle de la seconde être maximale.

a) Coupure du repompeur

Si on coupe le laser repompeur à l'instant $t=0$ (en utilisant un modulateur acousto-optique), sans couper les autres lasers du piège magnéto-optique, les atomes sont pompés optiquement vers $F=3$ en un temps caractéristique de $2 \mu s$. Le temps de pompage optique observé est cependant bien plus grand (de l'ordre de la milliseconde), du fait d'une efficacité seulement partielle de l'acousto-optique utilisé dans notre cas. En quelques millisecondes, tous les atomes sont pompés dans l'état $F=3$. Notons qu'alors, les atomes ont parcouru quelques centaines de micromètres, si bien que la densité atomique peut avoir diminué d'un facteur 10. Ceci n'est pas favorable à la réaction de photoassociation, dont nous verrons qu'elle augmente avec la densité.

b) Laser dépompeur

Pour augmenter la rapidité du transfert vers l'état $F=3$ (et donc la densité finale de l'échantillon atomique), on peut utiliser un autre laser, dit dépompeur. Celui-ci est de faible intensité (une intensité de $10 \mu W/cm^2$ suffit en théorie à assurer le dépompage en $100 \mu s$) ; on l'applique pendant quelques ms, résonant avec la transition $F = 4 \rightarrow F' = 4$ ou $F = 4 \rightarrow F' = 3$, en même temps que l'on coupe le repompeur, ce qui accélère le processus de dépompage vers $F=3$.

c) Dark SPOT (Spontaneous Force Optical Trap)

Enfin, pour obtenir en continu un grand nombre d'atomes dans l'état $F=3$, il est possible d'obstruer partiellement le faisceau du laser repompeur par une densité optique. On parle de "point noir" (Dark-Spot). Ce point, placé sur les deux bras du laser repompeur, est imagé par une lentille au centre du piège magnéto-optique. Ainsi, au centre du piège magnéto-optique, les atomes ne voient plus le laser repompeur, et sont pompés optiquement vers $F=3$. Notons par ailleurs que $F=3$ est alors un état noir. La diffusion multiple au sein de l'échantillon est donc supprimée, et la densité atomique en est augmentée. On peut se reporter à la thèse de Igor Mourachko pour une analyse détaillée du piège en Dark-Spot dans le cas du césium [79]. Il y est en particulier

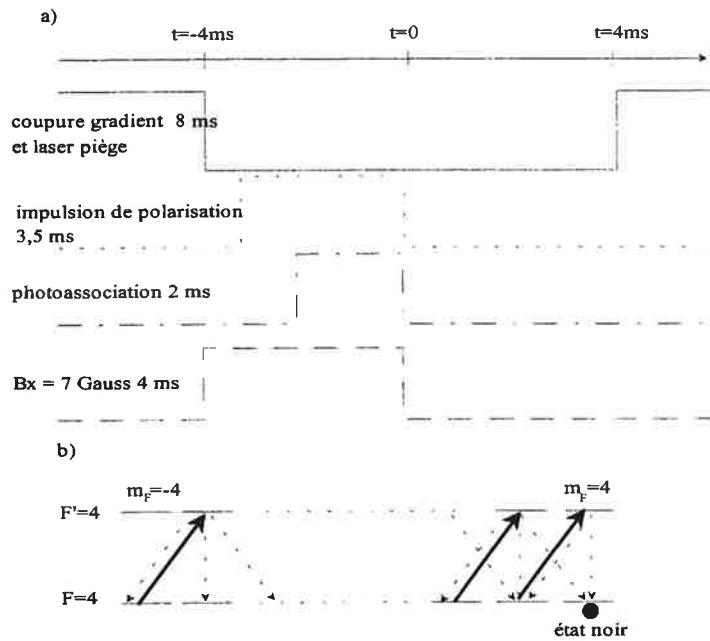


FIG. 1.7: a) Séquence de polarisation dans l'état doublement polarisé $F=4$, $m_F=4$. Le pulse de photoassociation n'intervient pas dans la procédure de polarisation : il intervient comme test de polarisation. b) Schéma de pompage optique vers l'état noir $m_F=4$. Les flèches pleines représentent le laser, polarisé σ^+ ; les flèches en pointillés représentent l'émission spontanée.

montré que le dark-SPOT est plus difficile à mettre en oeuvre pour le césium que pour les autres atomes alcalins, ce qui s'explique par le plus grand écart hyperfin pour cet atome. Le temps de dépompage vers $F=3$ est donc grand, et l'ajout d'un laser dépompeur est nécessaire dans le cas du césium pour obtenir un fonctionnement efficace [87].

1.1.6 Polarisation des atomes

Les atomes du piège magnéto-optique sont dans une répartition statistique de sous niveaux-Zeeman. Il est cependant possible, en utilisant un procédé de pompage optique, de polariser les atomes dans un sous-niveau hyperfin donné. Différents types d'expériences nécessitent d'obtenir un gaz d'atomes froids polarisés. Dans le cadre de ma thèse, la photoassociation d'atomes polarisés dans l'état $m_F=4$ a été utilisée pour déterminer la longueur de diffusion triplet du césium, comme on le verra au chapitre 3. De même, la réalisation d'un piège magnétique a nécessité la polarisation des atomes dans l'état chercheur de champ faible $m_F=4$ (voir chapitre 4). Pour réaliser les expériences de résonance de Feshbach décrites au chapitre 3, il a d'autre part été nécessaire de polariser les atomes dans l'état $m_F=3$.

a) Polarisation dans $m_F=4$

Polariser les atomes dans un sous niveau hyperfin donné impose de fixer un axe de quantification. Ceci est réalisé en appliquant un faible champ magnétique, qui rompt la symétrie sphérique du système, et qui doit être plus important que l'ensemble des champs parasites en présence, de façon à empêcher la dépolarisation des atomes sous leur effet. Dans notre cas, le champ appliqué doit être au moins de 2,5 Gauss³. La projection du spin total sur l'axe du champ magnétique est alors un bon nombre quantique. On cherche à pomper optiquement les atomes dans le m_F maximal. Le pompage optique s'effectue en utilisant un laser polarisé circulairement σ_+ ; pour un tel laser, la règle de sélection des transitions dipolaires est $\Delta m_F = +1$. A l'émission spontanée, les règles de sélection sont $\Delta m_F = \pm 1, 0$. L'atome est donc pompé optiquement vers le sous-niveau Zeeman extrême.

La séquence temporelle utilisée est la suivante (voir figure 1.7). Nous coupons le gradient de champ magnétique ainsi que les faisceaux piège du piège magnéto-optique à $t=-4$ ms. Simultanément, nous appliquons un champ constant B_x de 7 Gauss, le long d'un axe (Ox). Le temps de commutation des champs magnétiques est d'environ 3 ms. A $t=-3,5$ ms, une impulsion d'un laser résonant $6s(F=4) \rightarrow 6p_{3/2}(F=4)$, se propageant suivant (Ox), polarisé circulairement σ_+ est appliquée jusqu'à $t=0$. L'intensité du laser de polarisation est de $20 \mu W/cm^2$. Il est issu du faisceau d'une diode laser, asservie sur la transition $6s(F=4) \rightarrow 6p_{3/2}(F=3)$, qui traverse ensuite un modulateur acousto-optique modulé à 200 MHz. Ce dernier est piloté par un pulse TTL, qui déclenche le pulse laser de polarisation, résonant avec la transition $6s(F=4) \rightarrow 6p_{3/2}(F=4)$. A $t=0$, le pulse laser de polarisation est éteint ; le champ constant est coupé. On rebranche le gradient de champ magnétique et les faisceaux piège à $t=4$ ms⁴.

Cette séquence temporelle assure la polarisation des atomes dans l'état $m_F=4$, qui est un état noir pour un laser polarisé σ_+ résonant $6s(F=4) \rightarrow 6p_{3/2}(F=4)$. Une fois pompé dans ce niveau, l'atome n'absorbe plus de photon. Comme nous l'expliquerons au paragraphe B.2.2, on teste la polarisation en observant la disparition des raies rotationnelles impaires dans le spectre des raies vibrationnelles de l'état 0_g^- . Le laser de photoassociation est appliqué entre -2.5 ms et $t=0$. Le fait de n'observer aucune raie rotationnelle impaire prouve que les atomes sont polarisés. On estime le taux de polarisation à 95 %.

Le processus de polarisation doit provoquer un réchauffement des atomes, dû à deux causes. Premièrement, le pompage optique vers $m_F = 4$ nécessite l'émission d'une dizaine de photons dans une direction aléatoire. Ceci correspond à l'acquisition d'une vitesse d'une valeur d'environ $\sqrt{10}$ fois la vitesse de recul, soit 1 cm/s. La seconde cause de réchauffement est que tous les atomes

³Un champ inférieur est théoriquement suffisant. Dans notre cas, cependant, le temps de coupure du gradient de champ magnétique est de l'ordre de 3 ms. Il est donc nécessaire d'appliquer un champ directeur B_x relativement intense, de manière à ce que le gradient de champ magnétique résiduel soit négligeable devant le champ de quantification.

⁴Ce délai est nécessaire pour éviter de rallumer les faisceaux piège alors qu'il existe un champ résiduel B_x , ce qui expulserait les atomes hors de la zone de piégeage.

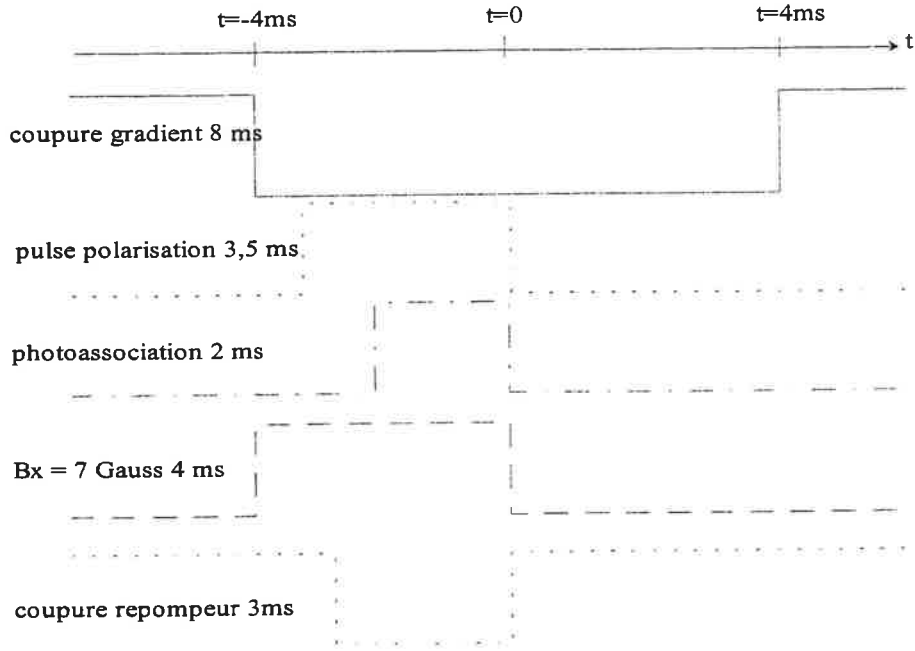


FIG. 1.8: Séquence de polarisation des atomes dans l'état $F=3$, $m_F = +3$. Le pulse de photoassociation n'intervient que comme test de polarisation.

n'absorbent pas le même nombre de photons avant d'être pompés dans l'état noir. Si on suppose les atomes initialement aléatoirement distribués sur tous les m_F la distance en m_F moyenne entre deux atomes est de $2,96^5$. Cette incertitude moyenne sur les m_F se traduit par une incertitude sur la vitesse finale de $2,96$ fois la vitesse de recul, soit à nouveau 1 cm/s. Ceci reste faible devant la vitesse moyenne d'un atome dans un piège magnéto-optique, typiquement 10 cm/s. On peut donc négliger le réchauffement dû à la séquence de polarisation des atomes dans l'état $F=4$, $m_F = 4$.

b) Polarisation dans $m_F=3$

La séquence de polarisation dans l'état hyperfin $F=3$, $m_F=3$ (voir figure 1.8) est presque identique à la séquence exposée au paragraphe précédent, à ceci près que le faisceau repompeur est coupé à $t=-3$ ms. Avant de couper le repompeur, les atomes sont polarisés dans l'état $F=4$, $m_F = 4$. Le laser de polarisation étant polarisé $\sigma+$, il ne devrait pas, une fois le laser repompeur coupé, dépomper les atomes vers l'état $F=3$. Cependant, la direction du faisceau polariseur est légèrement différente de celle du champ magnétique (les deux axes font un angle $\theta \simeq 3^\circ$), si bien que le laser contient une composante de polarisation π . Il s'en suit une faible population du niveau excité $6p_{3/2}(F=4, m_F=4)$, ce qui, une fois le laser repompeur coupé, engendre un pompage optique vers $6s(F=3, m_F=3)$. On peut évaluer en utilisant les coefficients de Clebsch-Gordan, que la probabilité de peupler le niveau $6s(F=3, m_F=2)$ (après excitation dans l'état $6p_{3/2}(F=4, m_F=3)$) est bien plus faible que la probabilité de peupler le niveau $6s(F=3, m_F=3)$ [4] :

⁵Si m_{F_1} et m_{F_2} sont tirés au sort entre -4 et 4 , la valeur moyenne de $|m_{F_1} - m_{F_2}|$ vaut $\frac{1}{81} \sum_{i=1}^8 i(i+1) \sim 2,96$

$$\frac{P(6s(F=3, m_F=+2))}{P(6s(F=3, m_F=+3))} \simeq 0.023.\theta^2$$

où θ est exprimé en radians. La polarisation des atomes dans l'état $6s(F=3, m_F=3)$ est testée en observant la disparition des raies de rotation impaires dans un spectre de photoassociation utilisant les atomes polarisés de cette façon. Le taux de polarisation est estimé ici à environ 90 %.

1.2 Formation et détection d'atomes de Rydberg

Dans cette partie, je présente les éléments théoriques et expérimentaux utiles à la compréhension du chapitre 2. Une part importante de ma thèse a été consacrée à l'étude expérimentale de l'évolution spontanée d'un gaz de Rydberg ultra-froid, vers un plasma ultra-froid. Ces expériences s'inscrivent dans la continuité d'une thématique développée au laboratoire Aimé Cotton portant sur l'étude d'atomes de Rydberg produits par excitation d'atomes d'un piège magnéto-optique. Les atomes de Rydberg ultra-froids (ou gaz de Rydberg gelé), sont comme on le verra un système favorable à l'apparition de phénomènes à N corps.

Je me contente ici de rappeler les notions élémentaires sur les atomes de Rydberg, qui nous seront utiles au cours du chapitre 2. On peut se reporter à la référence [1] pour une vision détaillée du sujet. Je précise aussi dans ce paragraphe les méthodes de formation et de détection que nous utilisons dans le cadre de nos expériences.

1.2.1 Généralités sur les atomes de Rydberg

a) L'atome d'Hydrogène

L'interaction entre un électron et le noyau dans l'atome d'Hydrogène correspond à un potentiel coulombien. L'énergie potentielle de l'électron vaut alors :

$$V(r) = -\frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 r} \quad (1.8)$$

où r est la distance entre l'électron et le noyau. L'énergie des électrons dans un tel potentiel est quantifiée et vaut :

$$E(n) = -\frac{m_e e^4}{2\hbar^2 (4\pi\epsilon_0)^2 n^2} = -\frac{R_y}{n^2} \quad (1.9)$$

R_y est la constante de Rydberg (13,6 eV). Il existe une infinité de niveaux liés dans un tel potentiel. On appelle niveaux de Rydberg les niveaux dont le nombre quantique principal n est élevé.

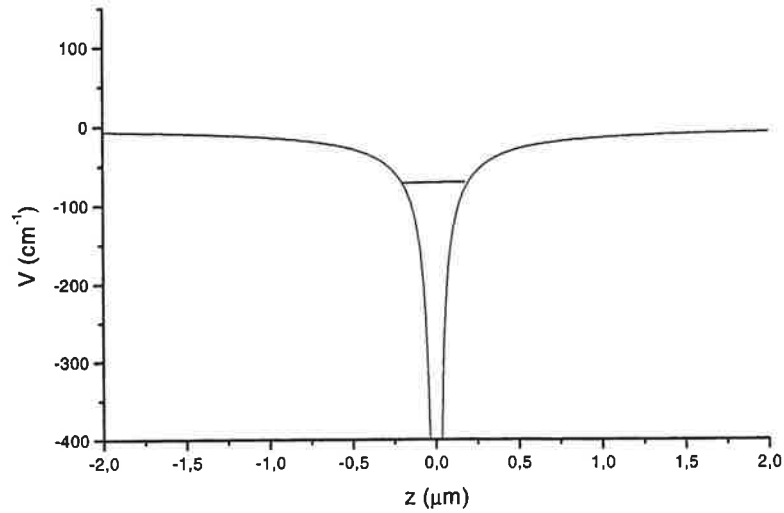


FIG. 1.9: Potentiel coulombien le long de l'axe z , vu par l'électron d'un atome d'hydrogène.

Il existe une analogie profonde entre les atomes de Rydberg et les systèmes moléculaires que nous étudierons plus loin. Cette analogie repose sur le fait que dans les deux cas, les systèmes sont de grande élancement, et leurs propriétés ne dépendent pratiquement que de leurs paramètres d'interaction asymptotique. Nous verrons aussi que dans les deux cas, les interactions à courte distance peuvent être décrites par un défaut quantique caractérisant les propriétés du système. La théorie du défaut quantique intervient par conséquent à la fois pour la description des atomes de Rydberg et pour celle des molécules (on pourra pour plus de détails se reporter au paragraphe A.4.3).

b) Les atomes de Rydberg alcalins

Les atomes de Rydberg sont des atomes où un électron est excité sur un niveau lié situé près de la limite d'ionisation. Ils ont des propriétés proches de celles de l'atome d'hydrogène. Si on raisonne d'un point de vue classique, les électrons excités sont la plupart du temps à grande distance. Ils voient donc une charge $+1$, et ressentent un potentiel égal à celui de l'équation 1.8. Cette approximation est assez juste pour des états de grand moment angulaire.

Cependant, pour les harmoniques sphériques basses, la probabilité de présence de l'électron à courte distance n'est pas négligeable. Lorsqu'il pénètre au voisinage du cœur de l'atome, l'électron ressent un potentiel légèrement plus profond que le potentiel coulombien 1.8 :

$$V_{\text{alcalin}}(r) = -\frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 r} - \Delta V_l(r)$$

Par conséquent, la fonction d'onde de l'électron oscille plus vite aux rayons courts que dans le cas de l'hydrogène. A grandes distances cependant (pour $r > r_0$), l'électron voit une charge écrantée

+1 identique à celle vue par un électron de Rydberg d'un atome d'Hydrogène. Les oscillations de la fonction d'onde reprennent donc la même fréquence spatiale que celles de l'Hydrogène. On peut donc caractériser la fonction d'onde électronique par un déphasage par rapport à la fonction d'onde d'un électron de Rydberg dans l'atome d'hydrogène. Ce déphasage, qui est la différence de phase accumulée entre $r=0$ et $r=r_0$, s'écrit, d'après la théorie semi-classique WKB (voir par exemple A.6) :

$$\delta = \int_0^{r_0} dr \frac{\sqrt{2m_e}}{\pi\hbar} \left(\sqrt{\left(E + \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 r} + \Delta V_l(r)\right)} - \sqrt{E + \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 r}} \right) \quad (1.10)$$

Si $\Delta V_l(r)$ et E sont très petits devant $\frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 r}$ pour tout $r < r_0$ (cette approximation est légitime, car on traite d'électrons de Rydberg, dont l'énergie cinétique à courtes distances est toujours grande), δ se simplifie :

$$\pi\delta \approx \int_0^{r_0} dr \frac{\sqrt{2\pi\epsilon_0 r m_e}}{\hbar e} \Delta V_l(r) \quad (1.11)$$

Il est ici important de noter que le déphasage est indépendant de l'énergie E . Ce déphasage se traduit dans les conditions de quantification par un défaut quantique, qui ne dépend pas de l'énergie et donc du nombre quantique principal : il ne dépend que du moment cinétique orbital de l'électron.

Les atomes de Rydberg alcalins sont donc caractérisés par des défauts quantiques $\delta(l)$. L'énergie des niveaux propres s'écrit alors :

$$E(n, l) = -\frac{R_y}{(n - \delta(l))^2} \quad (1.12)$$

On donne dans le tableau suivant les défauts quantiques pour le césium et le rubidium (d'après [1]).

Défaut quantique	^{85}Rb	^{133}Cs
$s_{1/2}$	3,13109(2)	4,049325(15)
$p_{1/2}$	2,65456(15)	3,591556(30)
$p_{3/2}$	2,64145(20)	3,559058(30)
$d_{3/2}$	1,347157(80)	2,475365(20)
$d_{5/2}$	1,347157(80)	2,466210(15)
$f_{5/2}$	0,016212	0,033392(50)
$f_{7/2}$	0,016212	0,033537(28)

Plus le nombre quantique orbital est élevé, moins l'orbite de l'électron pénètre le coeur de l'atome, et plus le défaut quantique est proche de 0.

c) Propriétés des atomes de Rydberg

Les atomes de Rydberg ont des propriétés particulières : leur énergie de liaison décroît en $1/n^2$, si bien que leur rayon moyen croît en n^2 . Il en résulte que la section efficace de collision varie en n^4 . Par ailleurs, la durée de vie des atomes de Rydberg est de l'ordre de plusieurs microsecondes, et elle varie en n^3 . La dépendance en n des propriétés des atomes de Rydberg est rappelée dans le tableau suivant.

Propriété	Dépendance avec n	Loi
Energie de liaison	n^{-2}	$E(n, l) = -\frac{R_y}{(n-\delta(l))^2}$
Intervalle entre deux niveaux consécutifs	n^{-3}	$\frac{2R_y}{(n-\delta(l))^3}$
Rayon orbital	n^2	$a_0 n^2$
Section efficace géométrique	n^4	$\pi a_0^2 n^4$
Moment dipolaire $\langle np_{3/2} er ns_{1/2} \rangle$	n^2	$\frac{3}{2} n^2 e a_0$
Durée de vie radiative	n^3	
Champ d'ionisation classique	n^{-4}	$\frac{\pi \epsilon_0}{e^3} \frac{R_y^2}{(n-\delta(l))^4}$

1.2.2 Préparation des atomes de Rydberg

Dans l'expérience du Laboratoire Aimé Cotton, les atomes de Rydberg sont produits par photoexcitation depuis l'état $6p_{3/2}$ grâce à un laser en impulsion (durée d'impulsion 7 ns). Le dispositif expérimental sur lequel j'ai travaillé aux Etats Unis est essentiellement identique à celui que je décris dans ce chapitre : il s'agit d'un piège magnéto-optique de rubidium. Les atomes de Rydberg y sont produits par photoexcitation depuis l'état $5p_{3/2}$. Je ne ferai pas une description complète du dispositif de l'Université de Virginie, et me contenterai de préciser quelques points nécessaires à la compréhension des expériences qui y ont été réalisées.

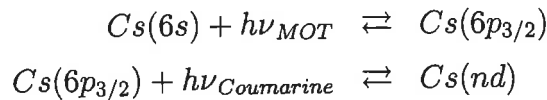
a) Le laser à colorant

Dans les deux expériences (rubidium et césium), le laser utilisé pour la formation des atomes de Rydberg est un laser à colorant pulsé ; le laser pompe est un laser Nd :YAG triplé en fréquence (355 nm, durée d'impulsion 7ns, 100 mJ/pulse environ). Au Laboratoire Aimé Cotton, le laser à colorant est constitué d'une cavité oscillatrice de type "Moya" (qui permet d'éliminer une grande partie de la fluorescence dans le mode laser) et de deux cuves d'amplification (il est presque identique au laser utilisé pour l'ionisation des molécules froides, décrit plus loin : voir figure 1.25). La cavité comporte un réseau fixe (2400 traits par millimètre). Le miroir de fond de cavité est placé sur un support rotatif, piloté par un moteur pas-à-pas. Le colorant utilisé pour la formation des atomes de Rydberg est la coumarine 500. La longueur d'onde utilisée est de 520 nm pour le césium et de 480 nm pour le rubidium. La cadence du laser est de 10 Hz (20 Hz pour le rubidium).

La largeur spectrale du laser à colorant est de $0,3 \text{ cm}^{-1}$ environ. Elle est mesurée en utilisant une cavité Fabry-Perot d'intervalle spectral libre $0,8545 \text{ cm}^{-1}$. La durée de l'impulsion est de 7 ns, l'énergie est de l'ordre $100 \mu\text{J}$ par pulse. Le faisceau est focalisé sur $200 \mu\text{m}$.

b) Schéma d'excitation

Les atomes de césium sont excités depuis l'état $6p_{3/2}$ par le laser à colorant décrit ci-dessus. Comme le montre l'équation 1.1, prise pour $\frac{I}{I_{sat}} \sim 13$ et $\delta = 2,5\Gamma$, du fait des lasers piège, pour le césium, environ 20 % des atomes sont dans l'état $6p_{3/2}$ ⁶. Les atomes dans l'état $6p_{3/2}$ sont excités dans des niveaux de Rydberg ns ou nd à l'aide du laser à colorant pulsé. Le schéma d'excitation pour le césium s'écrit donc :



où ν_{MOT} et $\nu_{coumarine}$ sont respectivement la fréquence des lasers piège et du laser à colorant.

L'espacement en énergie entre deux niveaux consécutifs varie en n^{-3} . Il vaut dans le cas du césium environ 1 cm^{-1} pour $n = 60$. La largeur spectrale du laser utilisé étant de 0.3 cm^{-1} , on peut exciter de façon sélective les atomes de Rydberg jusqu'à $n=60$. Dans notre expérience nous avons utilisé des atomes de Rydberg entre $n=30$ et $n=50$.

c) Caractéristiques du gaz de Rydberg formé

On peut évaluer simplement le nombre d'atomes de Rydberg que le schéma d'excitation présenté ci-dessus permet de former. D'après la référence [1], la section efficace de production d'atomes de Rydberg par photoexcitation est :

$$\sigma(n) = \frac{\sigma_{PI}}{\Delta E} (E(n) - E(n+1))$$

où σ_{PI} est la section efficace de photoionisation (2.10^{-19} cm^2 , d'après [1]), ΔE l'incertitude sur l'énergie d'excitation (en l'absence d'effet Doppler, elle se limite à la largeur du laser : 0.3 cm^{-1}), et $(E(n) - E(n+1))$ est la différence entre deux niveaux d'énergie consécutifs (4 cm^{-1} aux environs de Cs(39d)). Dans ces conditions, si on considère une impulsion de $100 \mu\text{J}$, c'est-à-dire environ 2.10^{14} photons, la proportion d'atomes dans l'état $6p$ qui sont excités dans l'état $39d$ dépasserait 60%. Ceci signifie que la transition est saturée. Si on considère que 50 % des atomes dans l'état $6p$ sont excités dans un état de Rydberg, sachant que 20% des atomes du piège magnéto-optique sont dans l'état $6p$, le nombre d'atomes de Rydberg produits peut atteindre 10^6 .

⁶Dans le cas du rubidium, la fréquence des lasers piège est ajustée de manière à maximiser la fluorescence du piège, si bien que la proportion d'atomes dans l'état $p_{3/2}$, quoique non déterminée, est probablement supérieure à celle obtenue pour le césium.

Cette évaluation peut être expérimentalement confirmée par deux méthodes. Je décrirai dans le paragraphe suivant comment les atomes de Rydberg sont détectés. Il suffit ici de savoir qu'on détecte les atomes de Rydberg en les ionisant. Les ions sont ensuite accélérés vers un détecteur. On peut alors évaluer le nombre d'atomes de Rydberg en comptant le nombre d'ions détectés. La seconde façon d'évaluer le nombre de Rydberg formés consiste à observer la baisse de fluorescence du piège due à la formation des atomes de Rydberg (puisque tout atome de Rydberg est ensuite ionisé et extrait du piège magnéto-optique). La diminution de fluorescence du piège peut aller jusqu'à 10%. Les atomes de Rydberg étant formés à une cadence de 10 Hz, le nombre d'atomes de Rydberg produits N_{ryd} suit l'équation :

$$N_{ryd} * (10Hz) \sim 10\% \frac{N_{at}(MOT)}{\tau}$$

où τ est le temps de remplissage du piège magnéto-optique (mesuré à 0,67 s : voir paragraphe 1.1.3) et N_{at} est le nombre d'atomes total de piège magnéto-optique (de l'ordre de 50 millions). Cela signifie dans le cas présent que le nombre d'atomes de Rydberg produits est d'environ 7.10^5 .

Dans ces conditions, on considérera donc que le nombre d'atomes de Rydberg produits va jusqu'à environ 10^6 , les densités obtenues allant donc jusqu'à 10^{10} atomes de Rydberg par cm^3 . Ces atomes sont à la température du piège magnéto-optique, soit de l'ordre de 130 μK pour Cs (resp. 300 μK pour Rb).

1.2.3 Détection des atomes de Rydberg

Les atomes de Rydberg sont détectés en appliquant une rampe de champ électrique, qui les ionise et les accélère vers un détecteur.

a) Seuil d'ionisation classique

Nous n'analyserons pas en détail les propriétés d'un atome de Rydberg alcalin dans un champ électrique. Nous retiendrons le modèle simple qui décrit la limite classique d'ionisation d'un atome de Rydberg par un champ électrique. Si on raisonne à une dimension, un électron de Rydberg placé dans un champ électrique E voit un potentiel

$$V = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 z} + eEz$$

Le potentiel est représenté sur la figure 1.10. On voit que pour un niveau électronique donné, il existe une valeur du champ électrique qui permet d'extraire l'électron du puits coulombien. Cette valeur est appelée seuil d'ionisation classique. Notons que le seuil d'ionisation dépend du niveau électronique considéré, si bien que l'ionization par champ électrique peut être sélective.

Plus précisément, on montre que le seuil d'ionisation classique est

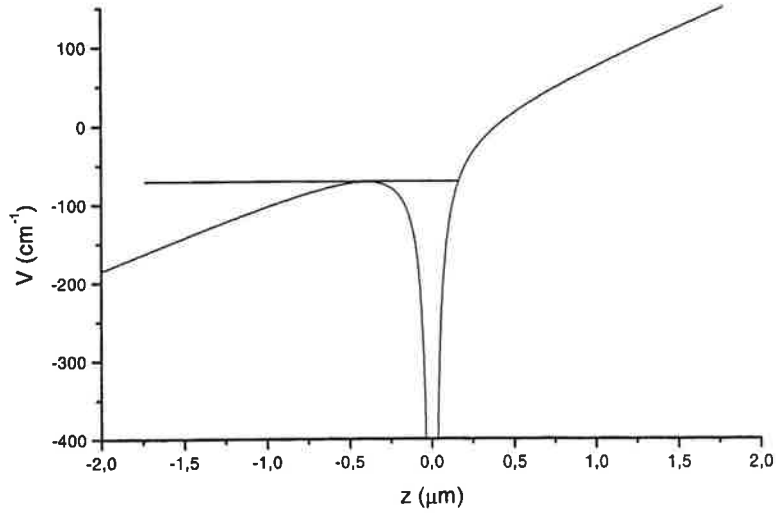


FIG. 1.10: *Potentiel coulombien avec effet Stark*

$$E_c = \frac{\pi \epsilon_0 R_y^2}{e^3 (n^*)^4} \text{ (SI)} = \frac{1}{16(n^*)^4} \text{ (u.a.)}$$

où $n^* = n - \delta(l)$ est le nombre quantique effectif, en tenant compte du défaut quantique. Pour l'état 40d, ceci correspond à un seuil d'ionisation de 160 V/cm.

b) Effet Stark

Le modèle de l'ionisation classique vu ci-dessus est un modèle très simplifié [1] : il néglige l'effet Stark sur l'énergie des niveaux électroniques propres. Il néglige aussi la forme spatiale des fonctions d'onde électronique, qu'on peut comprendre comme conséquence de barrières de potentiel centrifuges. Les états propres en tenant compte de l'effet Stark ne coïncident pas avec les harmoniques sphériques. On les appelle états Stark, qu'on qualifie de rouge ou de bleu, selon que l'effet Stark est négatif ou positif. La prise en compte de l'effet Stark change le seuil d'ionisation. Pour l'état Stark le plus rouge, le seuil d'ionisation est :

$$E = \frac{1}{9(n^*)^4} \text{ (u.a.)}$$

Enfin, pour un champ électrique suffisamment grand, l'énergie de l'état Stark le plus rouge issu d'un état $n+1$ devient inférieure à celle de l'état Stark le plus bleu issu d'un état n . Le champ au croisement vaut :

$$E = \frac{1}{3(n^*)^5} \text{ (u.a.)}$$

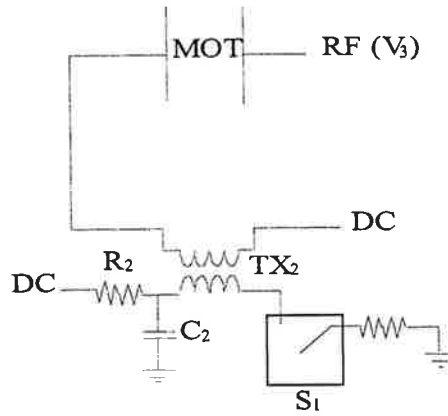


FIG. 1.11: Dispositif expérimental pour la détection des atomes de Rydberg. Le piège magnéto-optique (MOT) est entouré de deux grilles. Un condensateur C_2 est chargé par une tension continue, via la résistance R_2 . Un signal TTL commande un interrupteur S_1 . Une fois ouvert l'interrupteur ouvert, le condensateur se décharge dans le transformateur TX_2 . Par induction il en résulte une impulsion électrique sur une grille située près du piège magnéto-optique. Est notée en V_3 une tension alternative qui figure la radiofréquence utilisée au chapitre 2. En général cependant, la grille de droite est reliée à la masse.

Pour les atomes de Rydberg, le croisement est évité, du fait d'un couplage entre les états rouge et bleu de n adjacent ; ce couplage est dû à la taille finie du noyau, et il est absent pour l'atome d'Hydrogène.

c) Ionisation adiabatique

Si on applique un champ électrique pulsé, dont le temps de montée n'est pas trop rapide, le niveau électronique de départ nlm se projette lentement sur un état Stark, puis suit cet état. Lorsque le champ électrique de croisement de niveaux $E = \frac{1}{3(n^*)^5}$ est atteint, l'état suit adiabatiquement l'anticroisement, si bien qu'il devient un état Stark lié à $n + 1$. Le seuil d'ionisation est donc :

$$E = \frac{1}{16(n_s^*)^4}$$

où n_s^* diffère légèrement de n^* . Le seuil d'ionisation adiabatique des atomes de Rydberg alcalin est donc approximativement le seuil d'ionisation classique.

d) Détection des atomes de Rydberg

Pour notre expérience, les atomes de Rydberg sont ionisés sélectivement par une rampe de champ électrique, dont le temps de montée est de l'ordre de $1\mu s$. Ce temps assure que l'ionisation est essentiellement adiabatique pour les états s et d. La rampe de champ est appliquée sur celle

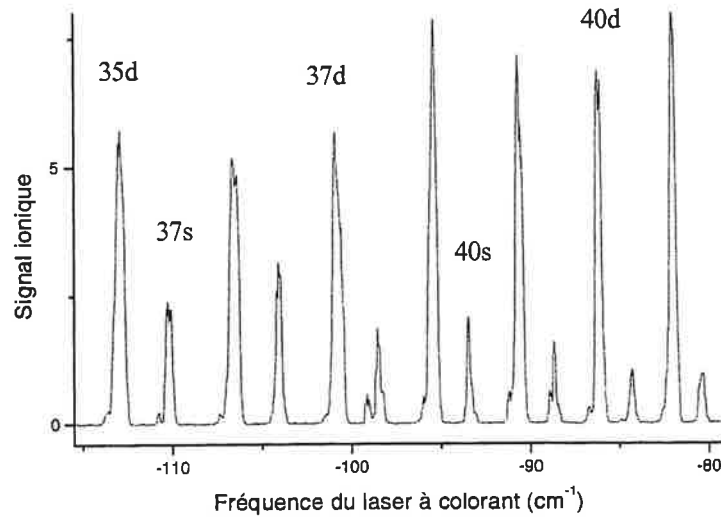


FIG. 1.12: Spectre obtenu en balayant le laser à colorant qui forme les atomes de Rydberg.

des deux grilles entourant le piège magnéto-optique qui est opposée au détecteur d'ions, comme montré sur la figure 1.11. En augmentant, le champ électrique atteint les seuils d'ionisation pour des niveaux de Rydberg de plus en plus profonds. Les ions formés sont ensuite accélérés vers un détecteur constitué d'une paire de galettes micro-canaux, en passant par une zone de temps de vol de 6 cm où ne règne aucun champ électrique. Le signal résolu en temps en sortie des galettes micro-canaux est amplifié, visualisé sur un oscilloscope, et enregistré par des box-car (intégrateurs à portes).

Nous ionisons les atomes après un délai choisi par rapport à l'instant de leur excitation. Suivant la polarisation de l'impulsion électrique, les ions ou les électrons sont accélérés vers une paire de galettes micro-canaux. Nous pouvons ainsi indifféremment détecter les ions ou les électrons.

Nous pouvons appliquer des champs suffisamment intenses pour ioniser des niveaux aussi profonds que 23d (qui correspond à un seuil d'ionisation de 1670 V/cm). Une image typique des signaux observés sur l'oscilloscope est donnée sur la figure 2.5.

e) Spectre

Nous présentons sur la figure 1.12 un spectre obtenu en balayant rapidement la fréquence du laser à colorant. On observe deux séries différentes, qui correspondent aux deux harmoniques sphériques auxquelles on peut accéder par transition dipolaire à partir d'un état p : ce sont les niveaux s et d. Ces deux séries se resserrent pour les n élevés, et il est en pratique impossible de discerner deux niveaux adjacents pour $n > 60$.

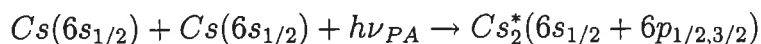
Notons par ailleurs qu'au cours de l'excitation des atomes de Rydberg, on n'observe pas d'ionisation à deux photons. L'ionisation à deux photons depuis 6s est en effet improbable car non résonante; l'ionisation à deux photons depuis 6p est également peu probable, puisqu'elle corres-

pond à des transitions dipolaires avec des électrons très chauds, transitions improbables.

1.3 Expériences de photoassociation moléculaire

Les chapitres 3 et 4 de ce manuscrit traitent de deux applications importantes de la réaction de photoassociation. Il s'agit d'une part (chapitre 3) de la mise au point de méthodes de spectroscopie pour la détermination des paramètres de longueurs de diffusion de l'atome de césium, et d'autre part (chapitre 4), de la possibilité d'obtenir un échantillon de molécules froides dans des niveaux de rotation et de vibration bien définis (elles sont donc froides suivant les degrés de liberté de translation, vibration et rotation), et de les piéger dans un piège magnétique.

Nous exposons dans ce paragraphe les principes essentiels des expériences de photoassociation, sans aborder les résultats des chapitres 3 et 4. La réaction de photoassociation est la suivante :



où ν_{PA} est la fréquence du laser de photoassociation. La molécule produite par photoassociation est une molécule électroniquement excitée, dans un puits de potentiel attractif sous les limites de dissociation $6s + 6p_{1/2}$ ou $6s + 6p_{3/2}$ (voir figure 1.17).

Dans un premier temps, nous présentons très brièvement la molécule de césium. Des rappels théoriques de physique moléculaire qui peuvent être utiles pour la compréhension des expériences présentées ici sont reportés en annexe A. Je décris ensuite schématiquement un modèle perturbatif pour la réaction de photoassociation, lui aussi détaillé dans une annexe (annexe B). Il s'agit d'un couplage optique quasi-résonant entre un continuum initialement fin et un niveau moléculaire excité. Comme nous allons le voir, le modèle perturbatif de la photoassociation est formellement équivalent à une règle d'or de Fermi.

Je décrirai ensuite de façon précise le dispositif expérimental utilisé pour les expériences de photoassociation. Puis je décrirai les expériences qui nous ont permis de déterminer expérimentalement le taux de photoassociation. Le taux observé (de 0,1 à 5 molécules par atome et par seconde, selon l'état dans lequel les atomes sont photoassociés) est en très bon accord avec le modèle perturbatif décrit.

1.3.1 La molécule de césium

Nous avons déjà présenté (voir figure 1.1) la structure électronique du césium. Nous présentons ici des courbes moléculaires pour Cs_2 , d'après [98]. L'idée première de la physique moléculaire, sur laquelle repose l'approximation de Born-Oppenheimer, est la suivante. Les électrons étant bien plus légers que les atomes, ils s'adaptent adiabatiquement à la position relative des deux atomes. On peut ainsi, en fonction de la distance interatomique d'une molécule, considérée comme un paramètre, tracer les énergies propres électroniques. On considère ensuite que les atomes se

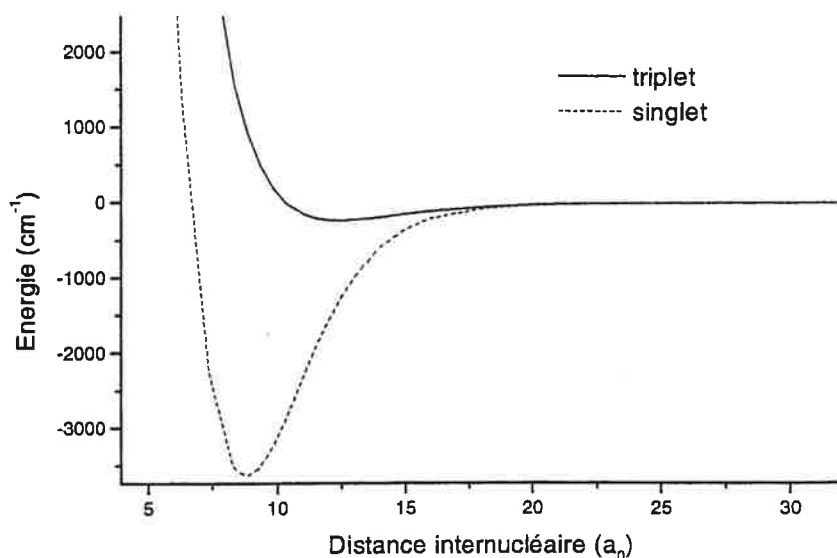


FIG. 1.13: Courbes de potentiel triplet et singulet de l'état $6s_{1/2} + 6s_{1/2}$ du césium, sans structure hyperfine.

meuvent dans le potentiel créé par les variations des énergies propres électroniques en fonction de la distance interatomique.

a) Les potentiels moléculaires

Etat fondamental ; cas (a) de Hund Si les deux atomes sont dans l'état s, le moment orbital électronique est nul, si bien que, si on néglige la structure hyperfine, la molécule est bien décrite par le cas (a) de Hund. En fonction de l'appariement des spins des deux électrons, du fait de l'interaction d'échange, deux états électroniques non dégénérés se séparent, l'état triplet et l'état singulet (voir figure 1.13, d'après [98]). On parlera souvent dans ce manuscrit pour chacun de ces deux états d'état fondamental. En fait, seul l'état singulet est l'état fondamental, et on devrait parler pour l'état triplet de l'état triplet de plus basse énergie. Les molécules du cas (a) de Hund sont notées

$${}^{2S+1} \Lambda_{(u,g)}^{(+,-)}$$

où S est le spin total électronique, Λ est la projection du moment cinétique électronique total, $\sigma = (+, -)$ est la parité de Krönig, et (u, g) représente la symétrie ungerade ou gerade (pour toutes ces notations voir l'annexe A).

A courte distance, les états triplet et singulet subissent une levée de dégénérescence, due à l'interaction d'échange, liée au recouvrement entre les fonctions d'onde des deux électrons. A longue distance, l'interaction électrostatique est prépondérante; les deux atomes étant dans

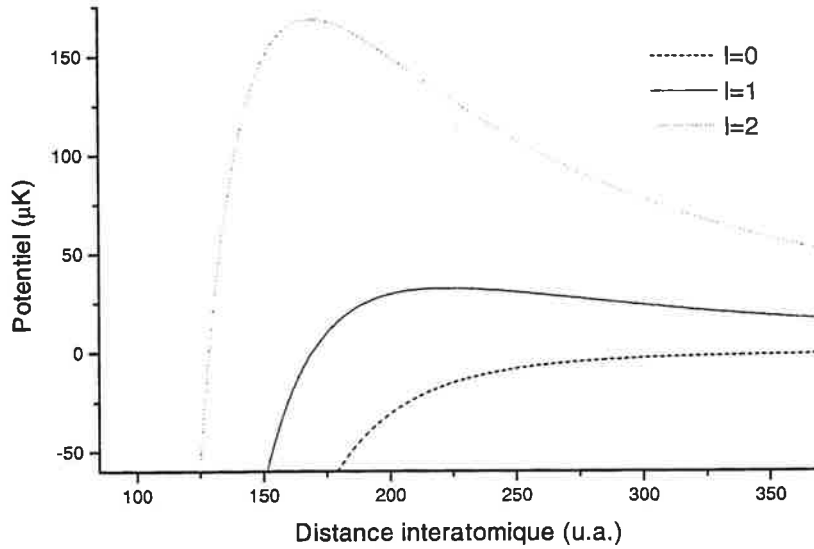


FIG. 1.14: Effet du moment cinétique des noyaux sur le potentiel moléculaire. On a représenté la somme $C_6/R^6 + \frac{l(l+1)\hbar^2}{2\mu R^2}$ pour $l = 0, 1, 2$. $C_6 = 6510 \text{ u.a.}$

l'état $6s$, l'interaction dipolaire est nulle au premier ordre des perturbations. A l'ordre 2, l'énergie dominante est l'interaction de Van-der-Waals dipôle-induit, dipôle-induit :

$$E(^1\Sigma_g^+, ^3\Sigma_u^+) = \frac{C_6}{R^6}$$

D'après notre étude décrite au chapitre 3, $C_6 = 6510 \text{ u.a.}$ En tenant compte des autres interactions (dipôle- quadrupôle, etc...), d'autres termes interviennent, en C_8/R^8 , C_{10}/R^{10} ... Par ailleurs, comme il est montré au paragraphe A.5.1, du fait de la rotation des noyaux, il se crée des barrières répulsives $\frac{l(l+1)\hbar^2}{2\mu R^2}$ qui s'ajoutent au potentiel moléculaire. Celles-ci sont représentées figure 1.14.

Les molécules excitées ; le cas (c) de Hund Comme nous le verrons, nous atteignons efficacement par photoassociation essentiellement des molécules de grande élancement, qui correspondent à des niveaux situés en énergie à quelques dizaines de cm^{-1} au dessous des limite de dissociation. Ces molécules électroniquement excitées sont corrélées asymptotiquement aux limites atomiques $6s + 6p_{1/2,3/2}$. Dans ces conditions, l'interaction spin-orbite est généralement plus importante que les interactions électrostatiques. Pour cette raison, ces molécules sont décrites par le cas (c) de Hund (voir A.2.2). Les états du cas (c) de Hund s'écrivent :

$$|\Omega|_{(u,g)}^{(+,-)}$$

où Ω est la projection du moment électronique total J sur l'axe interatomique, $\sigma = (+, -)$ est la parité de Krönig (définie quand $\Omega = 0$), et (u, g) représente la symétrie ungerade ou gerade.

Sont représentés figure 1.15, d'après la référence [98] les états moléculaires excités qui ont été concernés par les expériences que je retrace dans ce mémoire. On note en particulier l'existence de quatre états attractifs à longue distance, asymptotiquement corrélés à la limite de dissociation $6s+6p_{3/2}$ ($0_g^-, 1_g, 0_u^+, 1_u$), et trois états attractifs à longue distance asymptotiquement corrélés à $6s+6p_{1/2}$ ($0_u^+, 0_g^-, 1_g$).

Par ailleurs, les potentiels des états 0_g^- et 1_u asymptotiquement corrélés à la limite $6s+6p_{3/2}$ ont une forme en double-puits, qui s'explique par un croisement évité avec un état corrélé à la limite de dissociation $6s+6p_{1/2}$. Nous verrons que cette forme en double puits explique pourquoi de nombreuses molécules froides dans l'état fondamental sont produites par désexcitation radiative de ces molécules.

Notons que ces molécules sont d'un type très particulier : les distances interatomiques moyennes sont supérieures à $20 a_0$; pour l'état 1_u par exemple, la distance interatomique est tellement grande qu'on peut complètement négliger le recouvrement des fonctions d'onde des deux électrons, c'est-à-dire l'énergie d'échange. La physique moléculaire à laquelle nous nous intéressons dans ce manuscrit est à la limite entre physique moléculaire et physique atomique.

A longues distances internucléaires, le terme dominant est l'interaction de spin-orbite, qui varie lentement avec la distance interatomique. L'interaction électrostatique est quant à elle dominée par l'interaction dipôle-dipôle induit :

$$E = \frac{C_3}{R^3} + \frac{C_6}{R^6} + \frac{C_8}{R^8} + \dots$$

La valeur de C_3 est typiquement de 15 u.a., comme on le montrera au chapitre 3.

La structure hyperfine A très grande distance internucléaire, les interactions hyperfines ne sont pas négligeables, et entraînent une levée de dégénérescence. Nous verrons au chapitre 3 que la structure hyperfine est par exemple déterminante dans l'étude de l'état 1_u corrélé à la limite de dissociation $6s+6p_{3/2}$. Sur la figure 1.16, est représenté l'effet des interactions hyperfines sur les états moléculaires du fondamental. Un point important ici est la brisure de symétrie u/g pour les états tels que $F_t = 6$ (voir annexe A). Pour les derniers niveaux moléculaires de l'état fondamental, qui sont des molécules de grande élongation spatiale (supérieure à $25 a_0$), la symétrie des molécules n'est pas purement gerade ou ungerade.

b) Les fonctions d'onde

Une fois tracés les potentiels moléculaires, il est possible de déterminer les fonctions d'onde caractérisant le mouvement relatif des noyaux. Celui-ci se décompose en un mouvement de vibration, éventuellement quantifié lorsque le niveau considéré est un niveau lié, et un mouvement de rotation. On parle de niveau ro-vibrationnel, noté v, J .

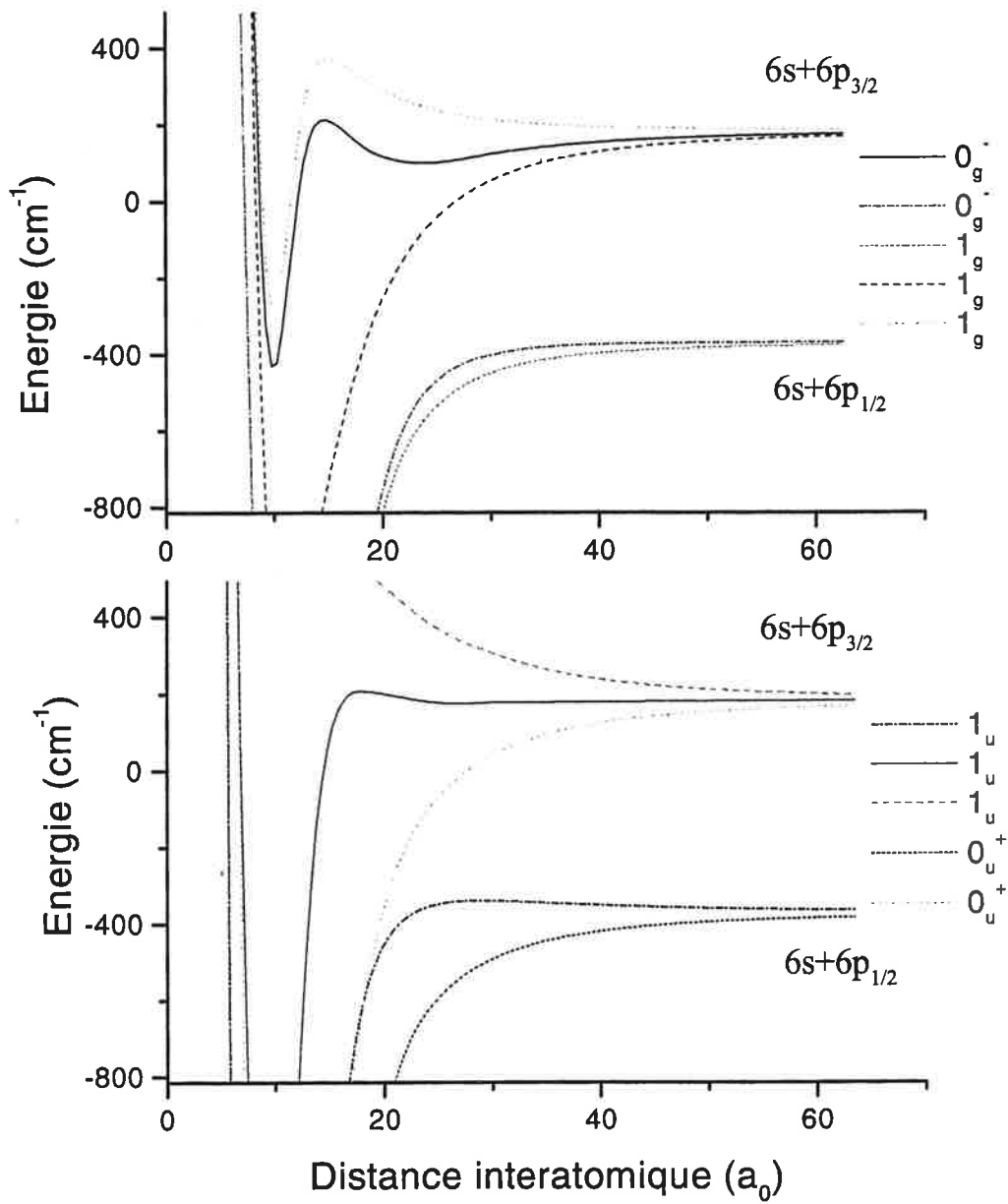


FIG. 1.15: Sont représentées sur cette figure les différentes courbes de potentiel asymptotiquement reliées aux asymptotes $6s+6p_{1/2,3/2}$ citées dans ce mémoire. L'interaction spin-orbite est ici clairement dominante. Les états sont donc représentés dans le cas c) de Hund. La structure hyperfine est négligée. On a séparé les états de symétrie u et ceux de symétrie g pour plus de lisibilité.

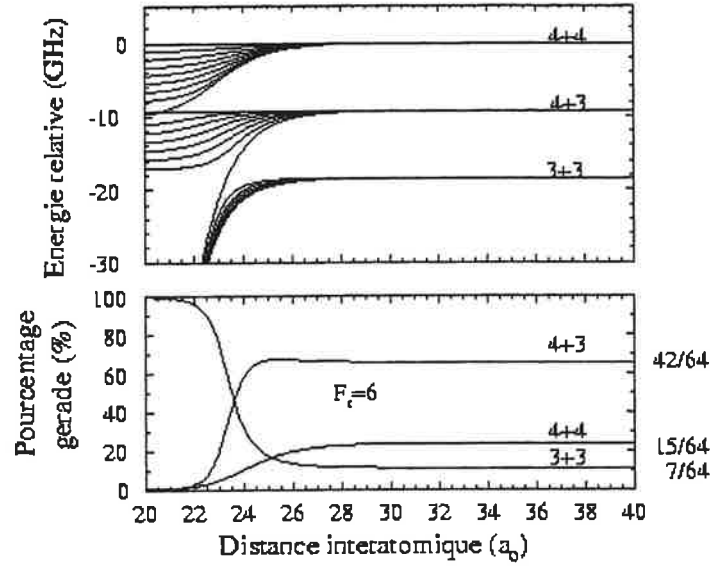


FIG. 1.16: Courbes de potentiel pour les différentes composantes hyperfines de l'état $6s_{1/2} + 6s_{1/2}$ du césium (tiré de [64]). Dans la partie supérieure, l'énergie de la courbe d'énergie maximale (correspondant à $F_t = 8$) a été soustraite pour plus de lisibilité. Dans la partie inférieure, pour les trois états tels que $F_t = 6$, est représenté, en fonction de la distance interatomique, le pourcentage de fonction d'onde gerade de l'état considéré.

Fonctions d'onde liées Dans un puits de potentiel, le mouvement de vibration inter-nucléaire est quantifié. Les conditions de quantification semi-classique WKB (voir équation A.6), valables lorsque le potentiel n'est pas trop plat (dans notre cas, elles sont toujours valables, sauf pour le tout dernier niveau lié) déterminent les énergies de vibration permises. La fonction d'onde de vibration s'écrit alors (sauf au voisinage des points tournants classiques, où la fonction d'onde est une fonction d'Airy) :

$$\Psi(R) = \sqrt{\frac{2\omega\mu}{\pi p(R)}} \cos\left(\frac{1}{\hbar} \int_{R_{int}}^R p(R') dR' - \frac{\pi}{4}\right)$$

où μ est la masse réduite, ω est la pulsation du mouvement classique dans le potentiel, et $p(R)$ est l'impulsion relative locale des noyaux.

Fonctions d'onde libres Les fonctions d'onde $\Psi(R)$ au-dessus de la limite de dissociation de l'état moléculaire fondamental ne sont pas quantifiées. Elles dépendent du moment cinétique des noyaux \vec{l} . On note $G(R) = \Psi(R)/R$. Les fonctions d'onde de collision $G(R)$ s'écrivent comme combinaison linéaire de fonction de Bessel et de Neumann (voir équation A.14). Pour des températures suffisamment basses, les barrières rotationnelles empêchent les atomes de s'approcher. A très grandes distances (où le potentiel d'interaction est négligeable), les fonctions d'onde de collision pour l'énergie $E = \frac{\hbar^2 k^2}{2\mu}$ sont :

$$G_S^l(R) \propto \sqrt{\frac{2\mu}{\pi\hbar^2 k^2}} \sin(kR - l\frac{\pi}{2} + \delta_l^S(k))$$

Les fonctions d'onde de collision dépendent de l'état électronique, c'est-à-dire de la voie de collision. Pour des températures très froides, comme celles de nos expériences, seule l'onde partielle $l=0$ peut franchir les barrières rotationnelles, si bien que pour la réaction de photoassociation qui est efficace à des distances inférieures aux sommets des barrières rotationnelles, seule l'onde s ($l = 0$) intervient. La fonction d'onde s'écrit à grande distance :

$$G_{coll}(R) = \sqrt{\frac{2\mu}{\pi\hbar^2 k^2}} \sin(k(R - a_S))$$

où $a_S = -\lim_{k \rightarrow 0} \left(\frac{\tan(\delta_0^S(k))}{k} \right)$ est la longueur de diffusion, qui dépend de l'état électronique considéré. On voit ici que l'ensemble des propriétés de collision élastique de deux atomes à température suffisamment froide réside dans la valeur de la longueur de diffusion. La valeur de ce paramètre est donc cruciale pour les expériences de collision d'atomes froids. En particulier, son signe détermine les conditions de faisabilité et de stabilité d'un condensat de Bose-Einstein.

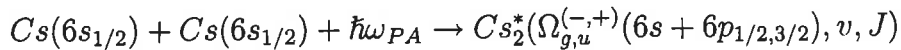
On montre que la section efficace de collision en onde s de deux atomes s'écrit :

$$\sigma(k) = \frac{8\pi a_S^2}{1 + k^2 a_S^2}$$

Nota : Les fonctions d'onde libres ou liées n'ont pas en général d'écriture analytique ; elles sont donc numériquement calculées à partir des potentiels. La méthode de calcul numérique utilisée au Laboratoire Aimé Cotton a été développée par V. Kokoouline, et elle est décrite dans sa thèse [90].

1.3.2 La réaction de photoassociation

La réaction de photoassociation est une transition dipolaire entre un état moléculaire libre (la paire d'atomes en collision) et un niveau moléculaire lié. Le niveau moléculaire peuplé par photoassociation est électroniquement excité : c'est un niveau de rotation-vibration lié dans un puits de potentiel qui converge asymptotiquement vers une des deux limites atomiques $6s+6p_{1/2}$ ou $6s+6p_{3/2}$. La réaction s'écrit :



où ω_{PA} est la pulsation du laser de photoassociation. Cette réaction peut être réalisée en utilisant des atomes dans l'état $6s(F=3)$ ou $6s(F=4)$. L'état moléculaire électroniquement excité noté $\Omega_{g,u}^{(-,+)}$ est un état propre du cas (c) de Hund, pour lequel les bons nombres quantiques sont

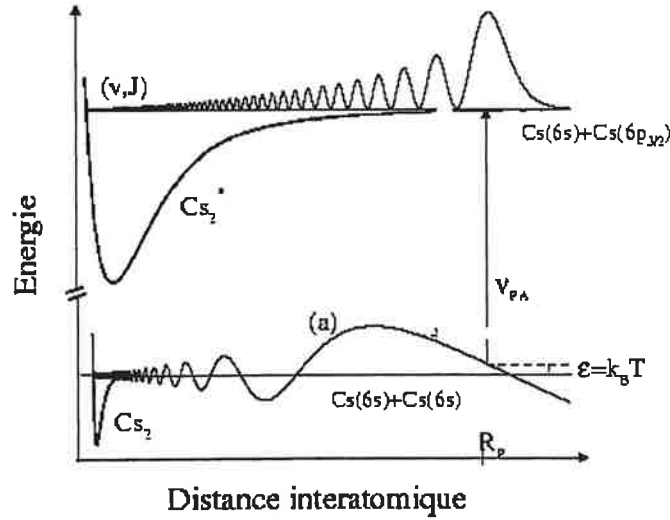


FIG. 1.17: Schéma de principe de la réaction de photoassociation. La fonction d'onde excitée est située majoritairement à grandes distances interatomiques, si bien que le recouvrement entre fonctions d'onde du fondamental et excitée se construit principalement à grandes distances.

Ω , projection sur l'axe interatomique de la somme du spin et du moment orbital électronique $\Omega = \Sigma + \Lambda$, ainsi que la parité u/g et (lorsque $\Omega = 0$) la parité de Krönig $-/+$. La durée de vie de ces molécules est de l'ordre de grandeur de la durée de vie atomique dans l'état excité (de l'ordre de 30 ns). Les nombres quantiques v et J représentent respectivement la vibration et la rotation des noyaux de la molécule excitée.

L'annexe B détaille les calculs de la théorie perturbative qui permet de donner une évaluation pour l'efficacité de ce processus. Elle reprend les résultats de la référence [8]. Je me borne ici à en rappeler les résultats principaux.

a) Règle d'or de Fermi

Le formalisme utilisé dans l'annexe B est le formalisme de la matrice densité. Il s'agit d'un modèle perturbatif. On montre que la probabilité de transition de photoassociation vaut :

$$P(t) = \frac{1}{4\hbar^2} \int d\alpha \frac{\Lambda^3}{V} \left(\frac{3}{2\pi} \right)^{3/2} \exp\left(-\frac{E}{k_B T}\right) \left| \langle f | \vec{\mu} \cdot \vec{E} | i \rangle \right|^2 \frac{4 \sin^2\left(\frac{(\delta + \omega_\alpha)t}{2}\right)}{(\delta + \omega_\alpha)^2} \quad (1.13)$$

où Λ est la longueur de de Broglie à la température atomique et V le volume de quantification. Les états du continuum sont notés $|i\rangle$ (repérés par leur énergie $\hbar\omega_\alpha$) et le niveau rovibrationnel final, $|f\rangle$ (repéré par son énergie $E_f = \hbar\omega_f$). L'intégration se fait sur l'ensemble du continuum initialement peuplé, supposé à l'équilibre thermodynamique à la température T . $\vec{\mu} \cdot \vec{E}$ est l'opérateur de transition dipolaire, et $\delta = \omega_{PA} - \omega_f$ est le décalage du laser de photoassociation. On

note $\frac{4 \sin^2(\frac{(\delta+\omega_\alpha)t}{2})}{(\delta+\omega_\alpha)^2} = 2\pi t \delta_t((\delta+\omega_\alpha))$. δ_t est une fonction piquée en 0, de largeur $1/t$. Lorsque le temps d'interaction est grand δ_t tend vers un pic de Dirac, si bien que la probabilité de transition entre un niveau initial $|i\rangle$ et un niveau moléculaire lié $|f\rangle$ s'écrit :

$$P(t) = \frac{\pi}{2\hbar} \left| \langle f | \vec{\mu} \cdot \vec{E} | i \rangle \right|^2 n(\hbar\omega_\alpha = -\hbar\delta_r) t \quad (1.14)$$

$n(\hbar\omega_\alpha = -\hbar\delta_r)$ représente la densité d'états du continuum d'états initialement peuplés, à l'énergie de résonance $E_r = \hbar(\omega_f - \omega_{PA}) = \hbar\delta_r$. $n(E_r)$ est proportionnelle à $\exp(-\frac{E_r}{k_B T})$. La température atomique étant très froide (correspondant à une largeur de 2 MHz), le terme $n(\hbar\omega_\alpha = -\hbar\delta_r)$ exprime le caractère résonant de la photoassociation. Apparaît ici l'avantage de la photoassociation moléculaire d'atomes froids, qui permet une spectroscopie très précise des états moléculaires excités.

Sous la forme 1.14, la probabilité de photoassociation apparaît comme une règle d'Or de Fermi (dont je rappelle par ailleurs la démonstration en annexe C.1). Dans les deux cas, il s'agit d'un couplage résonant entre un niveau discret et un continuum d'états large. Notons cependant que dans le cas de la règle d'Or de Fermi, l'état initial est l'état discret, et l'intégration se fait sur les états finaux, tandis que présentement, l'intégration se fait sur les états initiaux.

b) Calcul de l'élément de couplage

Evaluer le taux de photoassociation consiste principalement à évaluer le terme $\left| \langle f | \vec{\mu} \cdot \vec{E} | i \rangle \right|^2$. Comme il est montré dans l'annexe A.6, dans le cas où le dipôle d'interaction dépend peu de la distance interatomique, ce terme se factorise en un moment dipolaire de transition moléculaire d et une intégrale de recouvrement entre la fonction d'onde initiale et la fonction d'onde finale, notée $S(i, f)$ (voir équation A.16) :

$$\left| \langle f | \vec{\mu} \cdot \vec{E} | i \rangle \right|^2 = E^2 d^2 \left| \int dR \Psi_{nucl}^i(R) \Psi_{nucl}^f(R) \right|^2 = E^2 d^2 (S(i, f))^2$$

d est proportionnel au dipôle atomique. La constante de proportionnalité dépend de l'état moléculaire excité, et de la symétrie de la molécule (voir B.2.2). On donne dans le tableau suivant le résultat du calcul (qui pourra être trouvé dans la référence [4]) :

	3+3	3+4	4+4	3+3	3+4	4+4
$0_g^- \quad p_{3/2}$	$\frac{11}{336}$	$\frac{1}{112}$	$\frac{125}{3888}$	$\frac{23}{1008}$	$\frac{29}{3024}$	$\frac{91}{3888}$
$0_g^- \quad p_{1/2}$	$\frac{11}{336}$	$\frac{1}{112}$	$\frac{125}{3888}$	$\frac{23}{1008}$	$\frac{29}{3024}$	$\frac{91}{3888}$
$0_u^+ \quad p_{3/2}$	$\frac{29}{1512}$	$\frac{1}{72}$	$\frac{35}{1944}$	$\frac{1}{56}$	$\frac{5}{216}$	$\frac{37}{1944}$
$0_u^+ \quad p_{1/2}$	$\frac{29}{3024}$	$\frac{1}{144}$	$\frac{35}{3888}$	$\frac{1}{112}$	$\frac{5}{432}$	$\frac{37}{3888}$

L'intégrale $S(i, f)$ n'est pas de manière générale calculable analytiquement, et nécessite une évaluation numérique. Cependant, pour les niveaux rovibrationnels excités qui ne sont pas trop

profonds dans le puits de potentiel excité, l'essentiel de la fonction d'onde excitée réside au voisinage du point tournant externe de la molécule (voir figure 1.17). On montre alors que $S(i, f)$ est proportionnelle à la valeur de la fonction d'onde des atomes en collision, prise au point tournant externe R_0^n de la molécule photoassociée. Pour plus détail, on pourra se reporter à l'annexe B.

c) Taux de photoassociation

Si on considère la réaction de photoassociation dans un piège magnéto-optique de densité n , on montre que le taux de photoassociation par atome est :

$$\Gamma_{PA} = \left(\frac{3}{2\pi}\right)^{3/2} \frac{\pi}{2\varepsilon_0\hbar c} I_{PA} n \Lambda^3 (S(i, f))^2 \exp\left(-\frac{E_r}{k_B T}\right) d^2 = n I_{PA} \Xi \quad (1.15)$$

Ξ résume tous les termes sauf la densité n et l'intensité laser I_{PA} . Comme je l'ai noté ci-dessus, d est proportionnel au dipôle atomique μ , lui-même très bien connu, d'après l'équation

$$\Gamma = \frac{\omega^3 \mu^2}{3\pi\varepsilon_0\hbar c^3}$$

La constante de proportionnalité (voir tableau ci-dessus) est de l'ordre de 1/10. On voit donc que l'équation 1.15 permet une évaluation du taux de photoassociation, pourvu qu'on connaisse l'intégrale de recouvrement $S(i, f)$.

Notons cependant que les calculs que nous avons présentés jusqu'ici négligent l'émission spontanée. Cependant, du fait de l'émission spontanée, le temps d'interaction est limité par $\frac{1}{\gamma} \sim 30$ ns où γ est la largeur naturelle du niveau excité (liée par exemple à l'émission spontanée ou la dissociation). Comme la largeur naturelle de l'état excité est plus grande que la largeur du continuum $k_B T$ (de l'ordre de 2 MHz, ce qui correspond à 300 ns), il n'est pas légitime de remplacer dans l'équation 1.13 $\frac{4 \sin^2(\frac{(\delta+\omega_\alpha)t}{2})}{(\delta+\omega_\alpha)^2}$ par un pic de Dirac, c'est-à-dire qu'il n'est pas légitime de faire l'approximation des temps longs. Il est plus juste de remplacer $\frac{4 \sin^2(\frac{(\delta+\omega_\alpha)t}{2})}{(\delta+\omega_\alpha)^2}$ par une lorentzienne de largeur $\frac{1}{\gamma}$. L'équation 1.13, s'écrit donc :

$$P(t) = \frac{\pi}{2\hbar} \int d\alpha \frac{\Lambda^3}{V} \left(\frac{3}{2\pi}\right)^{3/2} \exp\left(-\frac{\hbar\omega_\alpha}{k_B T}\right) |\langle f | d.E | i \rangle|^2 \frac{1}{\pi} \frac{\gamma}{(\delta + \omega_\alpha)^2 + \gamma^2} t \quad (1.16)$$

Il est utile d'exprimer ce taux de photoassociation tenant compte de l'émission spontanée, en fonction du taux calculé en ignorant l'émission spontanée. Alors, si on suppose le décalage supérieur à la largeur du continuum, on a, dans le cas d'une collision en onde s :

$$\Gamma_{PA}^\gamma(\delta) \approx \frac{\pi}{2\hbar} \int dE \exp(-E/k_B T) \frac{\Lambda^3}{V} \left(\frac{3}{2\pi}\right)^{3/2} |\langle f | d.E | i \rangle|^2 \frac{1}{\pi} \frac{\gamma}{\gamma^2 + \delta^2} \approx \Gamma_{PA} \left(\frac{k_B T}{2}\right) \frac{2\pi k_B T \gamma}{\pi\hbar (\gamma^2 + \delta^2)} \quad (1.17)$$

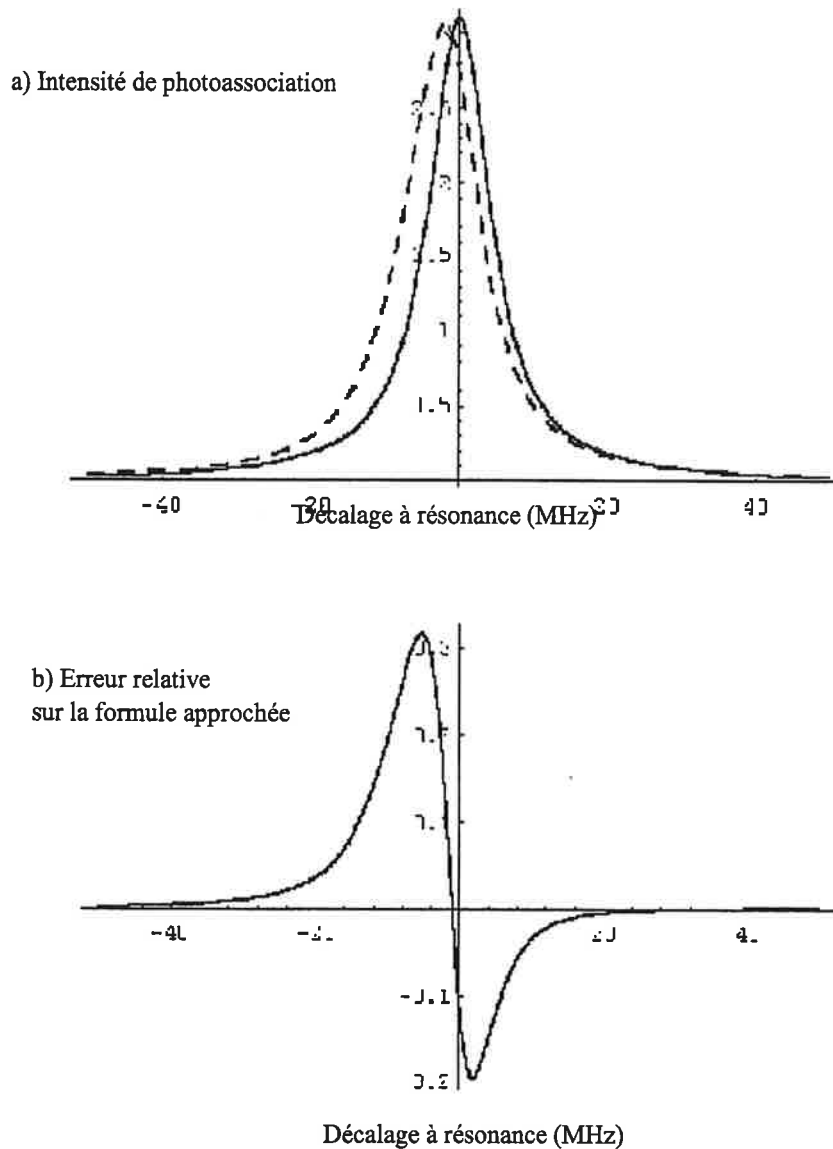


FIG. 1.18: a) Comparaison, en unité arbitraire, entre la formule 1.17 et la formule 1.16. Les intégrations numériques sont réalisées avec Mathematica; la formule approchée donne le bon ordre de grandeur pour ce qui est du taux de photoassociation. Cependant, la prise en compte de la répartition des atomes dans le continuum d'états initial entraîne un shift d'environ 2 MHz de la résonance de photoassociation. La prise en compte de la largeur du laser ne modifie pas sensiblement l'allure des courbes présentées en a). En b) est tracée l'erreur relative entraînée par l'approximation de l'équation B.10. L'erreur est au maximum de 30 %.

où Γ_{PA} est la formule écrite en 1.15. κ est facteur numérique qui vaut 1,46 (voir annexe B). La validité de cette formule est testée figure 1.18. Comme on le voit sur cette figure, la formule 1.17 donne une très bonne évaluation du taux de photoassociation. Cependant, elle ne rend pas compte d'un décalage en fréquence de la résonance de photoassociation par rapport à la résonance moléculaire. Ce décalage dépend de la température : il est dû à la distribution des atomes dans le continuum d'états, c'est-à-dire à la variation de la condition de résonance en fonction de l'énergie des atomes en collision. Ce décalage est de l'ordre de la largeur du continuum initial, c'est-à-dire typiquement 2 MHz.

Les calculs présentés dans ces paragraphes permettent une évaluation du taux de photoassociation. En particulier, pour les distances interatomiques grandes, et si on néglige le potentiel d'interaction fondamental, l'intégrale de recouvrement peut s'écrire sous la forme (voir équation B.6) :

$$S(i, f) \simeq \left(3 \frac{\hbar^2 k^2}{2\mu} \hbar \Delta_n\right)^{-1/4} \sin(kR_0^n + \delta_0(k))$$

où Δ_n est le décalage à la résonance atomique $6s \rightarrow 6p_{3/2}$. Alors, le taux de photoassociation s'écrit de manière analytique :

$$\Gamma_{PA}^\gamma \approx 10^{-3} \frac{I_{PA} n \hbar^2 \lambda^3}{c k_B T \mu^{3/2} (\hbar \Delta_n)^{1/2}} \sin^2(kR_0^n + \delta_0(k)) \quad (1.18)$$

où $\lambda = 852$ nm est la longueur d'onde de la transition considérée. L'application numérique de cette formule, prise pour une densité atomique de 10^{11} cm⁻³, une intensité laser de 55 W/cm² et un décalage Δ_n de 10 cm⁻¹ et pour $\sin(kR_0^n + \delta_0(k)) = 1$ (c'est-à-dire qu'on considère un maximum local de photoassociation) donne $\Gamma_{PA}^\gamma \sim 100$ s⁻¹. Cette formule a pour intérêt principal de fixer un ordre de grandeur pour le taux de photoassociation. En réalité du fait du potentiel d'interaction fondamental, la fonction d'onde radiale des atomes en collision diminue en amplitude quand la distance interatomique décroît. De ce fait, le taux de photoassociation est plus faible que celui évalué d'après la formule 1.18. Une évaluation plus précise du taux de photoassociation nécessite donc un calcul numérique pour l'intégrale de recouvrement $S(i, f)$; les résultats de ce calcul, effectué au laboratoire Aimé Cotton, sont synthétisés figure 1.19.

1.3.3 Les lasers de photoassociation

L'objet des paragraphes qui suivent est de détailler la mise en oeuvre de l'expérience de photoassociation. Je commence par décrire le montage expérimental, puis je décris les expériences de mise en évidence de la réaction de photoassociation, ainsi que la comparaison entre les taux de photoassociation observés, et le taux prédit par la théorie perturbative détaillée plus haut.

Deux lasers ont été utilisés dans notre expérience pour la réaction de photoassociation. Dans la zone de photoassociation, les lasers de photoassociation présentent un profil d'intensité gaussien :

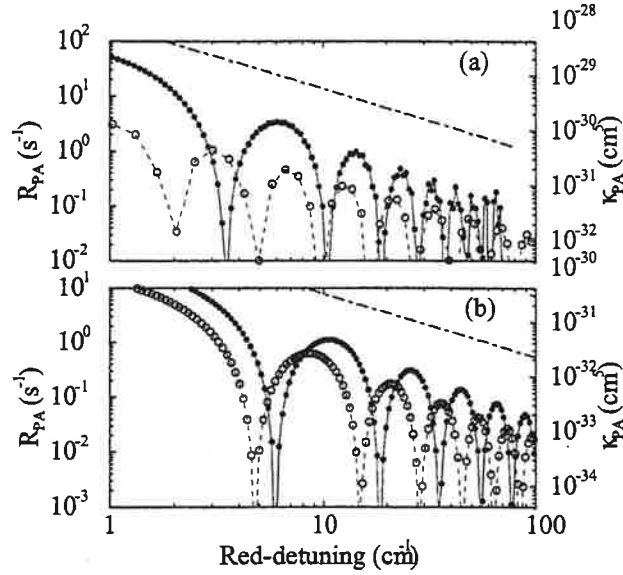


FIG. 1.19: *Calculs numériques du taux de photoassociation dans le piège magnéto-optique, pour des états moléculaires asymptotiquement corrélés à $6s+6p_{1/2}$ (cercles vides) et $6s+6p_{3/2}$ (cercles pleins). (a) : état 0_g^- ; (b) : état 0_u^+ . On a pris les paramètres expérimentaux suivants : $T=140 \mu K$; $n_{at} = 10^{11} \text{ cm}^{-3}$; intensité laser 55 W/cm^2 . La ligne pointillée est le résultat du calcul en utilisant la formule analytique approchée [55] de l'article [8].*

$$I_{PA} = I_{PA}(0) \exp\left(-2 \frac{x^2 + y^2}{w_{PA}^2}\right) \quad (1.19)$$

où w_{PA} est environ de $300 \mu m$, pour les deux lasers utilisés. La mesure du profil d'intensité du laser Sa :Ti, comparée à la mesure de l'extension spatiale du piège magnéto-optique, est montrée figure 1.20

a) La DBR

La photoassociation a été réalisée en utilisant une diode de type DBR. Il s'agit d'une diode SDL 5712-H1. Sa puissance est de 100 mW , et sa largeur spectrale est de 3 MHz . Cette diode est focalisée sur un col de $300 \mu m$. L'intensité maximale au centre du piège est de 80 W/cm^2 . La fréquence de cette diode peut être balayée de deux façons. On peut modifier le courant de la diode. Il n'est pas alors possible de balayer de grandes plages en longueur d'onde sans saut de mode. L'intérêt d'un tel balayage est la possibilité de faire varier la longueur d'onde sur une petite plage, aussi lentement que souhaité. On peut aussi changer en continu la température de fonctionnement de la diode. Ceci permet de balayer presque 10 cm^{-1} sans saut de mode. Un tel balayage permet de réaliser la spectroscopie des niveaux rovibrationnels situés juste en dessous de la limite de dissociation $6s+6p_{3/2}$. Une vitesse de balayage minimale est cependant requise de

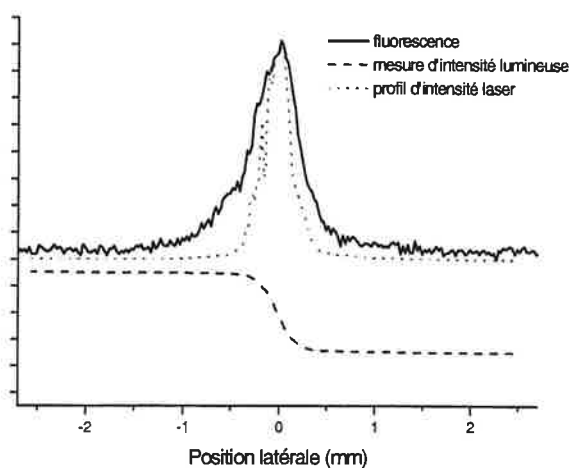


FIG. 1.20: Comparaison de l'extension spatiale du piège magnéto-optique (trait plein), et du waist du laser de photoassociation (pointillés). Ce dernier est déterminé par la méthode suivante : on obstrue partiellement la tâche laser par une lame de rasoir montée sur vis micrométrique. Celle-ci est déplacée, et on enregistre l'intensité laser après la lame en fonction de la position de la lame (tirets). Le profil d'intensité du laser est la dérivée du signal mesuré en fonction de la position de la lame.

façon à ce que les fluctuations de températures soient négligeables, ce qui limite la précision des spectres obtenus.

b) Le laser saphire-titane (Sa :Ti)

Un autre laser bien plus performant est à notre disposition. Il s'agit d'un laser Sa :Ti continu monomode en anneau. Il est pompé par un laser à argon ionisé. Le laser Sa :Ti est accordable, et permet de couvrir, en changeant les miroirs de la cavité, toute la plage 700-1000 nm. Ce laser permet d'atteindre les deux limites asymptotiques $6s+6p_{1/2}$ et $6s+6p_{3/2}$, avec un seul jeu de miroirs. La puissance du laser est d'environ 1,5 W. La largeur spectrale est de l'ordre du mégahertz.

L'intervalle spectral libre de la cavité est de 280 MHz. Un filtre de Lyot fixe grossièrement la longueur d'onde, et deux Fabry-Perot intra-cavité d'intervalles spectraux libres respectifs 225 GHz et 10 GHz permettent de sélectionner un mode. Une lame montée à Brewster est alors tournée par un dispositif électronique, ce qui permet de modifier en continu la longueur de la cavité ; on peut ainsi balayer la fréquence du laser en continu sur 1 cm^{-1} . L'ensemble du dispositif est asservi ; pour cela on injecte une partie du faisceau laser, dont la longueur est modulée à 500 kHz par une cale piézo-électrique, dans une cavité Fabry-Perot thermalisée.

Le laser Sa :Ti permet d'atteindre des intensités laser avoisinant 1 kW/cm^2 au centre du piège. Le signal de photoassociation sature généralement avant cette intensité laser. De ce fait, le réglage qui optimise le taux de photoassociation expérimental consiste à défocaliser légèrement le laser

Sa :Ti, de manière à couvrir une partie importante du piège magnéto-optique. La situation courante pour notre expérience est illustrée figure 1.20. Dans ces conditions, l'intensité de photoassociation est de l'ordre de 450 W/cm^2 . Une intensité typique de 200 W/cm^2 est idéale dans nos expériences de photoassociation. La DBR est donc légèrement insuffisante.

1.3.4 Photoassociation et Trap-Loss

Nous allons maintenant décrire les expériences que nous avons réalisées de manière à évaluer le taux de photoassociation, afin de valider le modèle perturbatif décrit ci-dessus. Les expériences que je décris ici sont détaillées dans une publication [10].

Une fois formées, les molécules photoassociées ne sont pas stables, et elles se désexcitent de manière radiative par émission spontanée. Le temps de vie typique des molécules photoassociées est de 15 ns. L'émission d'un photon par émission spontanée peut alors conduire à la production de molécules stables, dans un état de rotation-vibration de l'état fondamental singulet ou métastable triplet. Ce processus est généralement peu probable. Nous étudierons au chapitre 4 les circonstances qui peuvent le favoriser. Plus probable est la désexcitation provoquant la dissociation de la molécule excitée. Au cours du processus, l'énergie cinétique se conserve. Généralement, celle-ci est suffisante pour que les deux atomes produits par émission spontanée d'un photon soient trop chauds pour pouvoir rester piégés dans le piège magnéto-optique. On montre numériquement dans le cas du césium que, pour un décalage à la limite de dissociation $6s+6p_{3/2}$ supérieur à 1 cm^{-1} , toute molécule formée par photoassociation se désexcitera en donnant une paire d'atomes dont la vitesse relative est supérieure à la vitesse de capture (de l'ordre de 20 m/s) [8].

Suite aux deux processus décrits ci-dessus, le nombre d'atomes dans le piège baisse lorsqu'un laser de photoassociation excite des molécules. La mesure du nombre d'atomes dans le piège, observé en continu par une photodiode calibrée, constitue le premier dispositif de détection de la réaction de photoassociation. On parle de baisse de fluorescence du piège, ou, en anglais "trap-loss".

a) Taux de Photoassociation

Je vais ici décrire les expériences qui nous ont permis de caractériser le taux de photoassociation, c'est-à-dire de déterminer le nombre de molécules produites par photoassociation. Il s'agit d'une étude quantitative, qui nécessite une bonne connaissance de tous les paramètres expérimentaux : notamment, l'intensité laser, et la densité du piège magnéto-optique. Nous avons ensuite comparé le taux de photoassociation aux prédictions du modèle perturbatif de la réaction de photoassociation étudié dans l'annexe B.

La variation du nombre d'atomes dans le piège suite à la photoassociation s'écrit :

$$\left(\frac{dN}{dt}\right)_{PA} = - \int d^3 \vec{r} \Gamma_{PA}(\vec{r}) n(\vec{r}) = - \int d^3 \vec{r} n^2(\vec{r}) I_{PA}(\vec{r}) \Xi$$

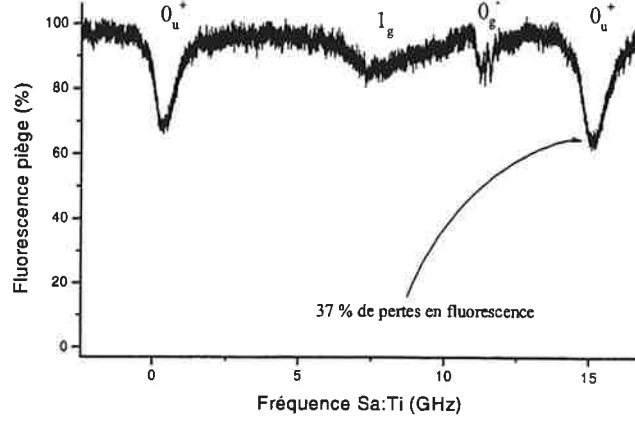


FIG. 1.21: *Spectre en pertes de piège.* La laser Sa :Ti (700 W/cm^2) est balayé sur 20 GHz environ $14,35 \text{ cm}^{-1}$ sous la limite de dissociation $6s+6p_{3/2}$. On observe plusieurs raies résonantes qui correspondent à l'excitation de différents états moléculaires. La raie signalée par une flèche correspond à un niveau ro-vibrationnel de l'état 0_u^+ . Notez que le processus de photoassociation est très efficace, et que plus du tiers des atomes du piège en sont expulsés suite à la réaction de photoassociation. Les états moléculaires observés dans ce spectre, attribués grâce à l'étude d'un spectre plus étendu présenté au chapitre 3, sont 0_u^+ , 1_g , et 0_g^-

où Ξ est donné par la formule 1.15. $n(r)$ est gaussien suivant les trois directions de l'espace. Le laser de photoassociation est gaussien suivant ses dimensions transverses. On suppose qu'il est suffisamment peu focalisé pour qu'on puisse le considérer comme un cylindre suivant son axe de propagation.

$$\begin{aligned} \left(\frac{dN}{dt}\right)_{PA} &= - \int_{-\infty}^{+\infty} d^3(xyz) n^2(0) I_{PA}(0) \exp(-(x^2 + y^2) \left(\frac{1}{\sigma_n^2} + \frac{2}{w_{PA}^2}\right)) \exp(-\frac{z^2}{\sigma_n^2}) \Xi \\ &= n^2 I_{PA} \left(\sqrt{\frac{\pi}{2}}\right)^{3/2} \sigma_n \frac{\sigma_n^2 w_{PA}^2}{2\sigma_n^2 + w_{PA}^2} \Xi \approx 1,2 \cdot 10^{-5} n^2 I_{PA} \Xi \end{aligned}$$

n et I_{PA} sont les valeurs au centre du piège. On a $\sigma_n = 300 \mu m$ (voir équation 1.7) et $w_{PA} = 300 \mu m$ (voir équation 1.19).

b) Baisse de fluorescence

Une photodiode collecte en permanence la fluorescence du piège. Celle-ci est proportionnelle au nombre d'atomes présents dans le piège. Si la fréquence d'un laser de photoassociation est balayée on observe une décroissance de la fluorescence du piège magnéto-optique dès que le laser est en résonance avec une raie de photoassociation. Un spectre de pertes de piège est présenté figure 1.21.

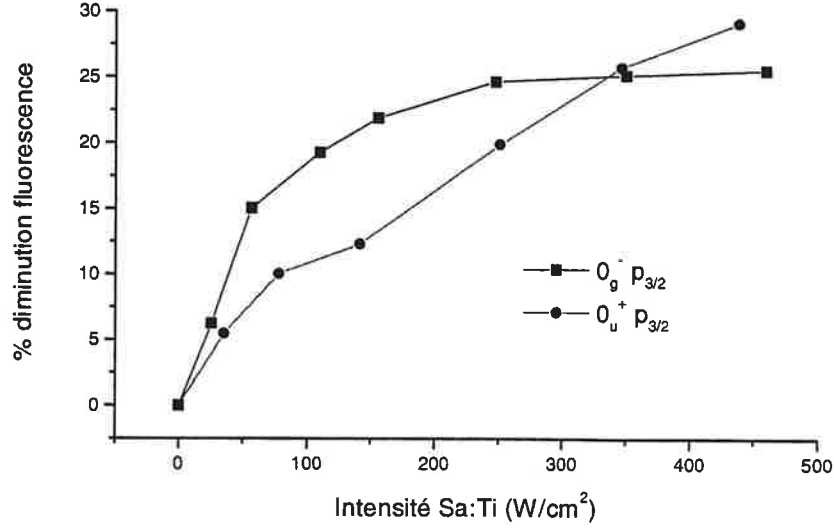


FIG. 1.22: Etude de l'efficacité de la photoassociation pour deux états électroniques (0_g^- et 0_u^+), en fonction de l'intensité du laser de photoassociation.

La baisse de fluorescence due à la réaction de photoassociation atteint ici 35 %. Celle-ci dépend bien évidemment de l'état considéré, et de l'intensité du laser de photoassociation. Comme on peut le voir sur la figure 1.22, on observe une saturation pour le signal de pertes par photoassociation de l'état 0_g^- sous $p_{3/2}$ pour une intensité de 200 W/cm^2 . Par contre, pour l'état 0_u^+ sous $p_{3/2}$, aucune saturation n'est observée, même pour une intensité laser de 450 W/cm^2 .

Notons que nous n'avons jamais observé dans le même temps d'élargissement des raies de photoassociation. Ce point pourrait indiquer que la saturation de la réaction de photoassociation n'est pas une saturation optique : on atteindrait la limite du modèle perturbatif simple de l'interaction entre le continuum et un état lié. A ce jour, aucune étude expérimentale systématique n'a été entreprise à ce sujet. On doit en particulier noter que les raies de photoassociation considérées ici sont déjà fortement élargies par la structure hyperfine, et par la structure rotationnelle.

c) Dynamique du piège

Le taux de pertes dans le piège peut être relié au taux de photoassociation. Pour comprendre la dynamique du piège, il faut tenir compte d'une part du chargement du piège en continu par refroidissement et piégeage, et d'autre part des pertes par collisions inélastiques.

Les équations de la dynamique du piège s'écrivent :

$$\frac{dN_{at}}{dt} = L - \gamma N_{at} - (\beta - \beta_{PA}^{eff}) \int_{vol} n_{at}^2(r) d^3r \quad (1.20)$$

où γ est le taux de pertes dû aux collisions avec les atomes du gaz résiduel; β est le taux

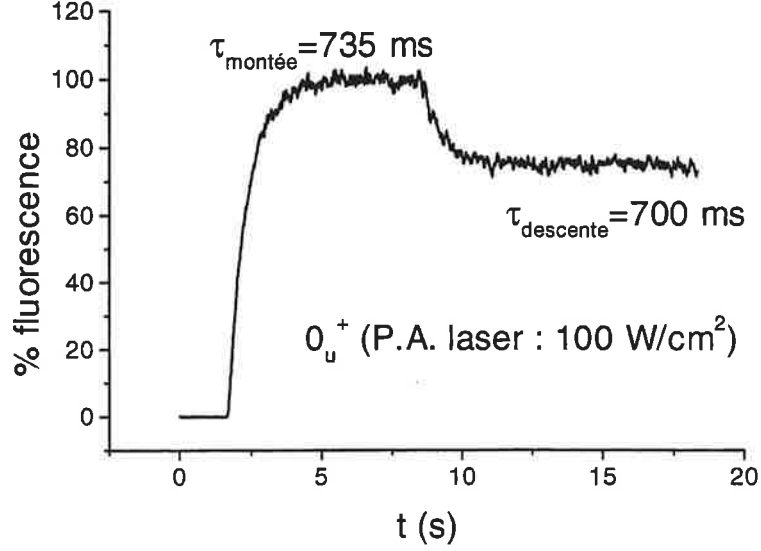


FIG. 1.23: *Etude de la dynamique du chargement du piège magnéto-optique et de la dynamique des pertes du piège. A $t=2s$, le piège magnéto-optique est allumé. A $t=9s$, le laser de photoassociation est branché. Dans cette expérience, le niveau 0_u^+ est le niveau situé à 15 GHz dans le spectre présenté figure 1.21.*

de pertes dû aux collisions binaires entre atomes froids en présence du rayonnement des lasers piège (par exemple collisions avec changement de structure fine), et β_{PA}^{eff} le taux de pertes dû à la photoassociation, multiplié par le facteur $\frac{w_{PA}^2}{2\sigma_n^2 + w_{PA}^2}$ (pour prendre en compte le recouvrement partiel du piège et du laser de photoassociation).

En supposant que la densité atomique est constante⁷ au cours du processus, on peut écrire $(\beta - \beta_{PA}^{eff}) \int_{vol} n_{at}^2(r) d^3r \simeq (\beta - \beta_{PA}^{eff}) \bar{n} N_{PA}$ où N_{PA} est le nombre d'atomes en présence du laser de PA. De même, $\beta \int_{vol} n_{at}^2(r) d^3r \simeq \beta \bar{n} N$, si bien que, en régime stationnaire, on a :

$$\frac{N_{PA}}{N} \simeq \frac{\gamma + \beta \bar{n}}{\gamma + (\beta + \beta_{PA}^{eff}) \bar{n}}$$

Par ailleurs, en régime dépendant du temps, l'intégration de l'équation 1.20 donne :

$$N(t) = \frac{L}{\gamma + \beta \bar{n}} (1 - \exp(-(\gamma + \beta \bar{n})t))$$

⁷Nous avons vérifié expérimentalement, en mesurant la densité atomique en présence d'un laser de photoassociation résonant et en l'absence d'un tel laser, que la densité du nuage d'atomes froids ne dépend pas de la présence ou non du laser de photoassociation : la baisse du nombre d'atomes dans le piège par pertes dues à la photoassociation se traduit par une taille plus petite du nuage, qui garde la même densité. Celle-ci, même en présence du laser de photoassociation reste probablement limitée par la diffusion multiple.

Le fit du temps de montée du piège lorsqu'on branche à $t=0$ les faisceaux du piège magnéto-optique (voir figure 1.23) permet de connaître $\gamma + \beta\bar{n}$; dans notre cas, le temps de montée est de 735 ms. La densité est par ailleurs connue, comme expliqué au paragraphe 1.1.3. On en déduit le taux de photoassociation expérimental β_{PA}

d) Résultats : comparaison théorie-expérience.

Pour les états 0_g^- et 0_u^+ respectivement, on obtient des valeurs théoriques du taux de photoassociation de 6,6 et 5,8 molécules par seconde [10]. Les valeurs expérimentales, en posant que le taux de formation de molécules excitées est la moitié du taux de pertes dans le piège, sont 2,4 molécules par seconde pour 0_g^- et 3,5 molécules par seconde pour 0_u^+ . Ces résultats sont donc en très bon accord, compte tenu de l'incertitude sur la densité du piège magnéto-optique.

Ceci signifie que le modèle perturbatif est un très bon modèle pour l'estimation du taux de photoassociation. Par ailleurs, notons que les taux obtenus sont relativement importants. Entre 5 et 10 cm^{-1} sous les limites de dissociation $6s+6p_{1/2}$ et $6s+6p_{3/2}$ les taux de formation de molécules par photoassociation varient entre 0,1 et 5 s^{-1} . Ceci signifie que, dans un piège magnéto-optique de 50 millions d'atomes, une dizaine de millions de molécules excitées par seconde peuvent être produites.

Les molécules électroniquement excitées ne sont pas directement détectées. Elles sont d'ailleurs peu nombreuses en permanence dans le piège, au maximum une dizaine. En effet, environ 15 ns après leur formation, elles subissent une désexcitation radiative. Il peut alors y avoir une certaine probabilité pour que ces molécules se désexcitent en se stabilisant dans l'état fondamental. Cette probabilité dépend du rapport de branchement à l'émission spontanée sur les états libres (dissociation) et liés (formation de molécules froides) : comme il a été évoqué en introduction, la formation de molécules froides est d'autant plus favorable que la probabilité à courte distance des molécules électroniquement excitées est grande. Pour détecter ces molécules, une détection ionique a été mise en place, que je vais décrire dans les prochains paragraphes.

1.3.5 Détection des molécules formées

La formation de molécules froides dans l'état fondamental, stable, a été observée pour la première fois au laboratoire Aimé Cotton [60]. Les molécules sont formées par désexcitation radiative des molécules excitées photoassociées. Nous décrivons ici le mécanisme de détection de ces molécules, sans plus de précision ni sur le mécanisme qui rend favorable leur production, ni sur la preuve qu'il s'agit bien de molécules froides et stables. Ces deux points seront détaillés au chapitre 4.

a) Processus REMPI

A la désexcitation par émission spontanée, il y a une certaine probabilité pour que les molécules photoassociées se stabilisent par émission spontanée en une molécule liée dans les potentiels triplet

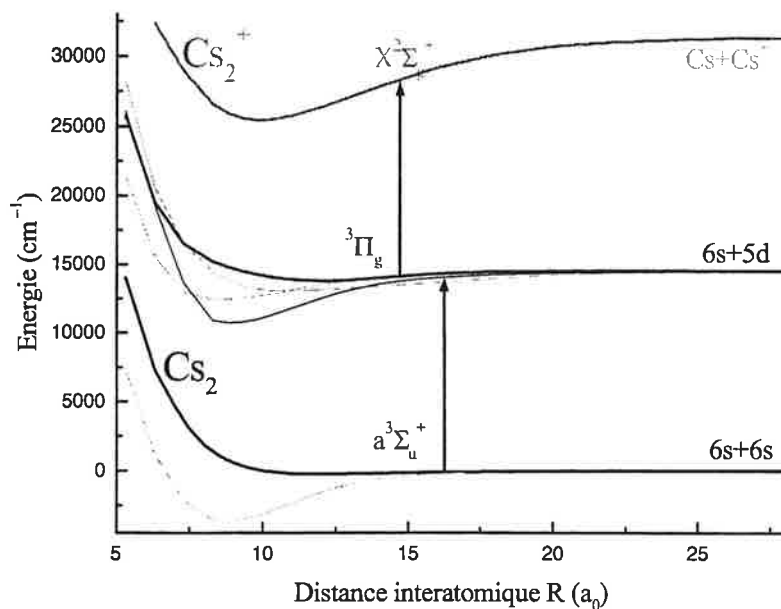


FIG. 1.24: Schéma de détection des molécules.

ou singulet. Une fois produites, les molécules froides peuvent être détectées par ionisation par un laser à colorant. Le schéma d'ionisation est un processus REMPI (Resonance Enhanced Multi-Photon Ionization), via des niveaux vibrationnels d'états moléculaires asymptotiquement corrélés aux limites $6s_{1/2} + 5d_{3/2,5/2}$ (voir figure 1.24).

Une analyse précise d'un spectre de photoionisation, réalisée en balayant la longueur d'onde du laser d'ionisation entre 13800 et 14500 cm^{-1} montre que l'ionisation des molécules se fait en deux étapes : les niveaux moléculaires relais sont des niveaux de rotation-vibration des états moléculaires $(2)^3\Pi_g(0_g^{-/+}, 1_g, \text{ et } 2_g)$, asymptotiquement reliés aux asymptotes $6s_{1/2} + 5d_{3/2,5/2}$.

Un second photon permet la transition vers des états liés de Cs_2^+ .

Notons que les états relais étant de symétrie g , ce processus ne permet que la détection des molécules dans l'état métastable triplet $^3\Sigma_u^+$. Nous avons ainsi pu détecter des molécules de l'état triplet, après désexcitation de molécules excitées photoassociées dans l'état 0_g^- . Nous avons cependant détecté des molécules produites par désexcitation radiative de l'état 1_u sous $6p_{3/2}$. Ces molécules se désexcitent juste sous la limite de dissociation du fondamental, région dans laquelle les interactions hyperfines brisent la symétrie u/g .

Par ailleurs, la transition dipolaire $6s \rightarrow 5d$ étant interdite, la détection est a priori peu efficace pour les tout derniers niveaux rovibrationnels de l'état triplet, qui sont de très longue élévation spatiale.

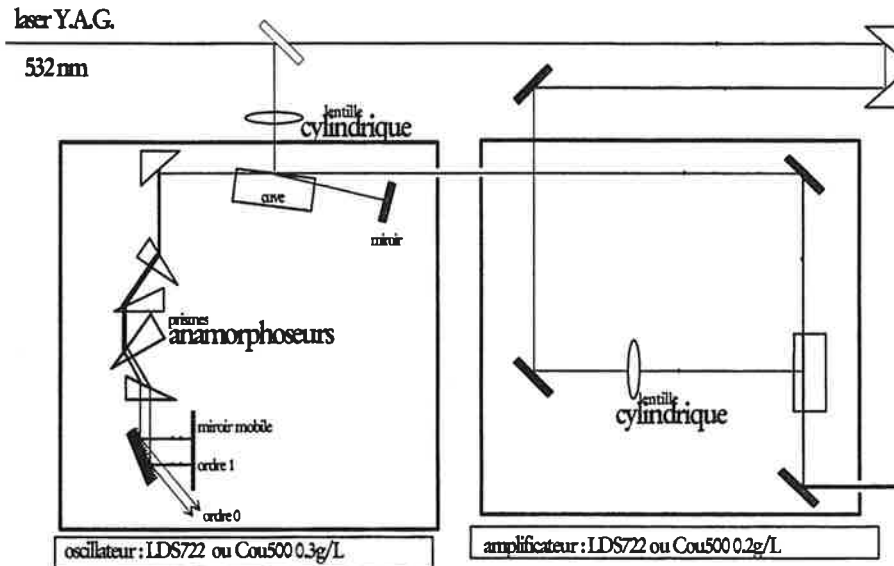


FIG. 1.25: Laser à colorant utilisé pour l'ionisation des molécules de Cs_2 . Le laser se compose d'une cavité oscillatrice, et d'une cavité amplificatrice, pompées par la seconde harmonique d'un laser YAG. Le laser utilisé pour la formation des atomes de Rydberg depuis $6p_{3/2}$ est analogue : la cavité oscillatrice est identique ; il y a deux étages d'amplification au lieu d'un seul. Les cuves à colorant sont pompées par la troisième harmonique du laser YAG (355 nm).

b) YAG pulsé ; le laser à colorant

Le laser utilisé pour l'ionisation décrite ci-dessus est un laser à colorant pulsé, complètement analogue au laser décrit au paragraphe 1.2.2 : le laser pompe est un laser Nd :YAG doublé en fréquence (532 nm, durée d'impulsion 7ns, 300 mJ/pulse environ). La cavité laser, brièvement décrite paragraphe 1.2.2, est dessinée figure 1.25. Le colorant utilisé pour la photoionisation des molécules est le LDS 722. La longueur d'onde est 716 nm. L'énergie utilisée pour ioniser les molécules est de 1 mJ/pulse environ.

La largeur spectrale du laser à colorant est mesurée en utilisant une cavité Fabry-Perot d'intervalle spectral libre $0,8545 \text{ cm}^{-1}$. Elle est de $0,4 \text{ cm}^{-1}$ environ.

c) Galettes de micro-canaux

Une paire de grilles entoure le piège magnéto-optique. Y est appliquée une tension continue de 1,7 kV. Une fois les ions (Cs^+ ou Cs_2^+) formés, ils sont accélérés par le champ des grilles vers une paire de galettes micro-canaux en série, en passant par une zone de temps de vol de 6 cm où ne règne aucun champ électrique. Le signal résolu en temps en sortie des galettes micro-canaux est amplifié et mesuré par un oscilloscope.

d) Box-car

Le signal résolu en temps est amplifié et observé à l'oscilloscope. La zone de temps de vol agit comme un spectromètre de masse : on observe la présence d'ions Cs^+ , et, $\sqrt{2}$ fois plus tard, la présence d'ions Cs_2^+ . On peut enregistrer sur un ordinateur les signaux atomiques Cs^+ et moléculaires Cs_2^+ indépendamment, grâce à un intégrateur à portes (box car).

La possibilité de détecter les ions Cs_2^+ est la grande force de l'expérience de photoassociation du laboratoire Aimé Cotton. C'est elle qui a rendu possible la mise en évidence d'une production importante de molécules froides par désexcitation radiatives des molécules photoassociées. Notons cependant que des ions Cs_2^+ ne sont pas toujours détectés : par exemple, pour l'état 0_u^+ , lors de l'expérience relatée sur la figure 1.21, dans le cas de l'état 0_u^+ aucun ion moléculaire n'a pu être détecté lors des expériences de photoassociation, bien que 37 % des atomes du piège magnéto-optique ont été photoassociés. Ceci est dû à la faible probabilité des molécules excitées de se désexciter dans le fondamental.

Par contre, en particulier lors de la photoassociation des états 0_g^- et 1_u corrélés à la limite de dissociation $6s+6p_{3/2}$, on peut détecter jusqu'à quelques centaines d'ions à chaque impulsion du laser à colorant.

e) Efficacité de la détection

La première étape du processus REMPI est fortement saturée, ce qui se traduit par un élargissement des raies de photoionisation. Cependant, en prenant en compte l'ensemble des niveaux peuplés dans le fondamental, et les facteurs de Franck-Condon, on estime l'efficacité de l'ionisation des molécules par le processus à deux photons à 10 %.

L'efficacité de recollection des ions dans les galettes, déterminée par le coefficient de transparence aux ions des grilles accélératrices, est de l'ordre de 90 %. L'efficacité des galettes microcanaux est de l'ordre de 30 %.

Au total, on estime l'efficacité de la détection à environ 3 %. Le seuil de détection pour les molécules froides est de l'ordre de 100.

Chapitre 2

Evolution spontanée d'un gaz de Rydberg gelé vers un plasma ultra-froid

Les expériences dont je parle ici ont été réalisées en collaboration avec l'équipe de Thomas F. Gallagher à l'Université de Virginie. Elles portent sur l'observation de l'autoionisation d'un gaz dense d'atomes de Rydberg et la formation d'un plasma ultra-froid. Ces expériences ont été réalisées sur deux dispositifs indépendants, un piège magnéto-optique de rubidium et un piège magnéto-optique de césium - décrit au chapitre 1. J'ai effectué les expériences concernant l'atome de césium au laboratoire Aimé Cotton ; j'ai aussi participé aux expériences sur le rubidium au cours d'un séjour d'un mois et demi à l'université de Virginie. Les deux dispositifs utilisent essentiellement les mêmes techniques : on excite les atomes de Rydberg à partir de l'état $6p$ du césium ou $5p$ du rubidium, grâce à un laser à colorant pulsé ; on obtient ainsi un échantillon d'atomes de Rydberg froids, dont la densité peut atteindre 10^{10} cm^{-3} . Les deux expériences sont cependant assez complémentaires. A l'Université de Virginie, a été développé un programme de traitement de données qui permet le tri automatique des données obtenues suivant le nombre total d'atomes de Rydberg excités. Ceci permet en particulier l'étude de l'évolution temporelle du gaz de Rydberg, en maintenant constant le nombre d'atomes considérés. L'avantage de l'expérience du laboratoire Aimé Cotton réside principalement dans la possibilité de détecter à la fois les ions (positifs) et les électrons.

Les atomes de Rydberg excités à partir du piège magnéto-optique ont une vitesse telle (10 cm/s) qu'on peut les considérer comme immobiles à l'échelle de leur durée de vie ($10 \mu\text{s}$) ; le déplacement de l'atome ($1 \mu\text{m}$) est alors en effet très inférieur à la distance interatomique moyenne ($10 \mu\text{m}$). Il s'agit donc d'un système très particulier, où les atomes interagissent fortement du fait de leur grand dipôle, sans bouger car ils sont très froids. On parle d'un gaz de Rydberg gelé. Des effets à N-corps ont été mis en évidence au sein d'un tel gaz au cours de la thèse d'Igor Mourachko ([24], [21]). Ce système ressemble par certains aspects à un solide amorphe.

Les études que je résume dans ce chapitre se situent dans le prolongement de cette thématique. Cependant, les états de Rydberg excités correspondent à des nombres quantiques principaux plus élevés. L'objet de ce chapitre est la démonstration et l'étude de l'évolution spontanée d'un gaz

froid d'atomes de Rydberg gelés vers un plasma ultra-froid, qui est un système où la matière adopte des comportements collectifs (qu'on peut décrire par des équations hydrodynamiques).

Le fait expérimental majeur décrit dans ce chapitre est le suivant. Pour une densité initiale d'atomes de Rydberg suffisamment élevée, et pour des atomes de nombre quantique principal suffisamment grand (typiquement, $n > 30$), on observe après quelques microsecondes une brusque ionisation de l'ensemble des atomes de Rydberg. Bien qu'à l'origine liés par plusieurs dizaines de cm^{-1} , ce qui correspond à un seuil d'ionisation par champ électrique de plus de 100 V/cm , les électrons sont alors extraits du système par des champs électriques de quelques V/cm seulement. On peut détecter les électrons ainsi créés pendant plus de $30 \mu\text{s}$, ce qui indique que le gaz d'atomes de Rydberg s'est transformé en un plasma approximativement neutre. Les études que nous avons menées portent sur la caractérisation des conditions et des mécanismes de formation de ce plasma, et elles ont donné lieu à une publication [17]. Cette publication a été commentée dans la revue *Physical Review Focus* [25], et dans la revue *Physics World* [26].

On peut rapprocher cette observation de celle portant sur l'ionisation d'un gaz dense d'atomes de Rydberg en jet atomique [15]. Dans cette référence cependant, le système étudié est bien plus chaud (il s'agit de collisions thermiques), et les densités en atomes de Rydberg bien plus élevées (typiquement 10^{12} à 10^{13} cm^{-3}). Le temps d'évolution du système est alors inférieur à la microseconde. La durée de vie du plasma obtenu reste faible à cause des températures ioniques et électroniques. Dans notre cas, les densités vont de 10^8 à 10^{10} cm^{-3} . La température du système est très froide, si bien qu'on peut piéger les électrons arrachés aux atomes de Rydberg pendant plusieurs dizaines de microsecondes. Le système obtenu ici est un plasma presque neutre, de longue durée de vie.

Dans notre expérience, la température électronique finale est de l'ordre d'une fraction de l'énergie de liaison initiale de l'électron dans l'atome de Rydberg, c'est-à-dire de l'ordre de quelques Kelvin. Une température plus élevée conduirait à l'échappement des électrons. La température ionique initiale est égale à la température du piège magnéto-optique, de l'ordre de $130 \mu\text{K}$. On peut ainsi qualifier le plasma obtenu d'ultra-froid, par comparaison avec les températures des plasmas froids "traditionnels", qui sont très supérieures à 300K . De tels plasmas sont des objets expérimentaux très nouveaux. A ma connaissance, seules les références [18], [16] et [23] ont présenté une étude expérimentale de ce type de plasmas. Les auteurs de ces articles ont mis tout d'abord en évidence la création d'un plasma ultrafroid [18]. Les atomes sont ionisés par un laser pulsé, à partir d'un piège magnéto-optique de Xenon. La température ionique est de l'ordre de $10 \mu\text{K}$, et la température électronique peut descendre jusqu'à 100 mK . Les auteurs ont ensuite étudié l'expansion du plasma [16], et montré que les modèles hydrodynamiques interprétant l'expansion du plasma par l'effet de la pression du gaz électronique échouent à décrire la rapidité de l'expansion observée. Ceci démontre des effets de corrélation forte en position entre ions et électrons. Dans un récent article [23], les auteurs montrent un taux de recombinaison (apparition d'atomes de Rydberg dans le plasma en expansion) important. Un tel taux, qui tend à augmenter lorsque la température électronique diminue, est en contradiction avec les modèles existants. Des

effets à N corps et de corrélations semblent prépondérants pour expliquer ces résultats. Les études évoquées ici sont donc un champ nouveau de physique, et sont sans doute amenées à être suivies et approfondies dans les mois qui viennent.

Jusqu'à présent, la température des plasmas existant pouvait varier entre 300 et 10^{16} K. Produire des plasmas à des températures de l'ordre du micro-Kelvin permet donc d'explorer des régions inconnues dans la physique des plasmas. Sur la figure 2.1 sont représentés dans un diagramme densité-température l'ensemble des types de plasmas existants, d'après la référence [20]. Les plasmas créés à partir de pièges magnéto-optiques sortent complètement de ce graphe, puisque la température électronique y est inférieure au Kelvin. De tels plasmas ultra-froids doivent avoir des propriétés nouvelles, et sont clairement situés dans la partie "plasma corrélés".

Dans un premier temps, je rappellerai quelques notions élémentaires concernant la physique des plasmas, en m'attachant principalement à introduire les notions utiles à la description de notre expérience. Puis, je détaillerai les données expérimentales principales, concernant l'évolution du gaz de Rydberg gelé vers un plasma. Ces données font apparaître un seuil de déclenchement de l'ionisation en avalanche, seuil qui dépend de la densité du gaz de Rydberg, et de leur nombre quantique principal. Puis je m'attacherai à comprendre ce qui permet la transformation du gaz de Rydberg en plasma. Je montrerai que, suite à l'ionisation de quelques atomes de Rydberg, à cause en particulier de l'absorption de photons du rayonnement du corps noir, il se forme une charge d'espace au sein du gaz de Rydberg gelé. Lorsque le nombre d'ions atteint un certain seuil, la charge d'espace est responsable du piégeage d'électrons produits par ionisation des atomes de Rydberg. Je décrirai ensuite comment les collisions entre électrons et atomes de Rydberg peuvent expliquer l'évolution de l'ensemble du système vers un plasma. Pour confirmer cette hypothèse, nous avons réalisé des expériences, consistant à accélérer les électrons en utilisant des champs radiofréquence de manière à augmenter le taux de collision entre électrons et atomes de Rydberg. Le modèle que nous proposons ici semble bien décrire nos observations. Je conclurai cependant en signalant l'ensemble des données encore non complètement expliquées, et les hypothèses formulées pour des tentatives d'explication.

2.1 Notions de physique des plasmas

Au cours des expériences que nous avons menées, nous n'avons pas, focalisé notre attention sur les propriétés du plasma formé. Nous nous sommes en effet attachés à étudier et comprendre les causes de l'évolution d'un gaz de Rydberg froids vers un plasma quasi-neutre, plutôt que les propriétés du plasma obtenu. On pourra consulter la référence [20] pour une introduction approfondie au domaine de la physique des plasmas. Ici je détaille les notions qui seront utilisées dans le cadre de nos études. Nous avons affaire à un plasma, dont la température ionique est de l'ordre de la température du piège magnéto-optique, et dont la température électronique est elle aussi très froide, comme nous le verrons.

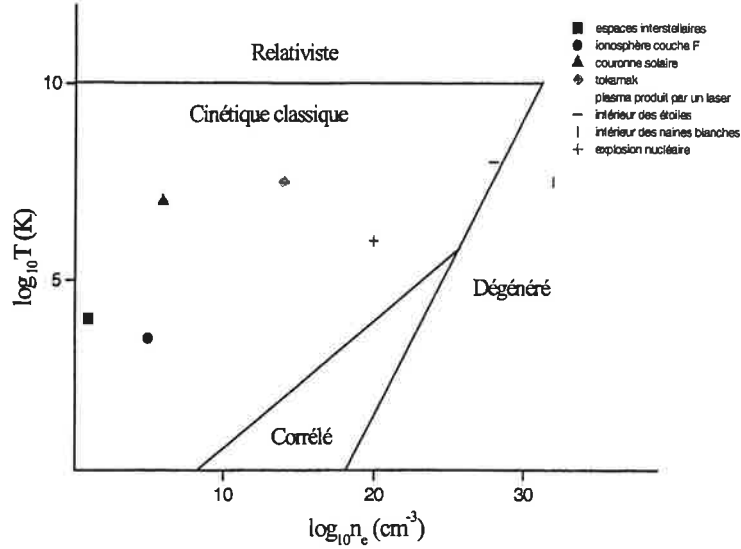


FIG. 2.1: *Diagramme température-densité des plasmas connus, d'après la référence [20].*

2.1.1 Définition

Les plasmas auxquels nous allons nous intéresser sont des plasmas neutres ou presque neutres. De tels systèmes sont des gaz ionisés, où densité de charges négatives et densité de charges positives sont identiques (ou presque). Dans notre cas, chaque ion a une charge élémentaire $+e$, si bien que la densité ionique est voisine de la densité électronique.

2.1.2 Longueur de Debye

Au sein du plasma, la neutralité est garantie par le phénomène d'écrantage : toute accumulation de charge locale est compensée par un mouvement collectif des électrons. Ainsi, une charge sera écrantée sur une distance appelée longueur de Debye λ_D .

$$\lambda_D = \left(\frac{\varepsilon_0 k_B T_e}{e^2 n_e} \right)^{1/2} \quad (2.1)$$

où T_e et n_e sont la température et la densité du nuage électronique. Pour $T_e = 100 \text{ mK}$ (température électronique de l'ordre de celles annoncées dans les références [18] et [16]), et pour $n_e = 10^8 \text{ cm}^{-3}$, la longueur de Debye est d'environ $3 \mu\text{m}$. Notons que dans nos expériences, c'est inférieur à la distance entre particules (de l'ordre de $20 \mu\text{m}$). Dans un tel milieu, un électron ne voit aucune charge autour de lui. Il ne ressent aucune interaction. Comme on peut le voir sur la figure 2.2, pour une densité de charges donnée, cette situation ne se rencontre que pour des plasmas dont la température électronique est suffisamment froide.

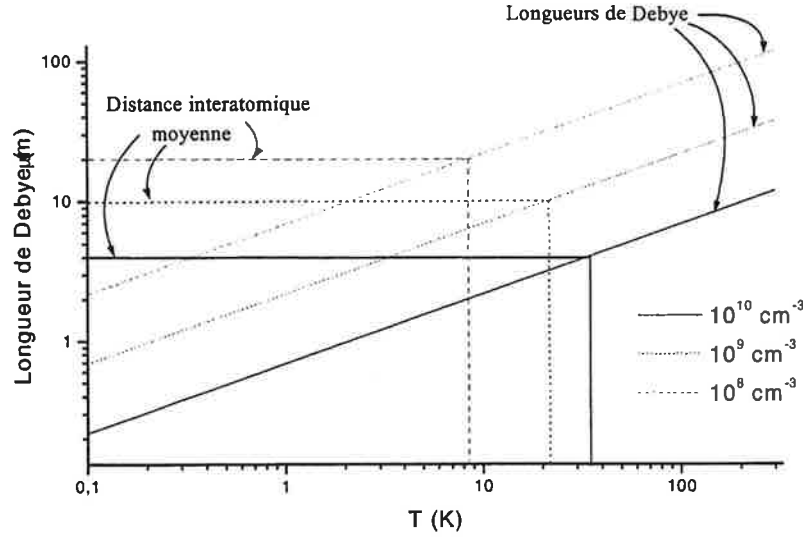


FIG. 2.2: Variation de la longueur de Debye en fonction de la température pour trois différentes densités. Les droites horizontales représentent, pour chaque densité (10^{10} , 10^9 , et 10^8 cm^{-3}), la distance moyenne entre particules. On voit ainsi par exemple que pour une température électronique inférieure à 20 K et une densité de 10^9 cm^{-3} , la longueur de Debye est légèrement inférieure à la distance moyenne entre particules.

Aux frontières du plasma la densité électronique tombe à zéro sur une distance égale à la longueur de Debye.

On peut déterminer de façon simple l'expression de la longueur de Debye donnée en 2.1. Supposons la présence d'un ion en $r=0$. Cet ion repousse les autres ions et attire les électrons. Il en résulte une perturbation de la densité électronique locale. On note Φ le potentiel ressenti par l'électron au voisinage de l'ion.

Si on suppose le plasma à l'équilibre thermodynamique, la densité électronique locale vaut :

$$n_e(r) = n_{e0} \exp\left(-\frac{e\Phi(r)}{k_B T_e}\right) \quad (2.2)$$

D'autre part, Φ suit la loi de Poisson,

$$\nabla^2 \Phi = -\frac{(n_e(r) - n_{e0})e}{\epsilon_0}$$

Si on reste dans le cas où la perturbation locale de la densité électronique est faible, ceci s'écrit, en développant l'exponentielle de l'équation 2.2,

$$\nabla^2 \Phi = \frac{\Phi}{\lambda_D^2}$$

où λ_D est donnée dans l'équation 2.1. On en déduit que le potentiel peut s'écrire :

$$\Phi = \frac{e}{4\pi\epsilon_0 r} \exp(-r/\lambda_D)$$

A des distances supérieures à la longueur de Debye, le potentiel de l'ion est écranté. A des distances courtes devant λ_D , les électrons voient la charge de l'ion nu, c'est-à-dire $\frac{e}{4\pi\epsilon_0 r}$. La longueur de Debye est donc la longueur qui caractérise, au sein du plasma, l'apparition de phénomènes collectifs. La longueur de Debye dans les plasmas ultra-froids est inférieure à la distance entre particules, ce qui rend ces milieux très particuliers.

2.1.3 Fréquence plasma

La seconde grandeur fondamentale caractérisant un plasma est la fréquence plasma électronique. Si on suppose que l'on crée une accumulation de charge, par exemple en déplaçant des électrons au sein du plasma, ceux-ci ressentent une force de rappel ; il en résulte une oscillation des électrons du plasma à une pulsation appelée pulsation plasma électronique :

$$\omega_{pe} = \left(\frac{n_{e0} e^2}{m_e \epsilon_0} \right)^{1/2}$$

Pour une densité électronique de 10^8 cm^{-3} , la fréquence plasma électronique, $\omega_{pe}/2\pi$ est de l'ordre de 100 MHz (voir figure 2.3). Les ions sont généralement supposés immobiles.

Il est important de noter que la fréquence de plasma électronique ne dépend que de la densité électronique. Elle constitue par conséquent un outil utile à la détermination de la densité d'un plasma. Ceci a par exemple été utilisé dans la référence [16] pour montrer l'expansion d'un plasma ultra-froid : un champ radiofréquence de faible amplitude est appliqué sur le plasma en expansion. Lorsque la fréquence de la radiofréquence est résonante avec la fréquence plasma électronique, un mouvement collectif des électrons est engendré dans le plasma, qui augmente l'énergie du plasma. Il s'en suit une évaporation de certains électrons, qui sont alors détectés. Tracer le temps auquel ces électrons sont détectés en fonction de la fréquence de la radiofréquence appliquée permet de déduire l'évolution de la densité électronique en fonction du temps.

2.1.4 Energie d'un plasma

L'énergie d'interaction d'un électron avec l'ensemble des autres électrons d'un plasma vaut

$$\int_0^R \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 r} n_{e0} 4\pi r^2 dr$$

Cette intégrale diverge lorsque le plasma est de taille R infinie. L'intégrale est cependant compensée par l'énergie d'interaction avec tous les ions, qui est exactement opposée. En réalité,

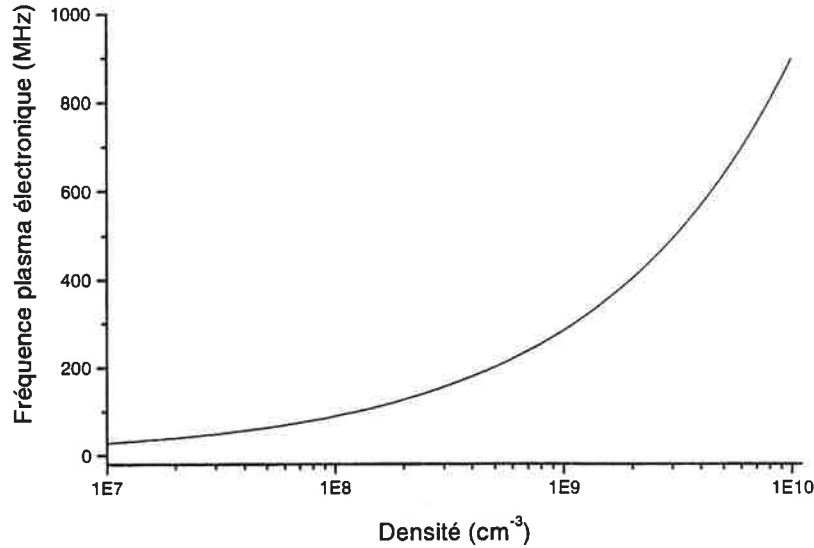


FIG. 2.3: Fréquence plasma électronique en fonction de la densité d'électrons. Les fréquences plasma électroniques pour les densités de nos expériences valent typiquement entre 100 MHz et 1 GHz.

l'énergie totale, qui est l'énergie d'un plasma, n'est pas nulle. En effet, un calcul précis nécessite de prendre en considération les corrélations en position des ions et des électrons, évoquées au paragraphe 2.1.2. L'énergie par unité de volume d'un plasma vaut alors :

$$U_{corr} = -\frac{n_e e^2}{4\pi\epsilon_0\lambda_D} \quad (2.3)$$

Il s'agit ici de ce qu'on appelle l'énergie de corrélation d'un plasma. Le calcul de cette énergie sort du cadre de ce manuscrit (on pourra lire par exemple [20]). Notons que le résultat est assez naturel, puisque cette formule correspond à l'énergie volumique d'un gaz de n_e particules par unité de volume, qui chacune ressent un champ moyen, qui est le champ coulombien pris à la distance d'écrantage de Debye.

Il convient aussi de prendre en considération d'énergie thermique par unité de volume des ions et des électrons. A l'équilibre thermique (températures électronique et ionique sont les mêmes), on écrit :

$$U_{th} = \frac{3}{2}k_B(n_e T_e + n_i T_i) \approx \frac{3}{2}k_B T_e (n_e + n_i)$$

où $T_{i,e}$ est la température des ions et des électrons. Notons dès à présent que dans notre cas, la température des électrons n'est pas identique à celle des ions (on a $T_e \gg T_i$).

2.1.5 Plasma fortement corrélé

Les plasmas que nous allons considérer sont des plasmas ultra-froids. Pour ces plasmas la longueur de Debye est inférieure à la distance moyenne entre particules. Alors, il est immédiat de montrer que :

$$\Gamma_e = \frac{1}{k_B T_e} \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 a} > 1$$

Γ_e est appelé le paramètre de corrélation. $a = \left(\frac{3}{4\pi n}\right)^{1/3}$ est la distance moyenne entre particules. Un plasma corrélé est un plasma pour lequel l'énergie de Coulomb moyenne entre les particules est supérieure à l'énergie thermique. Ces plasmas ont des propriétés particulières. En particulier, les corrélations étant fortes, le calcul de l'énergie de corrélation donnée au paragraphe 2.1.4, qui repose sur l'hypothèse que les variations par rapport à la densité électronique moyenne sont faibles, n'est plus valable. Comme je l'ai déjà évoqué, on s'attend au sein d'un plasma fortement corrélé à voir apparaître des effets à N corps.

Notons que des plasmas non neutres fortement corrélés ont déjà été observés [27]. Ces expériences utilisent des pièges à ions (Penning ou Paul), refroidis par laser jusqu'à des températures de quelques dizaines de mK. Des phénomènes de cristallisation et de transition de phase entre phase liquide et phase solide y ont été observés [28][29]. A ma connaissance, seules les références [18], [16] et [23] ont présenté une étude expérimentale de ce type de plasmas, dans le cas de plasmas neutres.

L'étude expérimentale que je résume ici, si elle conduit elle aussi à la formation d'un plasma ultra-froid neutre, se trouve à la marge de ces études. Nous avons en effet focalisé notre attention sur le mécanisme de formation spontanée du plasma, à partir d'atomes de Rydberg. Ce phénomène est par certains égards le processus inverse à celui décrit dans [23], qui décrit la recombinaison d'atomes de Rydberg dans un plasma ultra-froid en expansion.

2.2 Evolution spontanée d'un gaz de Rydberg gelé vers un plasma ultra-froid

Nous abordons avec ce paragraphe ce qui fait le coeur de ce chapitre. Y sont synthétisées les données qui démontrent la transformation spontanée et rapide d'un gaz de Rydberg gelé en un plasma. Comme nous l'avons décrit au chapitre précédent, nous préparons, grâce à un laser à colorant pulsé, les atomes de Rydberg dans un état déterminé, que nous choisissons entre $n=30$ et $n=50$. Dans nos conditions expérimentales, nous sommes alors en présence d'un gaz d'environ 10^6 atomes de Rydberg ultra-froids, dont la densité peut atteindre 10^{10} cm^{-3} . Les atomes de Rydberg ont la température du piège magnéto-optique dans lequel ils sont formés. Notons cependant que la même impulsion du laser à colorant excite aussi des atomes non refroidis dans le piège magnéto-optique (c'est-à-dire des atomes du gaz résiduel), si bien qu'après l'excitation, environ 1% des

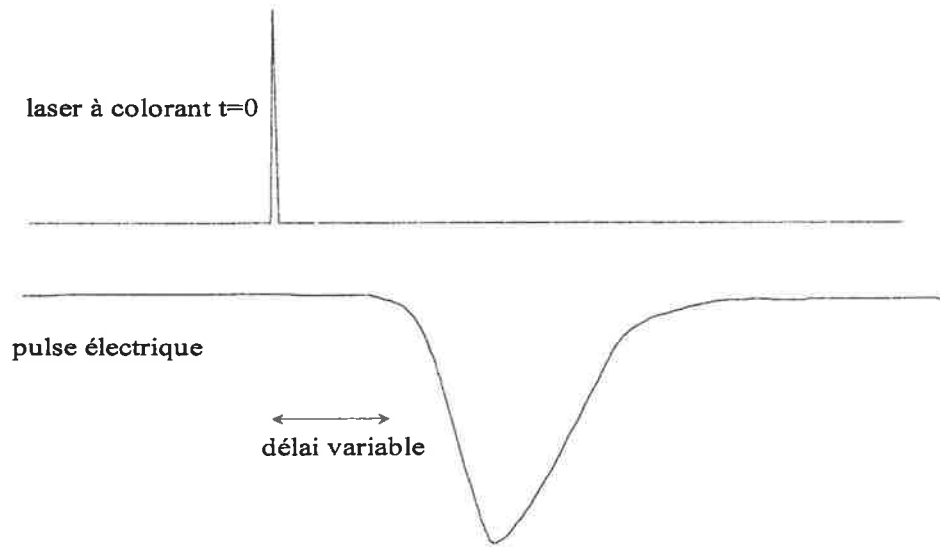


FIG. 2.4: Schéma temporel typique des expériences. Le laser à colorant excite les atomes dans des états de Rydberg. Puis une rampe de champ électrique, positive ou négative, dont le temps de montée est de l'ordre de la microseconde, ionise et accélère les atomes de Rydberg vers le détecteur.

atomes de Rydberg sont à température ambiante (300 K). Quelques microsecondes plus tard, ces atomes de Rydberg "chauds" ont cependant quitté le piège.

Pour analyser l'évolution du gaz de Rydberg, nous appliquons une rampe de champ électrique, après un délai choisi. Le champ électrique atteint les seuils d'ionisation successifs des différents nombres quantiques principaux. Les atomes ionisés par le champ électrique sont accélérés (par le même champ) vers les galettes micro-canaux. Ceci permet la détection sélective des atomes de Rydberg de différents nombres quantiques principaux. Cette détection se fait après un délai choisi. Dans nos expériences, on laisse le gaz de Rydberg évoluer pendant quelques microsecondes avant d'appliquer la rampe de champ électrique (voir figure 2.4).

Un certain temps après l'excitation des atomes de Rydberg, nous observons, pour des densités suffisamment élevées, l'ionisation rapide de l'ensemble des atomes de Rydberg. Les ions obtenus sont accélérés vers le détecteur et le signal résolu en temps est observé sur un oscilloscope, comme le montre la figure 2.5. Ce signal fait apparaître deux pics. Le premier pic correspond aux ions (seuil d'ionisation nul). Le second pic correspond à l'ionisation par champ des atomes de Rydberg.

Comme on le voit sur la figure 2.5, si on applique la rampe de champ électrique juste après la formation des atomes de Rydberg, on ne détecte presque aucun ion. Par contre, si on applique la rampe après avoir laissé le système évoluer, typiquement pendant $10 \mu s$, tous les atomes de Rydberg se sont transformés en ions. Ceci correspond, comme nous allons le voir, à la transformation du gaz d'atomes de Rydberg gelé en plasma. Un fait très important à noter dès maintenant, est qu'on n'a jamais détecté d'atomes de Rydberg dans des niveaux autres que celui initialement peuplé.

Ce phénomène de formation de plasma retardé, est ensuite extrêmement rapide (quelques

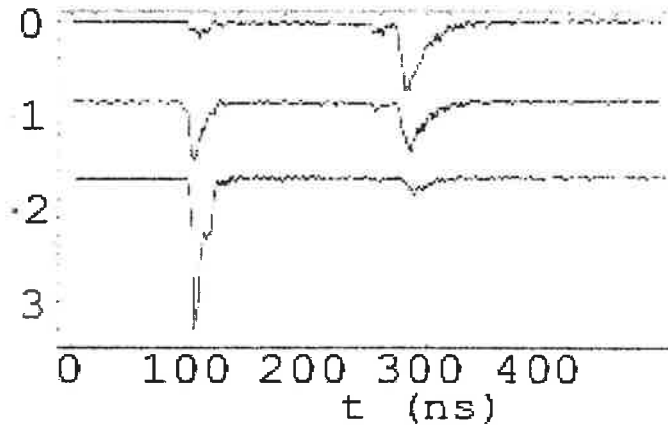


FIG. 2.5: Signal observé sur l'oscilloscope. La trace du haut correspond à un délai de $2\mu s$ entre la formation des atomes de Rydberg et la détection. La trace du bas, à un délai de $12\mu s$. Deux pics apparaissent sur ces graphes. Le premier correspond à des ions. Le second aux atomes de Rydberg excités (ici Rb, $36d$). On n'observe jamais de peuplement d'autres états de Rydberg.

microsecondes). Il est aussi extrêmement efficace puisque tous les atomes de Rydberg finissent par être ionisés.

2.2.1 Etude en fonction de la densité d'atomes

Un premier point important à noter est que l'ionisation de l'ensemble du gaz de Rydberg ne se produit que pour une densité d'atomes suffisamment élevée. L'excitation des atomes depuis l'état p est réalisée par un laser à colorant pulsé. Comme nous l'avons expliqué au chapitre 1, le nombre d'atomes de Rydberg formés peut atteindre 10^6 par impulsion laser. Ceci signifie que la densité maximale en atomes de Rydberg peut atteindre 10^{10} cm^{-3} . Les densités courantes sont cependant plus proches de 10^9 cm^{-3} .

Le laser à colorant utilisé pour la production des atomes de Rydberg a une largeur spectrale d'environ 0.3 cm^{-1} . Plusieurs modes peuvent laser à l'intérieur de cette enveloppe. La largeur naturelle des atomes de Rydberg étant de l'ordre de 100 kHz , les fluctuations au coup par coup en fréquence du laser engendrent de larges variations dans le nombre d'atomes de Rydberg effectivement excités lors de l'impulsion laser, et donc dans leur densité. Ce sont ces variations au coup par coup que nous avons utilisées pour étudier la dépendance du signal étudié en fonction de la densité en atomes de Rydberg : l'analyse, à un délai donné, du signal ionique en fonction de la densité atomique se fait en traçant le nombre d'ions formés en fonction de la somme des signaux atomique et ionique.

Nous avons vérifié que la moyenne de la somme du nombre d'atomes et d'ions détectés est

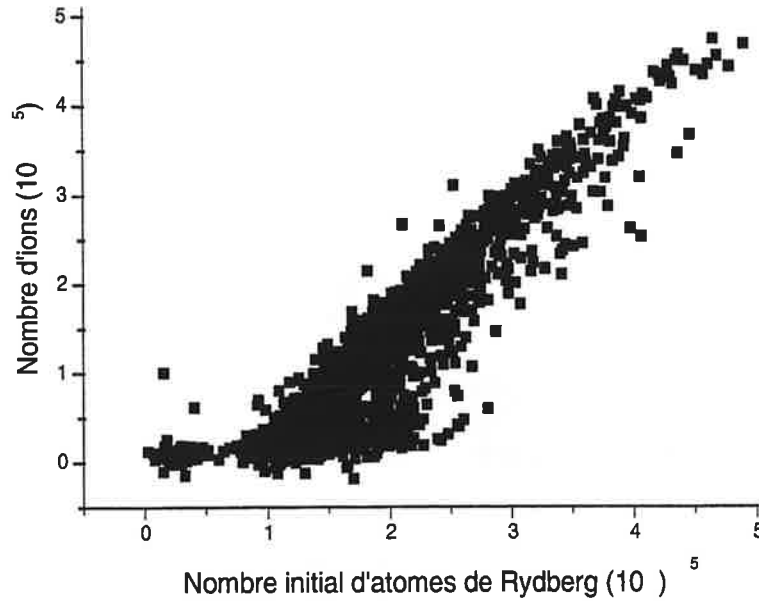


FIG. 2.6: Signal ionique obtenu $9 \mu\text{s}$ après excitation de l'état $31d$ du césium, en fonction du nombre d'atomes excités. Cette figure met en évidence l'existence d'un seuil en densité pour l'ionisation des atomes de Rydberg. 10^5 atomes de Rydberg correspondent à une densité de l'ordre de 10^9 cm^{-3} .

constante pour des délais courts devant durée de vie des atomes de Rydberg. Il est alors légitime d'affirmer que la somme des signaux atomique et ionique à un temps donné correspond au nombre initial d'atomes de Rydberg. Par ailleurs, le volume d'excitation des atomes de Rydberg étant constant, nous supposons que les variations de la densité du gaz de Rydberg gelé sont proportionnelles aux variations dans le nombre d'atomes de Rydberg formés. On retiendra que 10^5 atomes de Rydberg correspondent à une densité de 10^9 cm^{-3} .

Le fait que la somme des signaux ioniques et atomiques soit constante en moyenne montre que les atomes de Rydberg se convertissent en ions. Cela signifie qu'aucun atome de Rydberg dans d'autres niveaux électroniques n'est produit au cours de l'évolution du système. Ceci n'a pu être vérifié que pour les nombres quantiques principaux supérieurs à 21 (dans notre expérience, on ne peut pas ioniser les niveaux plus profonds par champ électrique).

Le fait important, en ce qui concerne l'étude de l'ionisation en fonction de la densité d'atomes de Rydberg, est le suivant : l'analyse des variations du signal ionique en fonction de la densité atomique initiale, à un délai donné, fait apparaître un seuil en densité pour l'apparition du plasma, comme le montre la figure 2.6. Pour les faibles densités, on ne détecte que peu d'ions. Le nombre d'ions détecté est approximativement proportionnel à la densité initiale. La pente du signal est de $5 \cdot 10^{-2}$ environ (voir inset de la figure 2.7). Pour une densité initiale de quelques 10^8 cm^{-3} (c'est-à-dire quelques milliers d'atomes dans le volume d'excitation), on atteint le seuil, au dessus duquel le nombre d'ions détectés croît rapidement en fonction du nombre d'atomes excités à l'instant

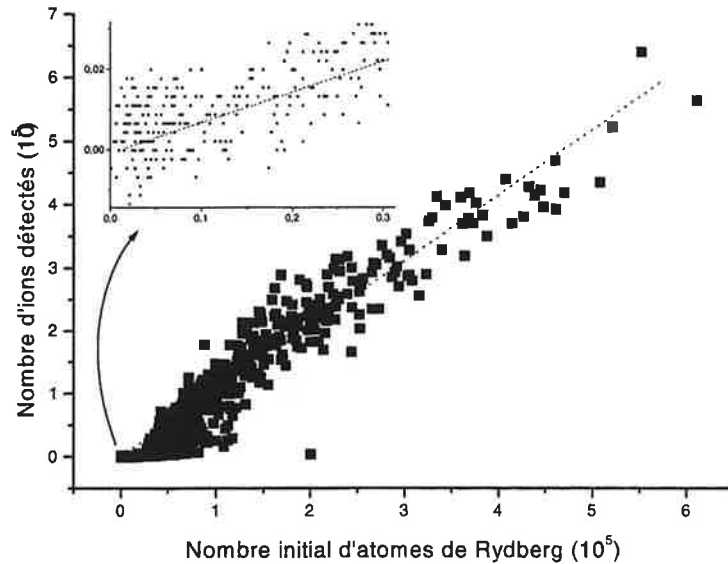


FIG. 2.7: Nombre d'ions détectés $9 \mu s$ après l'excitation des atomes de Rydberg dans l'état $Cs(39d)$. La pente de la droite vaut 1. Ceci montre que, pour des densités élevées, tous les atomes sont ionisés.

initial. Pour les grandes densités, tous les atomes de Rydberg sont ionisés, comme le montre la figure 2.7, où la pente du signal devient proche de 1 pour un nombre d'atomes de Rydberg initial grand.

2.2.2 Etude en fonction du nombre quantique principal.

Nous avons répété l'expérience décrite au paragraphe précédent pour différents états de Rydberg. Le seuil en densité est plus bas pour des nombres quantiques plus élevés. Ceci apparaît dans la figure 2.8. Il semble que le seuil en nombre d'ions varie approximativement en $(n^*)^{-2,9}$. Notons que cette expérience a été réalisée pour un délai de $9 \mu s$, si bien que l'expansion coulombienne des ions avant l'apparition du plasma n'est pas négligeable. Dans la référence [15] où est étudiée l'ionisation spontanée d'un gaz de Rydberg chaud, un seuil en densité est également observé. Les auteurs ont montré un comportement en $(n^*)^{-4}$ de ce seuil. Des expériences similaires à celle représentée figure 2.8, en se plaçant cette fois à des délais plus courts de façon à ce que l'expansion coulombienne soit plus faible, seront menées prochainement pour affiner nos résultats.

2.2.3 Analyse temporelle

Un autre point essentiel de notre expérience est que l'ionisation du gaz de Rydberg gelé n'est pas un phénomène instantané. Nous allons ici montrer qu'après un certain retard, l'ionisation des atomes de Rydberg devient extrêmement rapide.

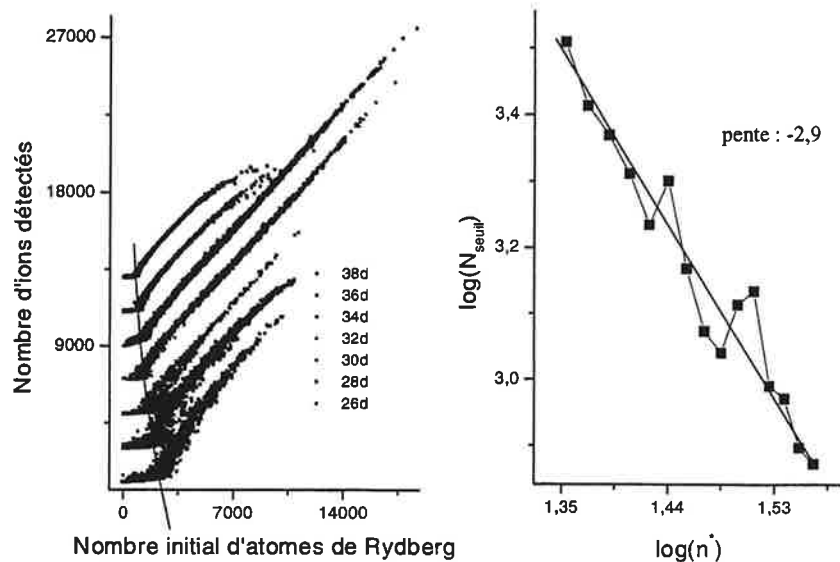


FIG. 2.8: *Etude du seuil en nombre d'ions pour l'apparition du plasma. L'expérience a été réalisée pour les états d de Rydberg entre 25d et 39d. Seuls les états pairs sont représentés, pour plus de lisibilité. A droite est représentée en échelle logarithmique la dépendance du seuil en fonction du nombre nombre quantique principal effectif. Une dépendance en $(n^*)^{-2,9}$ est observée.*

L'évolution temporelle du système dépend de la densité initiale d'atomes. Il est donc important d'opérer à densité d'atomes de Rydberg produits constante pour analyser l'évolution du système en fonction du temps. Nous avons vu que, à cause des fluctuations de modes du laser à colorant, qui conduisent à des variations au coup par coup importantes du nombre d'atomes de Rydberg excités, ceci est impossible dans notre cas.

Nous avons donc fait varier le délai entre la formation des atomes et la détection ; pour chaque délai nous avons répété la même séquence temporelle environ 100 fois. Puis, l'analyse de l'évolution du gaz d'atomes de Rydberg vers un plasma se fait en triant les données de façon à ne garder que celles pour lesquelles le nombre d'atomes de Rydberg initial est approximativement identique.

Deux types de données ont été prises, en ce qui concerne l'analyse temporelle. L'une a consisté à détecter les ions, l'autre les électrons. Ces deux détections ne sont pas équivalentes, comme nous allons le voir.

a) Détection des électrons

Comme le montre la figure 2.9, nous avons mené des analyses temporelles en détectant les électrons. Toutes les études utilisant la détection des électrons n'ont pour l'instant été réalisées qu'avec l'atome de césium. Cette expérience est importante car elle montre qu'effectivement l'évolution se fait vers un plasma presque neutre, et non vers un gaz d'ions. Dans les premières microsecondes, on ne détecte aucun électron, ce qui indique que les électrons (qui doivent être formés, puisque

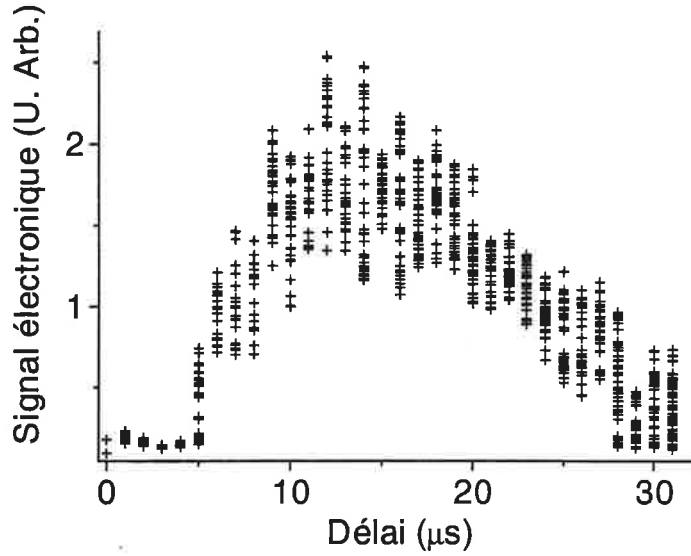


FIG. 2.9: *Signal électronique en fonction du délai entre formation des atomes de Rydberg dans l'état Cs(39d) et détection. La densité initiale d'atomes de Rydberg est de l'ordre de $5 \cdot 10^9 \text{ cm}^{-3}$. Dans les cinq premières microsecondes, aucun électron n'est détecté. Puis, en quelques microsecondes, tous les atomes s'ionisent. Les électrons, libres, peuvent être détectés pendant quelques dizaines de microsecondes. Cela signifie que ces électrons sont collectivement piégés.*

des ions sont présents) sont sortis de la zone de détection. Après un certain délai, nous détectons un grand nombre d'électrons. Ce signal correspond à l'ionisation de tous les atomes de Rydberg, en quelques microsecondes. On peut ensuite détecter les électrons pendant $30 \mu\text{s}$ environ. Ceci montre que les électrons sont piégés. Le système est alors presque neutre¹, c'est-à-dire qu'on a affaire à un plasma, dans lequel les électrons sont collectivement liés.

Notons que le signal électronique décroît à partir de $20 \mu\text{s}$. Ceci n'est pas corrélé à une ré-augmentation du nombre d'atomes de Rydberg détectés (voir figure 2.10), si bien que le nombre atomes plus électrons n'est plus constant ici. Ceci est montré dans la figure 2.10. Dans les premières microsecondes, on n'observe aucun électron (signal rigoureusement nul), et le signal atomique décroît lentement, avec une constante de temps difficile à évaluer, mais compatible avec le temps de vie habituel des atomes de Rydberg dans l'état 40 d (voir les trois premières microsecondes

¹En effet, on peut évaluer rapidement en combien de temps N électrons (en l'absence de toute charge positive) sortent de la zone de détection (1 cm^3) à cause de l'explosion coulombienne : du fait du théorème de Gauss, un électron à une distance R du centre voit une charge $Q = Ne$. Il ressent donc un potentiel $V = \frac{eQ}{4\pi\epsilon_0 R}$. On a par ailleurs : $m_e \left(\frac{\partial R}{\partial t}\right)^2 + V = cste$; par conséquent, si, à $t=0$, l'électron est supposé immobile en R_0 (de l'ordre de la taille du gaz de Rydberg : $50 \mu\text{m}$), sa vitesse en sortie de zone d'interaction vaut environ $v \approx \sqrt{\frac{eQ}{4\pi\epsilon_0 R_0 m_e}}$ c'est-à-dire $7 \cdot 10^5 \text{ m s}^{-1}$ pour $N = 10^5$ électrons. Si on suppose (très grossièrement) que les électrons ont en moyenne la moitié de cette vitesse, en 15 ns, tous les électrons ont disparu du volume de détection. On voit qu'on les conserve environ 2000 fois plus longtemps, ce qui implique que le système doit être globalement presque neutre.

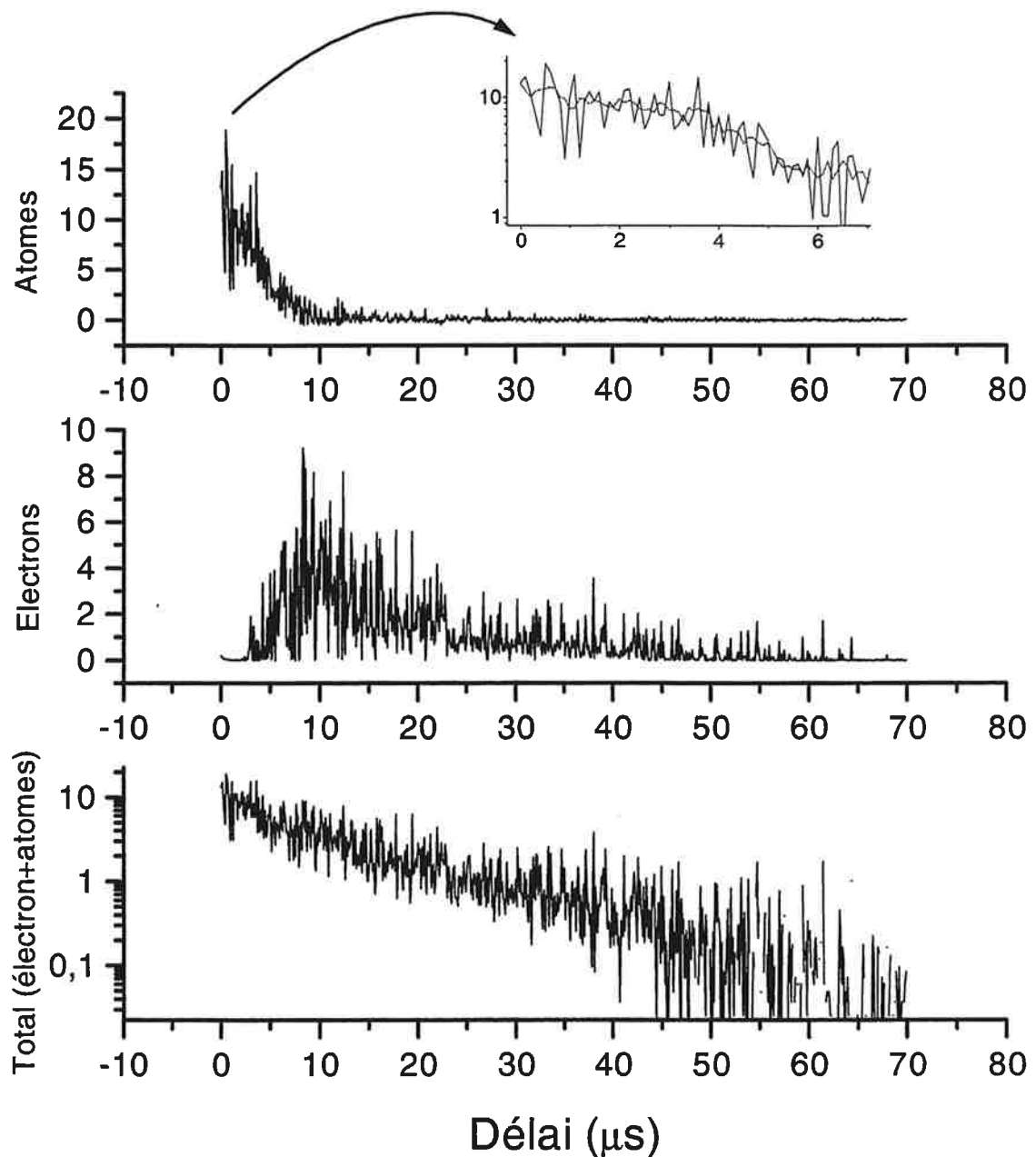


FIG. 2.10: Signaux électroniques et atomiques observés, en fonction du délai entre la formation des atomes de Rydberg, dans l'état $40d$ (Cs), et leur détection par une rampe de champ. Cette rampe est suffisante pour ioniser tous les atomes de Rydberg jusqu'à $n=35$ environ. A partir de $t=3 \mu\text{s}$, l'ionisation des atomes de Rydberg commence. Les électrons produits restent liés au système, et le temps de décroissance du signal électronique est de l'ordre de $30 \mu\text{s}$. Dans l'encart, est présenté un zoom du signal atomique dans les premières microsecondes, ainsi qu'une moyenne (sur $0,5$ microsecondes) de ce même signal. Lorsque le délai vaut $4 \mu\text{s}$, la pente du signal change sensiblement.

de l'inset dans la figure 2.10). Puis, après $t = 3 \mu s$, on observe la disparition rapide (en trois microsecondes environ) des atomes, conjointement à l'apparition de nombreux électrons : il s'agit de l'ionisation par avalanche de l'ensemble des atomes de Rydberg. A partir de $t = 10 \mu s$, on ne détecte plus aucun atome de Rydberg. A une échelle de temps plus longue (de l'ordre de $30 \mu s$), le signal électronique diminue exponentiellement. Ceci correspond au temps de vie du plasma. Nous n'observons pas de recombinaison au sein du plasma ultra-froid.

L'analyse du temps de vie des électrons dans le plasma fait intervenir la température des électrons (inconnue, mais dont on peut donner une évaluation : voir paragraphe 2.6.1) et la profondeur du piège à électrons, que nous déterminons plus bas.

b) Détection des ions

Contrairement aux observations réalisées avec la détection électronique, on observe dans les toutes premières microsecondes une augmentation lente du signal ionique. Les taux d'ionisation mesurés sont de l'ordre de $2 \cdot 10^3 \text{ s}^{-1}$. Des ions sont donc formés dans les premières microsecondes, avant la formation du plasma ; ils restent sur place², et on peut les détecter. Comme aucun électron ne peut être détecté durant cette période, on peut en déduire qu'il se forme une charge d'espace, et nous pouvons mesurer la vitesse du développement de celle-ci et déterminer le seuil pour le mécanisme d'avalanche qui conduit à la formation du plasma, en termes de profondeur pour la charge d'espace. L'expansion coulombienne des ions n'est pas négligeable si on attend plus de quelques microsecondes avant que le phénomène d'ionisation en masse des atomes de Rydberg ne se produise.

De façon similaire à ce qui est observé pour les électrons, après un certain délai se produit un phénomène d'avalanche dans l'ionisation. Ce phénomène se produit sans qu'on observe de modification dans le signal total (atomes plus ions) détecté. Cela semble exclure qu'on produise en même temps des atomes de Rydberg dans des niveaux profonds que notre champ ne permettrait pas de détecter. Il n'est cependant pas complètement exclu que des atomes de Rydberg très profonds ($n < 21$) soient produits en faible nombre.

Comme on le voit sur la figure 2.11, le phénomène d'avalanche se produit pour des temps plus longs pour les densités plus basses. Cependant, le nombre d'ions au seuil de l'avalanche est sensiblement le même pour les deux courbes. Ceci semble indiquer la nécessité de l'existence d'une certaine charge d'espace pour que la formation du plasma se produise. Comme nous l'avons expliqué, il faut tenir compte de l'explosion coulombienne -répulsion des ions entre eux avant l'apparition du plasma- , si bien que le nombre d'ions présents ne caractérise pas entièrement la

²On peut reprendre un raisonnement équivalent à celui suivi pour le cas des électrons (voir la note 1 du paragraphe précédent) : les ions Cs^+ sont 220.000 fois plus lourds que les électrons. Aux temps courts, il y a environ 1000 ions au maximum dans le volume d'excitation. Ils mettent alors environ $100 \mu s$ à quitter le volume de détection. Notons que cela signifie qu'en quelques microsecondes, ils ont le temps de sortir du volume d'excitation et que l'expansion coulombienne n'est pas négligeable pour évaluer la profondeur de la charge d'espace créée par ces ions.

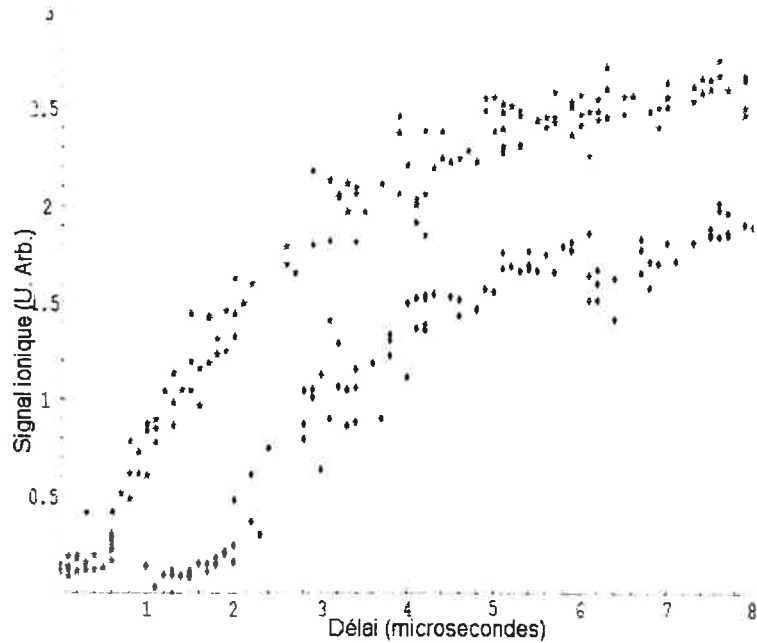


FIG. 2.11: *Etude temporelle du signal ionique observé. On excite à $t=0$ l'état $40d$ du rubidium, on détecte après un délai variable. Le nombre initial d'atomes de Rydberg est de $3,3 \cdot 10^5$ (courbe du haut) et $2,4 \cdot 10^5$ (courbe du bas). La courbe correspondant aux basses densités est décalée de $1 \mu s$ pour plus de lisibilité.*

profondeur de la charge d'espace.

Par ailleurs, on peut aussi voir sur la figure 2.11, que la vitesse de formation du plasma, après le seuil, est plus grande pour les fortes densités que pour les faibles densités.

Notons qu'après la formation du plasma, les phénomènes d'écrantage évoqués au paragraphe 2.1.2 imposent la neutralité du système au coeur du plasma. Comme il existe un surnombre de charges positives, ceci implique que ces charges sont situées à la périphérie du plasma : il en résulte probablement une couronne d'ions autour du plasma.

2.2.4 Scénario proposé

Les observations que nous avons réalisées montrent que le processus de transformation du gaz de Rydberg gelé en plasma se produit en deux temps. Dans un premier temps, on observe une lente accumulation de charges positives au sein du gaz d'atomes de Rydberg froids. Puis, après un certain délai, le comportement du système change brutalement : en quelques microsecondes, tous les atomes de Rydberg sont ionisés.

Il apparaît donc de façon claire qu'après un certain délai, le système évolue très rapidement vers un plasma. Ce délai dépend de la densité en atomes de Rydberg, et aussi de l'état de Rydberg que l'on considère.

Au vu données que j'ai présentées dans les pages précédentes, nous avons proposé le scénario

suisant. Dans un premier temps, les atomes de Rydberg sont lentement ionisés. Cette ionisation peut s'expliquer par absorption du rayonnement du corps noir à 300 K, mais aussi par des collisions entre atomes de Rydberg froids et atomes de Rydberg chauds qui, comme nous l'avons dit sont présents dans le nuage atomique. Les atomes de Rydberg sont froids, et donc presque immobiles aux échelles de temps considérées. Les électrons, très légers, s'éloignent rapidement, tandis que les ions, lourds et froids, peuvent être considérés comme immobiles à l'échelle de la microseconde. Il se développe par conséquent une charge d'espace positive au centre du gaz de Rydberg gelé.

Dans un deuxième temps, après quelques microsecondes, la charge d'espace devient suffisamment importante pour créer un puits de potentiel assez profonds pour piéger les électrons. A ces délais, les atomes de Rydberg chauds sont certainement hors de la zone du piège magnto-optique, si bien que seul le rayonnement du corps noir produit de nouveaux électrons. Enfin, les électrons piégés dans la charge d'espace oscillent et rentrent fréquemment en collision avec des atomes de Rydberg. Ceci provoque l'ionisation très rapide des atomes de Rydberg restant, c'est-à-dire le phénomène d'avalanche dans l'ionisation.

Comme nous allons nous attacher à le montrer dans les paragraphes qui suivent, ce scénario semble expliquer l'ensemble des observations, en terme de vitesse et de densité, que nous avons réalisées.

2.3 Accumulation d'une charge d'espace

L'analyse de l'évolution temporelle de la formation du plasma montre une accumulation de charges positives au sein de l'échantillon d'atomes de Rydberg froids. L'ionisation de l'ensemble des atomes de Rydberg se produit lorsqu'une charge d'espace suffisante a été atteinte. L'objet de ce paragraphe est d'évaluer la profondeur du puits de potentiel créé par la charge d'espace engendrée par l'accumulation d'ions dans les premières microsecondes. On parlera parfois, par abus de langage, de profondeur de charge d'espace.

Le seul diagnostic que nous possédons pour ce faire est le nombre d'ions présents dans le volume de détection. Comme nous l'avons mentionné plus haut, on peut négliger l'explosion coulombienne des ions pendant les toutes premières microsecondes. Alors, le nombre d'ions est révélateur de la densité de charges. La profondeur de la charge d'espace est alors obtenue à l'aide d'un modèle simple que nous décrivons plus loin.

2.3.1 Taux d'ionisation par le rayonnement du corps noir et collisions avec les atomes chauds

Dans le but de tester le scénario proposé, nous avons mesuré le taux d'ionisation au sein de notre gaz de Rydberg gelé. Après excitation des atomes de Rydberg dans le niveau $39d$, on observe un faible taux d'ionisation, de l'ordre de $2.10^3 s^{-1}$ par atome. Pour un nombre typique de 5.10^5 atomes de Rydberg, on détecte après $2\mu s$ environ 2000 ions. Deux mécanismes d'ionisation ont été

mis en évidence. Le premier mécanisme auquel on peut penser est l'absorption du rayonnement du corps noir, mais ce n'est pas le plus efficace dans cette étape de l'ionisation. Il semble qu'un second mécanisme soit prépondérant : il s'agit de collisions avec des atomes de Rydberg chauds. Je décris ci-dessous ces deux mécanismes.

a) Collisions avec des atomes de Rydberg à température ambiante

Le premier mécanisme consiste en des collisions entre les atomes de Rydberg froids et un nombre peu élevé (1% de notre échantillon environ) d'atomes de Rydberg à température ambiante, excités par le laser à colorant à partir du gaz résiduel -c'est-à-dire les atomes de césium (ou rubidium) présents dans la cellule, non refroidis par les lasers du piège magnéto-optique.

Des simulations Monte-Carlo [13] montrent que la section efficace d'ionisation pour des collisions entre atomes de Rydberg vaut environ dix fois la section efficace géométrique :

$$\pi n^4 a_0^2 \quad (2.4)$$

où n est le nombre quantique principal du niveau considéré. Nous avons montré que 1% des atomes de Rydberg sont excités depuis le gaz résiduel : pour ce faire, nous avons coupé un des six faisceaux laser du piège magnéto-optique. Aucun atome n'est alors froid. Nous avons alors mesuré le nombre d'atomes de Rydberg produits par le laser pulsé : le nombre d'atomes de Rydberg détectés est environ 6% du nombre d'atomes de Rydberg qu'on excite dans les mêmes conditions dans le piège magnéto-optique. Il faut cependant noter que le volume d'excitation est alors bien plus important que le volume du piège magnéto-optique. En effet, laser à colorant est peu focalisé, si bien qu'il excite des atomes de Rydberg chauds le long de son axe de propagation sur environ 1 cm (ce qui correspond à la taille transverse du volume de détection déterminé par les grilles de détection). On estime donc que le nombre d'atomes de Rydberg chauds présents dans le piège magnéto-optique est environ dix fois inférieur au nombre d'atomes de Rydberg chauds détectés.

Le nombre d'atomes de Rydberg à 300 K produits par l'impulsion du laser à colorant correspond donc typiquement à 1% des atomes de Rydberg froids. Dans ces conditions, les collisions entre atomes chauds et atomes froids doivent mener à un taux d'ionisation de l'ordre de $1,5 \cdot 10^3 \text{ s}^{-1}$. Pour vérifier le rôle des collisions entre atomes du gaz de Rydberg gelé et atomes chauds, nous avons opéré de façon à exciter les atomes froids sans exciter les atomes chauds.

b) Suppression des atomes de Rydberg à température ambiante

A cet effet, nous avons éteint les lasers du piège magnéto-optique, à l'aide d'une cellule de Pockels, 20 μs avant le pulse du laser à colorant. La cellule de Pockels fonctionne à 3 kV, et le temps de commutation mesuré est de 200 ns. On peut aussi opérer en coupant le laser injectant la diode esclave du piège magnéto-optique. Celle-ci fonctionne alors librement, ce qui dans notre cas assure que le décalage en fréquence entre les faisceaux laser du MOT et la résonance atomique est supérieur à 2 cm^{-1} ; le temps de commutation est alors plus long (de l'ordre de 3 μs). Puis, juste

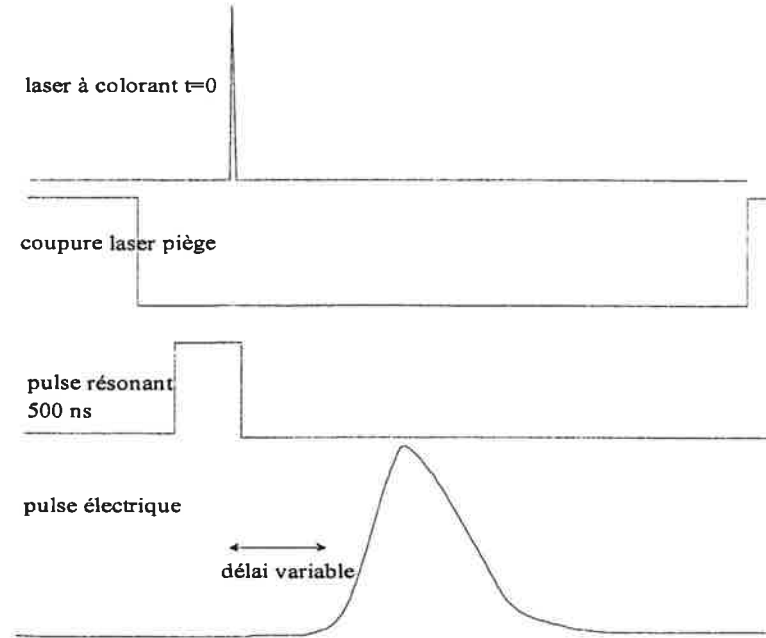


FIG. 2.12: Schéma pour limiter le nombre d'atomes de Rydberg à 300 K excités.

avant l'impulsion du laser à colorant qui excite les atomes de Rydberg, on applique un pulse laser de 500 ns, d'intensité 10 fois plus faible que les lasers de piégeage, et résonnant avec la transition $F=4\ 6s_{1/2} \rightarrow F=4\ 6p_{3/2}$ de l'atome de césium (voir figure 2.12). De cette façon, on peut exciter le même nombre d'atomes froids, mais en excitant beaucoup moins les atomes chauds, qui pour la plupart ne sont pas en résonance avec le laser, du fait de l'effet Doppler. On excite ainsi jusqu'à 50 fois moins d'atomes de Rydberg chauds. Ceci a été mesuré par la méthode décrite plus haut : un des six faisceaux du piège magnéto-optique est coupé, et on mesure le nombre d'atomes de Rydberg formés en appliquant la séquence temporelle de la figure 2.12. On détecte typiquement 50 fois moins d'atomes chauds en appliquant cette séquence temporelle.

L'efficacité de la séquence temporelle décrite ci-dessus pour la réduction du nombre d'atomes de Rydberg s'explique comme suit. D'après les équations 1.1 et 1.2, le paramètre de saturation (c'est-à-dire la proportion d'atomes dans l'état $6p_{3/2}$ à partir duquel sont excités les atomes de Rydberg) vaut :

$$p \approx \frac{I}{2I_{sat}} \left(\frac{1}{1 + \frac{I}{I_{sat}} + \frac{4\delta^2}{\Gamma^2}} \right)$$

Les lasers du piège magnéto-optique sont décalés de 3Γ par rapport à la résonance atomique. On a de plus $\frac{I}{I_{sat}}$ de l'ordre de 13. Dans ces conditions $p \approx 0.17$ pour les atomes froids. L'idée de la séquence temporelle est d'utiliser un pulse exactement résonant, de manière à conserver le même paramètre de saturation p . Ceci est réalisé pour $\frac{I}{I_{sat}} \approx 0.5$, c'est-à-dire quand l'intensité du pulse résonant est à peu près 25 ($\approx 13/0.5$) fois plus faible que l'intensité cumulée des lasers pièges. Le nombre d'atomes froids dans $6p_{3/2}$ est alors inchangé. Par contre, en ce qui concerne les atomes

chauds, δ est principalement déterminé par l'effet Doppler ($\sim 400 \text{ MHz} \gg 3\Gamma$), si bien que pour les atomes chauds, le faible changement de la fréquence du laser importe peu, et ils ne ressentent que la réduction d'intensité. Le paramètre p est alors pour les atomes chauds divisé par 25. Il y a donc environ 25 fois moins d'atomes de Rydberg chauds produits, ce qui correspond bien aux observations réalisées.

c) Taux d'ionisation par absorption du rayonnement du corps noir

Les taux d'ionisation mesurés lorsque seuls les atomes de Rydberg froids sont excités sont de l'ordre de 10^3 s^{-1} . Ceci est cohérent avec d'autres mesures déjà réalisées de taux d'ionisation par absorption du rayonnement du corps noir [14]. Ce résultat implique par ailleurs un taux d'ionisation par collision avec les atomes chauds, dans les conditions habituelles lui aussi de l'ordre de 10^3 s^{-1} , en bon accord avec l'estimation de la référence [13].

Les deux mécanismes proposés ici sont spécifiques des atomes de Rydberg. En effet, l'ionisation des atomes de Rydberg par absorption du rayonnement du corps noir résulte du nombre important de photons du corps noir aux basses fréquences. De son côté, le taux d'ionisation des atomes de Rydberg par collision Rydberg-Rydberg est non négligeable, malgré la faible densité, du fait de la grande section efficace de collision des atomes de Rydberg.

Emettons cependant une réserve : en ce qui concerne les collisions avec les atomes chauds, il semble peu probable qu'on ait de nombreuses collisions ionisantes, sans qu'aucune collision ne produise des atomes de Rydberg dans des états différents³ ; or, comme je l'ai déjà dit, nous ne détectons jamais d'atomes de Rydberg dans d'autres états que ceux initialement peuplés, ni avant l'apparition du plasma, ni pendant le phénomène d'ionisation par avalanche.

d) Mise en évidence du rôle des atomes chauds

Nous avons ainsi montré que la présence d'atomes de Rydberg à température ambiante au sein du gaz d'atomes de Rydberg gelé augmente le taux d'ionisation initial des atomes de Rydberg. Nous avons répété les expériences détaillées ci-dessus, en employant la méthode décrite au paragraphe 2.3.1, de façon à exciter aussi peu d'atomes de Rydberg chauds que possible. Alors, bien que la densité d'atomes de Rydberg soit équivalente à celle obtenue usuellement, on n'observe jamais de développement d'un plasma. Pour des n très élevés ($n > 50$), il peut arriver que pour des temps très longs, on observe quelques faibles formations de plasma.

Le fait qu'on n'observe pas de formation de plasma peut s'expliquer par le fait que, à cause d'un taux d'ionisation trop faible, la charge d'espace s'accumule de façon trop lente. Alors, l'explosion coulombienne n'est plus négligeable, si bien que la profondeur du piège à électrons reste toujours trop faible pour piéger des électrons suffisamment chauds.

³En ce qui concerne l'ionisation par le rayonnement du corps noir, le fait de ne pas peupler d'atomes de Rydberg dans d'autres niveaux est moins étonnant : expérimentalement, on a bien observé de telles transitions, mais pour des délais bien plus longs, dans les cas où on a empêché la formation du plasma en appliquant un champ électrique constant et faible (voir paragraphe 2.5.2).

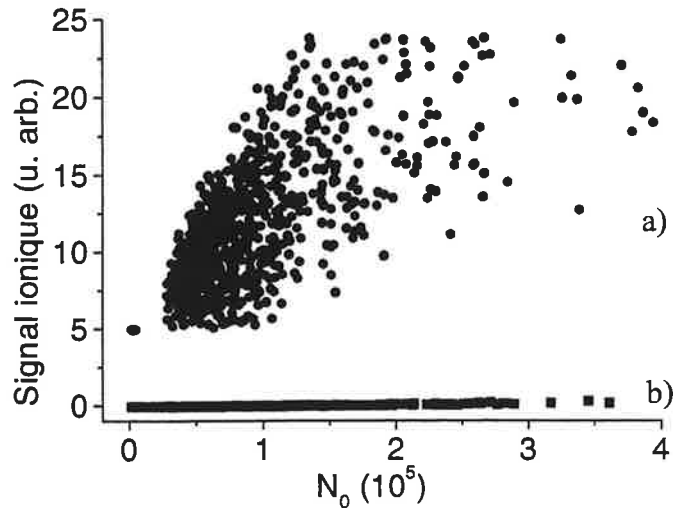


FIG. 2.13: Formation du plasma pour un délai de $3 \mu s$ après l'excitation du niveau $39d$ du césium, avec (a) et sans (b) atomes de Rydberg chauds.

Une expérience à réaliser pour tester cette explication serait de rajouter dès le départ quelques ions au système. On peut à cet effet prélever une partie du rayonnement à 3ω (YAG triplé) utilisé pour pomper le laser à colorant. Ce laser peut ioniser des atomes dans l'état $6p$, bien au dessus de la limite d'ionisation. Les électrons ainsi arrachés partent loin de la zone de détection, si bien qu'il se crée une charge d'espace dès l'instant initial. On devrait alors observer la formation de plasma, même en l'absence d'atomes chauds.

Dans l'hypothèse où l'on n'observerait pas de formation de plasma, même en présence de la charge d'espace produite par les photo-ions, cela signifie que les atomes de Rydberg chauds eux-mêmes -ou bien des ions chauds engendrés par ceux-ci- jouent un rôle dans le phénomène d'avalanche observé lors de la formation du plasma. Notons cependant que les atomes chauds ont une vitesse de l'ordre de 200 ms^{-1} , si bien qu'ils parcourent la taille du piège magnéto-optique en $3 \mu s$. Il est donc peu probable que les atomes chauds jouent un rôle pendant plus de $3 \mu s$.

Par ailleurs, de manière à tester une éventuelle influence d'atomes dans l'état $6p_{3/2}$ sur la formation du plasma, nous avons coupé la lumière des lasers piège juste *après* la production des atomes de Rydberg. Aucun effet n'a alors été constaté quant à la formation du plasma. Ceci exclut l'hypothèse d'un effet dû à des collisions superélastiques impliquant des atomes dans l'état $6p_{3/2}$.

2.3.2 Charge d'espace

L'ionisation des atomes par chacun des deux mécanismes évoqués ci-dessus conduit au développement d'une charge d'espace. En effet, schématiquement, les électrons, très légers, s'en vont hors du volume de détection, tandis que les ions restent. Ceci est confirmé expérimentalement par le fait qu'on ne détecte pas d'électrons au cours de cette étape, tandis qu'on détecte des ions. On

peut décrire cette charge d'espace par un modèle simple.

Si on suppose que l'ionisation des atomes se produit aléatoirement au sein de tout le volume où l'on a excité les atomes de Rydberg (une sphère de rayon R_0), on peut considérer qu'on a affaire à une sphère chargée de charge $Q=Ne$ et de rayon R_0 .

Le théorème de Gauss implique alors que, hors de la sphère, tout se passe comme si on avait une charge Q au centre de la sphère. A longue distance, le système est donc équivalent à un atome de Rydberg de charge Q . Les électrons voient un potentiel :

$$V = -\frac{Ne^2}{4\pi\epsilon_0 r}$$

où N est le nombre d'atomes ionisés et r est la distance de l'électron au centre de la sphère. D'autre part, à l'intérieur de la charge d'espace, les électrons voient un champ électrique qui croît linéairement avec r . Ils ressentent un potentiel :

$$V = V_0 + \frac{Ne^2}{8\pi\epsilon_0 R_0^3} r^2$$

Les conditions de raccord imposent $V_0 = -\frac{3Ne^2}{8\pi\epsilon_0 R_0}$

Si l'on suppose, en accord avec nos observations, que l'on a une charge d'environ 10 000 ions accumulés dans un rayon de $100\mu\text{m}$, on obtient une profondeur du puits d'environ $2\,000\text{ cm}^{-1}$. Notons que le puits de potentiel n'est en fait pas sphérique, mais plutôt en forme de cigare, de dimensions $100\mu\text{m} \times 100\mu\text{m} \times 1\text{mm}$. On pourra remplacer R_0^3 par le volume V de ce cigare. La profondeur du puits est alors de 200 cm^{-1} .

De manière à prendre en considération de façon plus réaliste la répartition des ions pour évaluer la charge d'espace qu'ils créent, on peut calculer numériquement le champ créé par N ions répartis dans le volume d'ionisation. Le résultat de ce calcul, effectué pour 250 ions, est présenté figure 2.15. La profondeur de la charge d'espace estimée, pour 5000 ions répartis dans le volume de formation des atomes de Rydberg, est de 1000 cm^{-1} environ. Notons que cette simulation montre par ailleurs que, contrairement à ce que suggère le modèle simple développé ci-dessus, le potentiel dû aux charges ponctuelles diverge aux alentours des ions.

Dans la suite, on supposera que la profondeur du puits créé par la charge d'espace après quelques microsecondes est de l'ordre de 500 cm^{-1} ; ce puits piègera tout électron arraché à un atome de Rydberg -soit par le rayonnement du corps noir, soit par collision avec un atome chaud-pourvu que son énergie cinétique est inférieure à cette valeur.

2.3.3 Bilan

Ainsi, après typiquement quelques microsecondes, la charge d'espace accumulée au sein du gaz de Rydberg permet de piéger des électrons relativement chauds (de 500 à 1000 cm^{-1} , ce qui correspond à 1000 K environ). L'énergie cinétique de ces électrons est alors suffisante pour ioniser

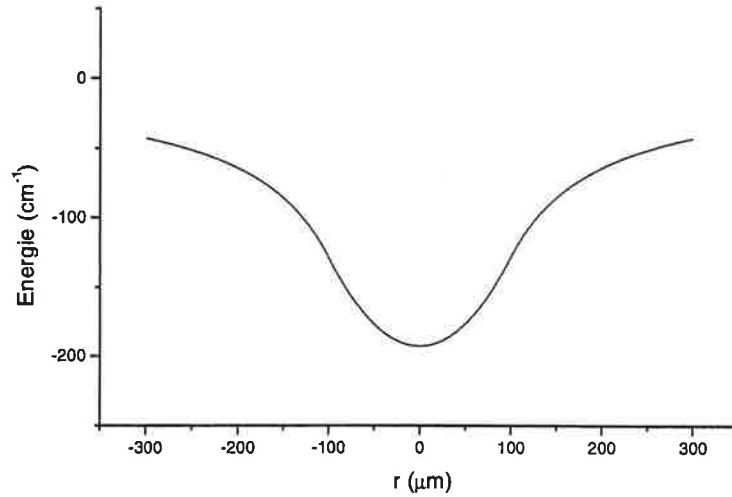


FIG. 2.14: Charge d'espace dans le piège magnéto-optique, après accumulation de 1000 ions dans une sphère de rayon $100 \mu\text{m}$. Le modèle utilisé ici est très approximatif. D'une part il suppose une répartition continue des charges ; d'autre part, le volume d'excitation réel n'est pas une sphère mais un cigare. Enfin, le nombre d'ions est plutôt de l'ordre de 10 000. On estime que la profondeur du puits de potentiel est de l'ordre de 500 à 1000 cm^{-1} .

des atomes de Rydberg. Ces électrons peuvent osciller dans la charge d'espace, et, par collisions avec les atomes de Rydberg, ioniser ceux-ci en même temps qu'ils perdent leur énergie cinétique. Ceci explique alors qualitativement les observations suivantes :

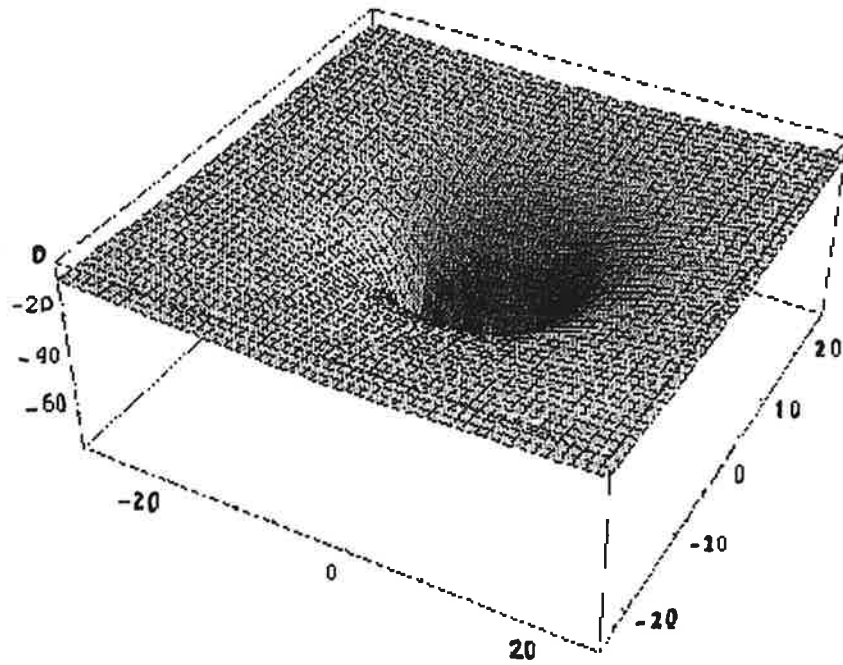
- plus la densité d'atomes est élevée, plus vite la charge d'espace se forme, et donc plus le plasma apparaît tôt.

- pour des atomes de Rydberg dont le nombre quantique principal est élevé, une charge d'espace relativement peu profonde peut piéger des électrons dont l'énergie cinétique est suffisante pour ioniser les atomes de Rydberg. Cela signifie que plus le nombre quantique principal est élevé, plus le phénomène d'avalanche dans l'ionisation se produit tôt.

Pour valider le scénario que nous proposons, il est cependant nécessaire d'évaluer le taux de collisions entre électrons et atomes de Rydberg.

2.4 Mécanisme de formation du plasma

Comme le montre la figure 2.9, après un certain délai, la charge d'espace est suffisamment profonde pour piéger les électrons. Alors, des électrons, libérés de l'attraction d'un atome de Rydberg par un des deux mécanismes étudiés au paragraphe 2.3.1, oscillent dans la charge d'espace, et peuvent ioniser les atomes de Rydberg restants. Nous allons maintenant calculer le taux d'ionisation attendu pour un tel mécanisme.



Potentiel créé par N charges dans un volume cylindrique

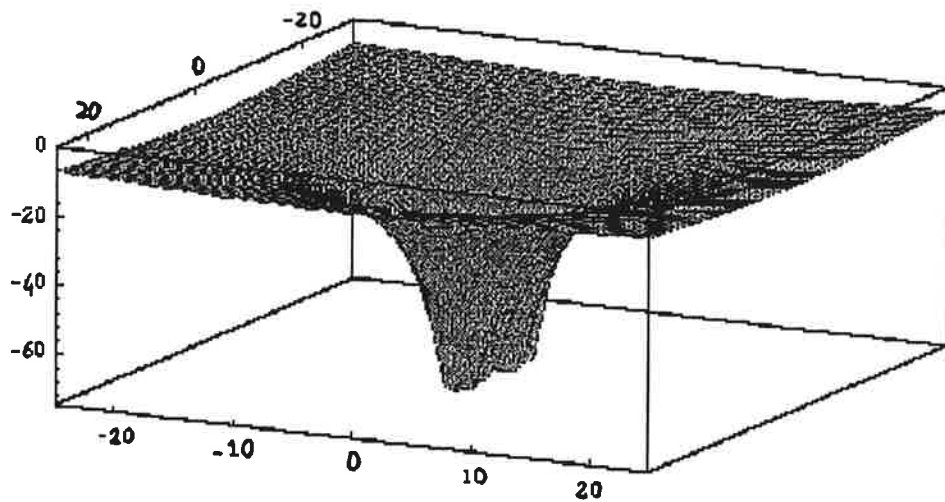


FIG. 2.15: *Potentiel créé par 250 ions situés dans un volume de dimensions dans le rapport $2*2*10$ (en unité arbitraire), dans le plan (Oxy) . Le potentiel est montré pour $z=0$. La répartition des charges est à symétrie cylindrique suivant l'axe (Ox) . Ramenée aux dimensions du volume de production des atomes de Rydberg (estimé à $200\mu m * 200\mu m * 1mm$), et à un nombre de 5000 ions, la charge d'espace peut être estimée profonde de 1000 cm^{-1} environ.*

2.4.1 Collisions électrons-atomes de Rydberg.

Les atomes de Rydberg ayant un nombre quantique principal élevé, il est souvent possible d'utiliser le principe de correspondance pour étudier leurs propriétés de collision. En particulier, la référence [19] montre que la section efficace de collision d'ionisation d'un atome de Rydberg lors de collisions avec des électrons est approximativement égale à la section efficace de collision classique géométrique 2.4.

Le fond de la charge d'espace est harmonique. La pulsation d'oscillation de ce piège est

$$\omega_C = \left(\frac{2V_0}{3R_0^2 m_e} \right)^{1/2} \quad (2.5)$$

où V_0 est la profondeur de la charge d'espace et R_0 sa taille caractéristique. Pour une charge d'espace de 500 cm^{-1} et de $100 \mu\text{m}$, la pulsation ω_C est de l'ordre de 10^9 s^{-1} . La fréquence d'oscillation $\omega_C/2\pi$ est alors typiquement de 100 MHz .

Pour un électron oscillant dans la charge d'espace, le taux de collisions d'avec les atomes de Rydberg est

$$\Omega = a_0^2 n^4 R \omega_C n_{ryd}$$

où n_{ryd} est la densité d'atomes de Rydberg. Ω est donc de l'ordre de 10^7 s^{-1} . Notons, comme nous l'avons évoqué au paragraphe 2.3.2, que le piège n'est pas isotrope, et que le taux calculé ici n'est qu'un ordre de grandeur⁴.

En une microseconde, les électrons ont le temps de faire environ 10 collisions avec des atomes de Rydberg, ce qui semble suffisant pour expliquer la rupture de pente du signal présenté figure 2.11, représentant l'ionisation des atomes de Rydberg en fonction du temps. La formation du plasma est d'autant plus rapide que la section efficace de collision est plus grande, et donc que le nombre quantique principal est élevé. Elle est aussi d'autant plus rapide que la densité d'atomes est élevée (voir figure 2.11).

La profondeur de la charge d'espace au seuil de l'avalanche est de l'ordre de 500 cm^{-1} . Chaque électron a alors suffisamment d'énergie cinétique pour ioniser six atomes de Rydberg. Malgré le fort taux d'ionisation par collision Rydberg-électron, on s'attend à ce que le taux d'ionisation global soit multiplié au plus par six. Les observations faites montrent un phénomène d'avalanche qui semble parfois plus rapide. Compte tenu de la simplicité de notre modèle, on peut cependant dire que l'explication proposée est en accord qualitatif avec les observations.

⁴Notons par exemple que le taux de collision est plus faible pour les électrons plus faiblement liés dans la charge d'espace (ceux-ci oscillent plutôt dans un potentiel coulombien de charge $Q=\text{Ne}$, équivalent au potentiel d'un atome de Rydberg).

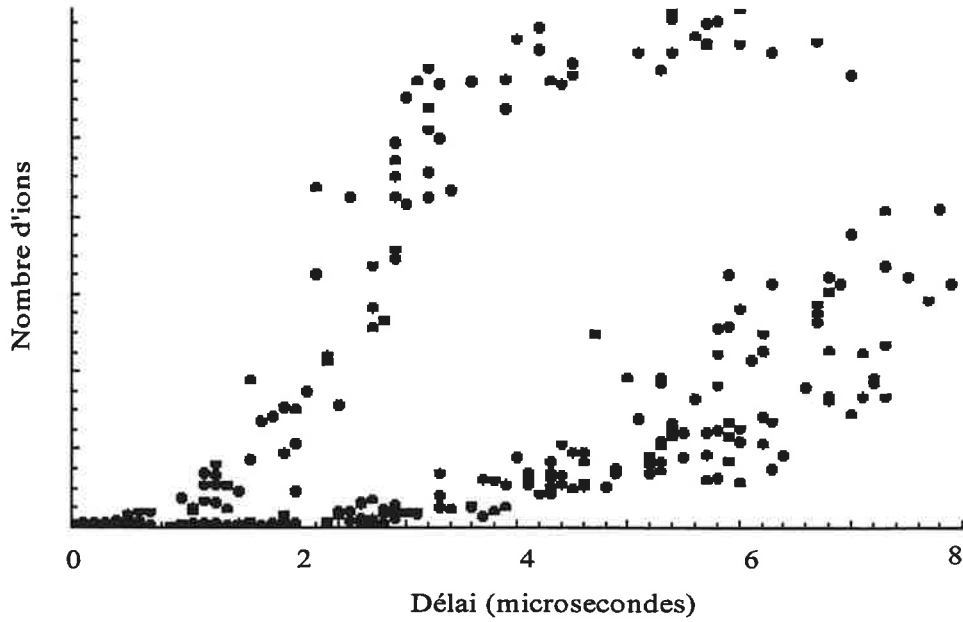


FIG. 2.16: *Etude temporelle du signal ionique pour deux états de Rydberg (cas du rubidium). En noir et en haut : 48d; en bleu et en bas, 40d. L'instant auquel le plasma apparaît est plus tardif pour les niveaux de Rydberg plus profonds. De plus, la vitesse de formation du plasma est plus rapide pour les états de Rydberg les plus excités.*

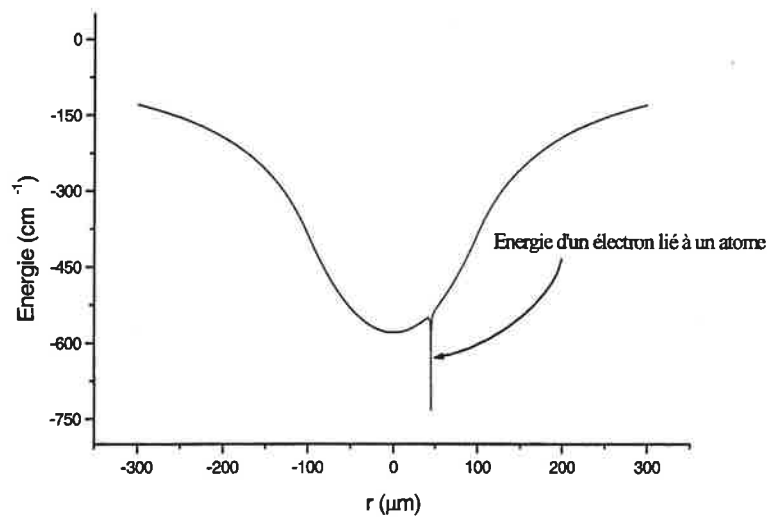


FIG. 2.17: *Potentiel ressenti par un électron lié à un atome de Rydberg. Le puits de potentiel de la charge d'espace est de l'ordre de 1000 cm^{-1} et l'énergie de liaison d'un atome de l'ordre de 100 cm^{-1} . Un électron piégé dans la charge d'espace peut ioniser jusqu'à 10 atomes.*

2.4.2 Énergie cinétique des électrons

Nous nous attachons ici à évaluer l'énergie cinétique moyenne des électrons piégés dans la charge d'espace. Comme nous l'avons déjà affirmé, les électrons produits dans les premières microsecondes ne sont pas piégés (et on n'en détecte aucun). Or, en trois microsecondes, les atomes de Rydberg chauds parcourent environ 1 mm ; ils ne jouent donc probablement plus aucun rôle pour l'apparition du plasma. Ceci signifie que les électrons qui nous intéressent ici sont ceux produits par ionisation des atomes de Rydberg par le rayonnement du corps noir. Nous rappelons ci-dessous les propriétés essentielles du rayonnement du corps noir à 300 K.

a) Rayonnement du corps noir

La densité d'énergie du rayonnement du corps noir est :

$$\rho(\nu) = \frac{8\pi h\nu^3}{c^3 (e^{(h\nu/k_B T)} - 1)}$$

Le nombre d'occupation en photons de chaque mode vaut :

$$n(\nu) = \frac{1}{e^{(h\nu/k_B T)} - 1} \quad (2.6)$$

ce qui s'écrit pour les basses fréquences $h\nu < k_B T$

$$n(\nu) \approx \frac{k_B T}{h\nu} \quad (2.7)$$

Ces propriétés sont rappelées figure 2.18.

b) Énergie des électrons

Les électrons dans les états de Rydberg initialement peuplés sont liés d'environ 100 cm^{-1} (82 cm^{-1} pour Cs(39d)). Si on suppose que, dans la gamme d'énergie 1-2000 cm^{-1} qui nous intéresse, la probabilité d'ionisation par le rayonnement du corps noir est proportionnelle au nombre de photons à une fréquence donnée (équation 2.6), alors l'énergie cinétique la plus probable des électrons produits est déterminée par le maximum de la densité d'énergie du rayonnement du corps noir (voir figure 2.18). On a pour Cs(39d) :

$$E_c \sim \nu_{\max} - \frac{R_y}{(n - \delta(l))^2} \sim 500 \text{ cm}^{-1}$$

Notons que la probabilité d'ionisation par un photon du rayonnement du corps noir décroît fortement quand sa fréquence augmente au dessus de la limite d'ionisation. L'énergie cinétique

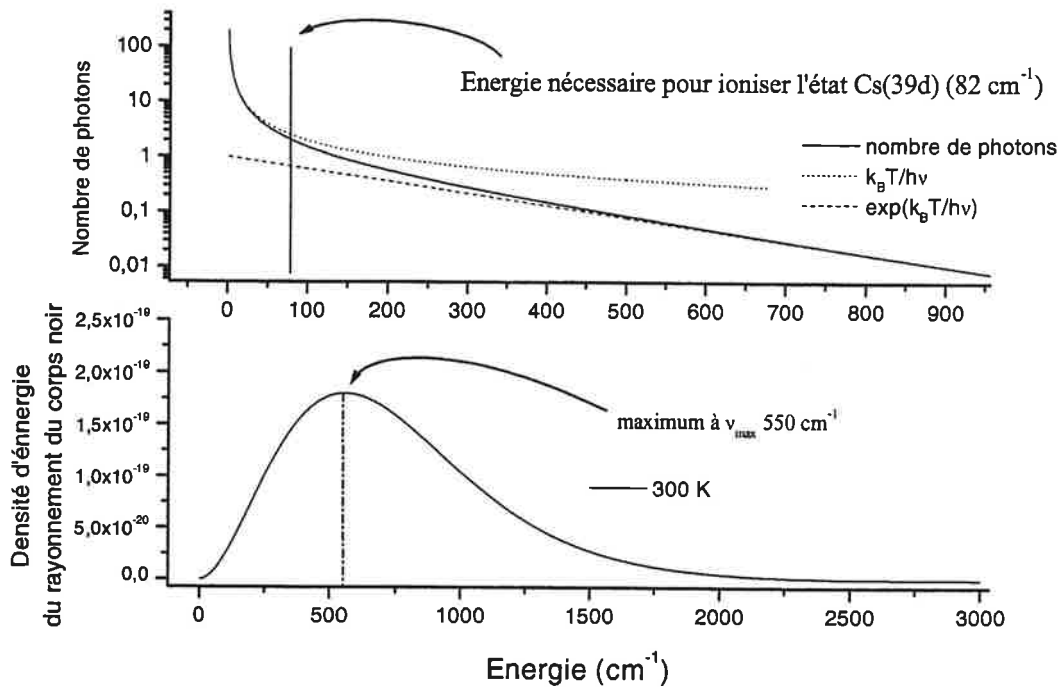


FIG. 2.18: *Caractéristiques du rayonnement du corps noir à 300 K.*

moyenne de l'électron ionisé est donc probablement inférieure à la valeur annoncée ici. Nous admettons cependant que cette valeur donne un ordre de grandeur.

Chaque électron oscillant dans la charge d'espace ionise plusieurs atomes de Rydberg. Le processus d'ionisation s'arrête lorsque l'électron n'a plus suffisamment d'énergie cinétique : l'énergie cinétique finale des électrons est donc probablement inférieure à l'énergie de liaison d'un électron de Rydberg. La température électronique finale doit être de l'ordre de quelques Kelvin.

c) Chauffage et refroidissement des électrons.

Absorption du rayonnement du corps noir On peut évaluer la probabilité pour un électron piégé dans la charge d'espace d'absorber un photon du rayonnement du corps noir. Le calcul (développé en détail dans l'annexe C) consiste à évaluer le dipôle d'interaction entre deux niveaux liés dans le potentiel de charge d'espace, et d'en déduire, d'après la règle d'or de Fermi, la probabilité d'absorption du rayonnement du corps noir. L'énergie par unité de temps apportée à un électron piégé dans la charge d'espace vaut alors :

$$F \approx \frac{\Theta k_B T \hbar^2 \pi e^2}{24 L^4 m^3 \epsilon_0 c^3}$$

Θ ne diffère pas notablement de P^3 (voir annexe C), où P est le nombre de niveaux liés dans le potentiel créé par la charge d'espace (de l'ordre de 10^4). Ceci donne un taux d'accumulation

d'énergie de l'ordre de $6 \text{ cm}^{-1} \text{ s}^{-1}$, ce qui est négligeable aux échelles de temps et d'énergie qui nous intéressent (la microseconde et la dizaine de cm^{-1}). Il est extrêmement peu probable que le corps noir chauffe sensiblement les électrons de la charge d'espace.

Rayonnement des électrons Un électron qui oscille dans la charge d'espace rayonne de l'énergie, et, par conséquent, se refroidit. On montre (voir annexe C) que la variation d'énergie par unité de temps d'un électron du fait de son rayonnement est

$$\frac{e^6 N^2}{32\pi^2 \varepsilon_0^3 c^3 m_e^2 R^4}$$

où N est le nombre d'ions de la charge d'espace, et R le rayon de la charge d'espace. Pour $N=2000$ et $R=100 \mu\text{m}$, cela correspond à une perte d'énergie de $0,007 \text{ cm}^{-1}/\text{s}$, ce qui est négligeable au regard des énergies et des temps considérés.

2.4.3 Modèle

Les considérations des paragraphes précédents reviennent à estimer que, du fait du piégeage des électrons par la charge d'espace, le taux d'ionisation est multiplié par un certain facteur, de l'ordre de 6, qui correspond au nombre d'atomes de Rydberg que chaque électron piégé peut ioniser. Dans cette optique, le nombre d'ions présents suit l'équation dynamique suivante :

$$\frac{\partial N_{ion}}{\partial t} = \xi(N_{at} - N_{ion}(t)) + \eta H(N_{ion}(t) - N_{seuil}) \xi(N_{at} - N_{ion}(t))$$

ξ est le taux d'ionisation dû au rayonnement du corps noir et aux collisions avec les atomes chauds. On suppose ce taux indépendant du temps. Ceci revient à ne considérer que l'ionisation par absorption de rayonnement du corps noir. H est une fonction de Heaviside qui décrit le seuil de piégeage des électrons, atteint lorsque le nombre d'ions présents dépasse une certaine valeur N_{seuil} . η est le nombre d'atomes de Rydberg qu'un électron peut ioniser.

Des améliorations simples peuvent être ajoutées à ce modèle de façon à le rendre plus réaliste. Premièrement, on peut remplacer la fonction de Heaviside par une fonction moins abrupte, pour tenir compte de l'incertitude sur l'énergie cinétique des électrons produits par absorption par le rayonnement du corps noir. Dans les simulations qui suivent, j'ai remplacé $H(N_{ion} - N_{seuil})$ par :

$$\frac{1}{2} \left[\tanh \left(\frac{N_{ion}(t) - N_{seuil}}{N_w} \right) + 1 \right]$$

Par ailleurs, on peut tenir compte de la répulsion coulombienne entre les ions. Ceci a pour conséquence une diminution de la profondeur de la charge d'espace. Cette diminution est modélisée par un facteur multiplicatif introduit sur la valeur de N_{ion} dans l'expression de la fonction H :

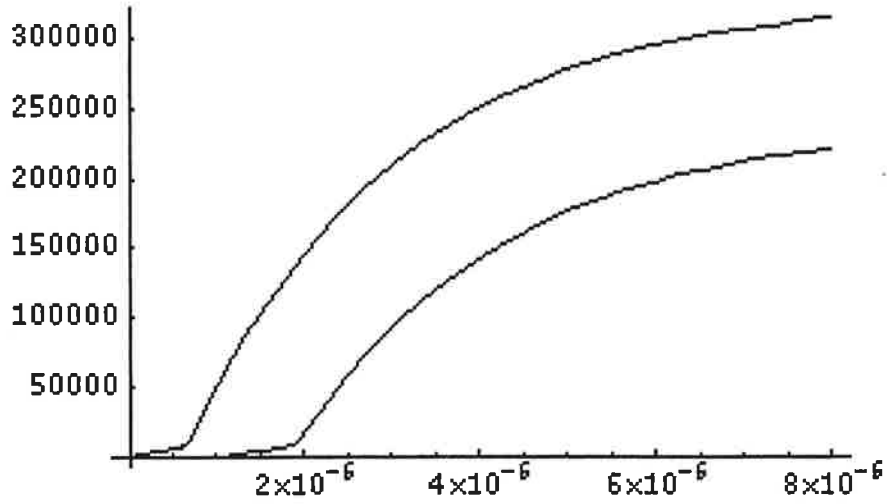


FIG. 2.19: Résultats de la modélisation. Comme dans le graphe expérimental de la figure 2.11, que cette simulation vise à reproduire, la courbe correspondant aux basses densités est décalée de $1 \mu s$ pour plus de lisibilité. En abscisse, temps en seconde ; en ordonnée, nombre d'ions.

$$H(N_{ion} - N_{seuil}) = \frac{1}{2} \left[\tanh \left(\frac{N_{ion}(t) \frac{t_0}{t_0-t} - N_{seuil}}{N_w} \right) + 1 \right]$$

Dans les simulations présentées ici, réalisées en utilisant le logiciel Mathematica, les valeurs suivantes ont été choisies pour les paramètres :

$N_{seuil} = 10000$, conformément à l'évaluation de la profondeur de la charge d'espace au seuil de l'avalanche. $t_0 = 1 \mu s$, conformément à l'évaluation du temps que met un nuage de mille ions pour doubler de volume. $\xi = 15000$, conformément au taux d'ionisation mesuré. $\eta = 10$, ce qui doit être valable en ordre de grandeur si $n \sim 50$ et que l'énergie cinétique moyenne de électrons est de 500 cm^{-1} . $N_w = 4000$, ce qui est assez arbitraire : N_w/N_{seuil} représente une incertitude sur le seuil de l'avalanche en terme de profondeur de charge d'espace. Elle est fixée ici à 40%. Notons qu'on peut faire varier beaucoup le paramètre N_w sans modification sensible du résultat de la simulation, autre que l'aspect plus ou moins aigü du coude observé au seuil de l'avalanche. Dans ces conditions, les modélisations permettent d'obtenir les courbes présentées figures 2.19 et 2.20. Notons que l'idée sous-jacente à cette modélisation est que le taux de collisions ionisantes entre électrons et atomes de Rydberg est extrêmement grand, si bien qu'on considère qu'on peut multiplier le taux d'ionisation dû au rayonnement du corps noir, par le nombre d'électrons arrachés par chaque électron piégé : ceci décrit un phénomène d'ionisation en avalanche.

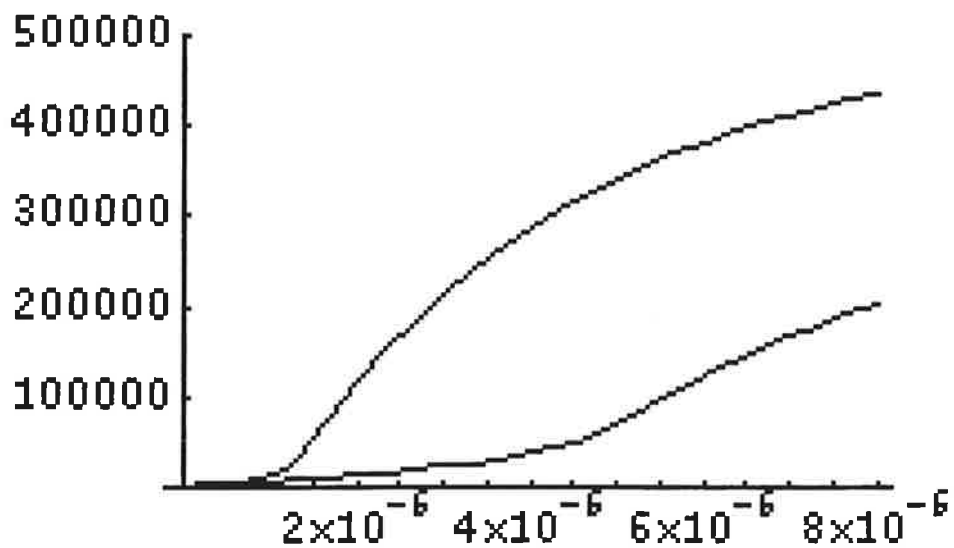
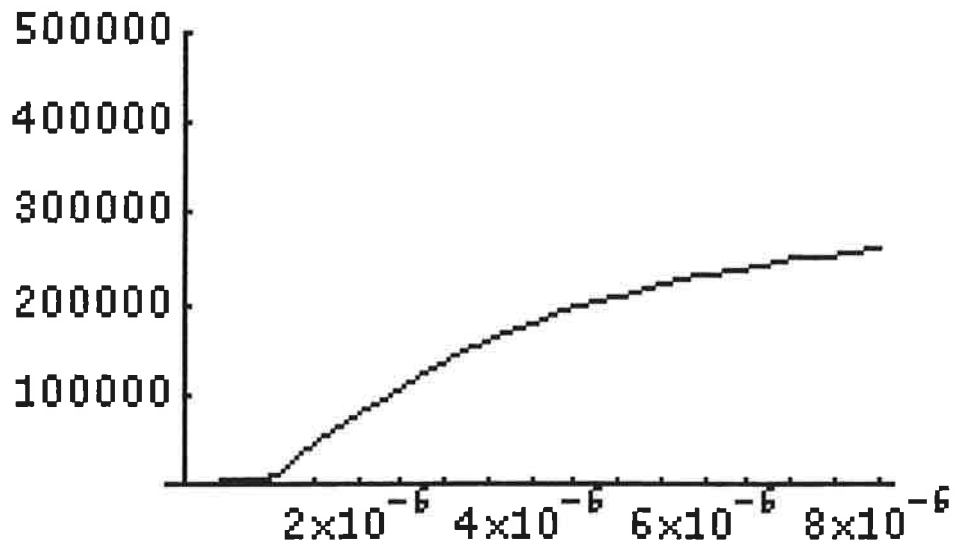


FIG. 2.20: Simulations du phénomène d'avalanche : en abscisse, temps en seconde ; en ordonnée, nombre d'ions. Sur la figure du bas, le phénomène d'avalanche est simulé pour deux densités différentes, correspondant à 300 000 et 500 000 atomes de Rydberg. Dans la partie supérieure, est montrée la même simulation pour 300 000 atomes de Rydberg, à ceci près que la répulsion coulombienne est ignorée. On voit ainsi que pour comprendre pourquoi l'avalanche est presque complètement supprimée lorsque la densité est trop faible, il est nécessaire de prendre en compte la répulsion, coulombienne entre les ions produits aux temps courts..

2.5 Dynamique de formation du plasma

Les considérations du paragraphe précédent nous amènent à penser que ce qui limite la vitesse de formation du plasma, c'est l'énergie cinétique des électrons. Schématiquement, un flux d'électrons d'énergie cinétique proche de 500 cm^{-1} , produits par ionisation d'atomes de Rydberg par absorption du rayonnement du corps noir, est piégé par la charge d'espace. Chaque électron piégé est capable d'ioniser quelques atomes de Rydberg, ce qui fait que le taux d'ionisation augmente fortement. Il s'agit d'un phénomène d'avalanche, limité par l'énergie des électrons.

Pour accélérer la formation du plasma, nous avons eu l'idée de chauffer les électrons artificiellement, à l'aide de champ radiofréquence. Ce champ a pour effet de chauffer les électrons qui sont piégés dans la charge d'espace, comme nous allons le voir au paragraphe suivant. L'idée est ici de chauffer continuellement les électrons de la charge d'espace, de manière à leur donner une énergie suffisante pour ioniser plusieurs atomes chacun. Les expériences concernant l'effet du champ radiofréquence sur la transformation du gaz de Rydberg en plasma ont toutes été faites avec l'atome de rubidium, au cours de mon séjour à l'Université de Virginie.

2.5.1 Effet d'une radiofréquence sur la dynamique de formation du plasma

a) Effet d'un champ radiofréquence sur un électron libre

Un électron dans un champ radiofréquence subit une force $e\vec{E}\cos(\omega t)$, si bien que

$$m\frac{d^2\vec{x}}{dt^2} = e\vec{E}\cos(\omega t)$$

et par intégration on obtient (on note $E = |\vec{E}|$)

$$\frac{1}{2}m\langle v^2 \rangle = \frac{e^2 E^2}{4m\omega^2} \quad (2.8)$$

On peut par ailleurs évaluer l'amplitude du mouvement des électrons sous l'effet du champ radiofréquence :

$$\Delta x = \frac{eE}{m\omega^2} \quad (2.9)$$

Pour un champ de 0.5 V/cm et de fréquence 100 MHz par exemple, l'énergie pondéromotrice vaut $2,5 \text{ cm}^{-1}$ et l'amplitude du mouvement est de $20 \text{ }\mu\text{m}$.

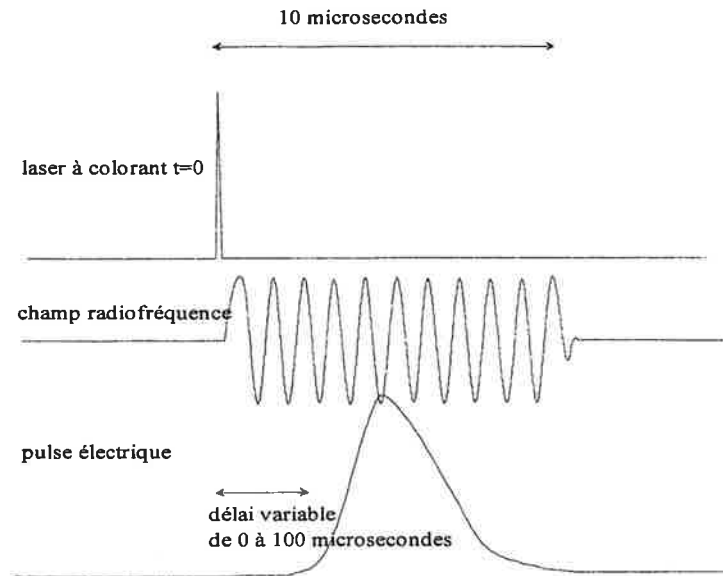


FIG. 2.21: Séquence temporelle pour l'étude de l'effet d'un champ radiofréquence sur la formation du plasma. On applique la radiofréquence pendant $10 \mu s$ après la formation des atomes de Rydberg. Une pulse de champ électrique positif est ensuite utilisé pour ioniser les atomes de Rydberg. Sur la figure, l'intensité et la période de la RF sont fortement augmentées pour améliorer la lisibilité.

b) Description de l'expérience

La radiofréquence (RF) est appliquée sur une des grilles qui entourent le piège magnéto-optique. Le dispositif est précisé figure 1.11. La radiofréquence est appliquée après l'excitation des atomes de Rydberg, de façon à ne pas perturber leur production. Pour commuter la radiofréquence, on utilise un mélangeur de fréquences, que l'on pilote par un TTL. Un générateur de RF suivi d'un amplificateur 40 dB permet d'obtenir, dans la gamme 50 MHz à 400 MHz, des champs de radiofréquence allant jusqu'à $2,5 \text{ V/cm}$.

Deux phénomènes sont observés. Le premier est une inhibition de la formation du plasma dans les premières microsecondes après que la charge d'espace a été construite. Il s'agit probablement d'un phénomène d'évaporation d'électrons très légèrement piégés dans la charge d'espace, qui sont précisément ceux qui peuvent ioniser les atomes de Rydberg.

Le deuxième effet, bien plus marqué, est une augmentation de la vitesse de formation du plasma : une fois le seuil de l'avalanche atteint, l'ionisation de l'ensemble des atomes de Rydberg est réalisée en environ $1 \mu s$.

Influence de l'intensité de la RF. L'intensité du champ radio-fréquence appliqué est bien contrôlée, puisqu'elle est donnée par le quotient de l'amplitude générée par la source (signal mesuré sur un oscilloscope suffisamment rapide), par la distance entre les deux grilles qui entourent le piège magnéto-optique.

Pour une intensité de l'ordre de 0.5 V/cm du champ radiofréquence de 100 MHz, l'effet est très

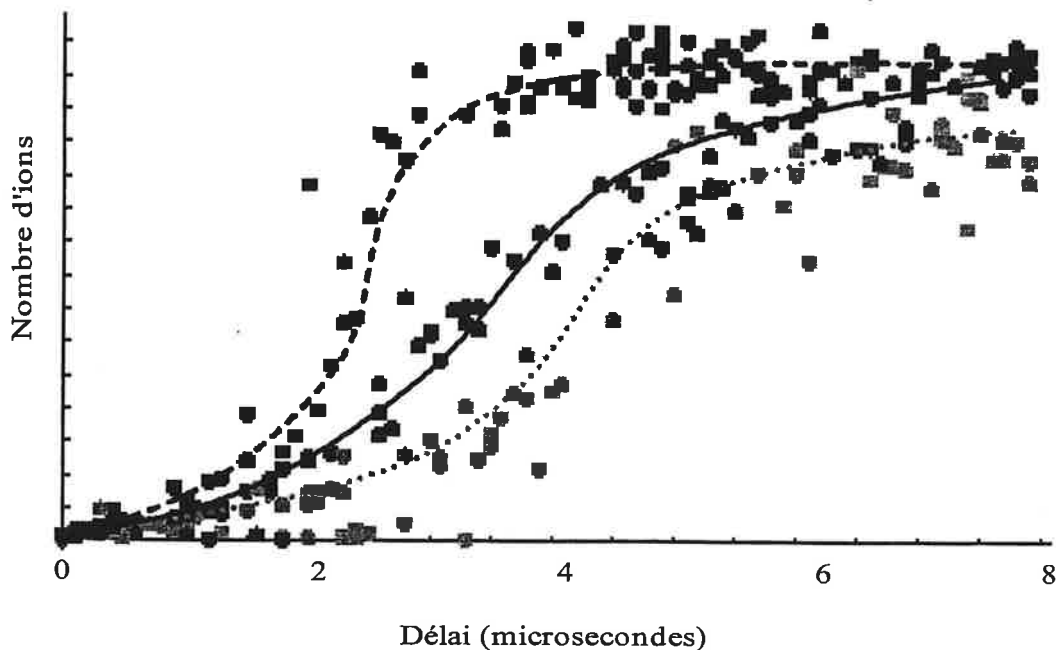


FIG. 2.22: Effet d'une RF sur la dynamique de formation du plasma. La fréquence de la RF est ici de 100 MHz : En noir, sans RF ; En bleu, 0,1 V/cm ; En rouge, 0,47 V/cm ; En vert, 1,3 V/cm. Les lignes dessinées sur ce graphe ne sont pas le résultat d'un fit ; elles sont dessinées à la main pour aider l'oeil à comprendre la figure lorsqu'elle est imprimée en noir et blanc.

net : on observe une augmentation de la vitesse de formation du plasma, après que le seuil a été atteint. La RF ne semble cependant pas modifier le taux initial d'ionisation. Pour des intensités RF plus faibles, l'effet est plus faible ; il est indécélable pour une amplitude inférieure à 0,2 V/cm. Pour des intensités plus fortes, typiquement supérieures à 1 V/cm, l'application de la RF ralentit la formation du plasma. Notons que pour des intensités de RF supérieures à 1V/cm, l'amplitude du mouvement communiqué aux électrons devient supérieure à la taille de l'échantillon d'atomes de Rydberg. Ceci peut expliquer une diminution du taux de collision avec les atomes de Rydberg, et donc un ralentissement de la formation du plasma.

Influence de la fréquence de la RF. Nous avons mené des expériences en faisant varier la fréquence du champ RF appliqué. Nous avons procédé en maintenant E/ω constant. C'est-à-dire que l'énergie pondéromotrice acquise par l'électron est la même. Des résultats typiques sont présentés figure 2.23. Pour des fréquences de RF comprises entre 70 et 150 MHz, l'effet du champ radio-fréquence est le même. Ce résultat est en accord avec le modèle du paragraphe 2.5.1. Pour des fréquences plus élevées, cependant, l'effet est différent. Pour 300 MHz, la formation du plasma semble légèrement retardée par rapport à la configuration sans RF. Plusieurs hypothèses peuvent expliquer une telle observation, sans qu'il soit facile de trancher en faveur de l'une ou de l'autre. On peut invoquer par exemple le fait que la région explorée par les électrons est plus petite lorsque la fréquence du champ radiofréquence est plus élevée. Peut-être la fréquence de la radiofréquence

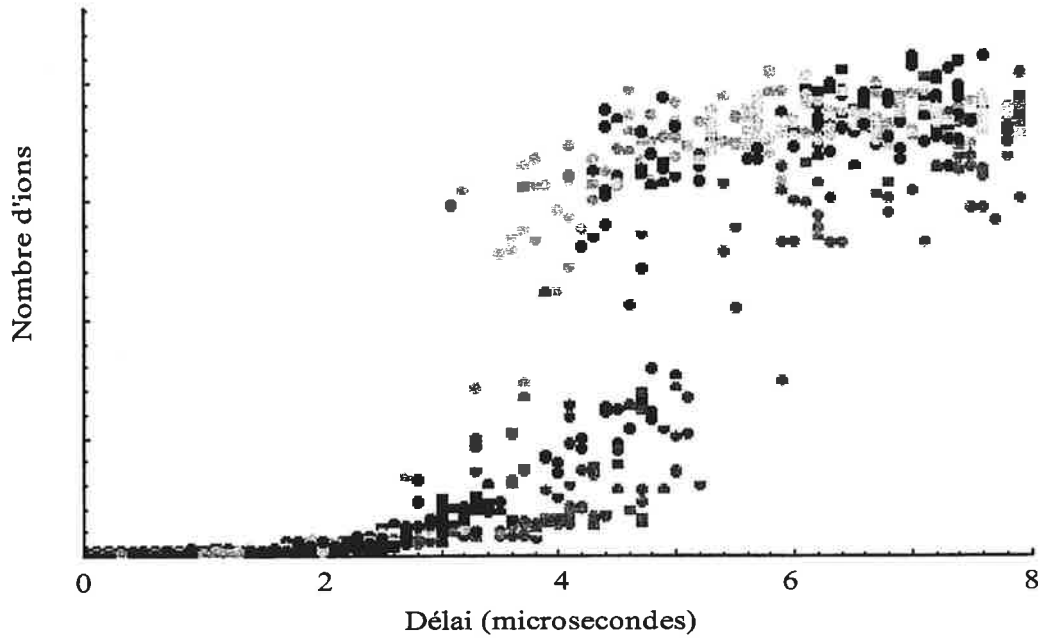


FIG. 2.23: Effet d'un champ radiofréquence sur la formation du plasma : étude en fonction de la fréquence de la RF. Nous opérons ici de manière à faire varier la fréquence de la RF, en gardant le rapport E/ω constant, c'est-à-dire l'énergie pondéromotrice constante. ; rouge, pas de RF ; noir, 70 MHz, cyan, 100 MHz, bleu, 150 MHz, vert, 300 MHz.

est-elle en résonance avec une fréquence propre du piège à électrons. D'autres expériences, utilisant notamment des fréquences RF plus élevées, pourraient trancher en faveur de l'une ou de l'autre de ces hypothèses.

c) Bilan

La présence d'un champ radiofréquence a un effet très sensible sur la formation du plasma. Elle ne modifie pas la première étape de l'évolution du gaz de Rydberg, pendant laquelle la charge d'espace se développe. Cependant, après le début de l'ionisation en avalanche, la présence d'un champ RF augmente la vitesse de transition du système vers un plasma. L'augmentation du nombre d'ions en fonction du temps est alors exponentielle (avant de saturer lorsque tous les atomes de Rydberg sont ionisés). Ceci indique que le paramètre limitant pour la formation du plasma est bien l'énergie cinétique des électrons, si bien qu'ajouter de l'énergie au système permet d'accélérer le processus d'ionisation en avalanche.

2.5.2 Formation du plasma en présence d'un champ électrique constant

Etudier la formation du plasma en présence d'un champ constant est une autre façon de sonder le rôle des électrons chauds dans l'ionisation des atomes de Rydberg. En présence d'un champ électrique, la potentiel de la charge d'espace est modifié. Comme le montre la figure 2.24,

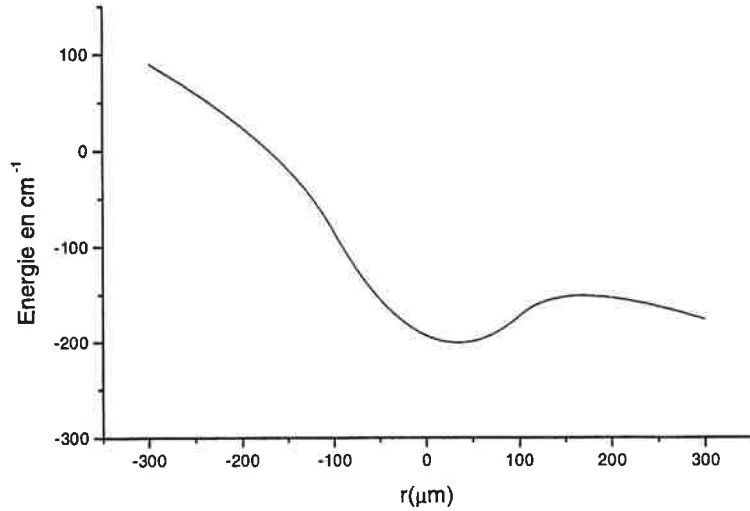


FIG. 2.24: Potentiel de la charge d'espace en présence d'un champ électrique constant de 0,5 V/cm.

les électrons les plus chauds sont expulsés de la charge d'espace par le champ constant.

Pour un champ constant suffisamment grand, il ne reste plus d'électrons suffisamment chauds pour ioniser les atomes de Rydberg, si bien que la formation du plasma est inhibée.

En pratique, ce phénomène se produit pour des valeurs de champ électrique de l'ordre de 0.5 V/cm. Comme le montre la figure 2.24, pour un tel champ, seuls les électrons d'énergie cinétique inférieure à environ 50 cm⁻¹ restent alors liés à la charge d'espace. Cette énergie est insuffisante pour ioniser des atomes de Rydberg, où les électrons sont typiquement liés par 70 cm⁻¹. Les électrons les moins profondément liés dans la charge d'espace en sont expulsés. La valeur expérimentale de 0.5V/cm pour le champ constant limite confirme la validité en ordre de grandeur de la charge d'espace que nous avons estimée.

Comme on le voit sur la figure 2.25, en présence d'un champ électrique constant, la formation du plasma est ralentie. Cela souligne la nécessité du piégeage des électrons pour la transition vers le plasma, et en particulier le rôle des électrons chauds dans le phénomène d'avalanche dans l'ionisation.

2.5.3 Modèle

Le modèle employé pour décrire le phénomène d'avalanche en présence de radiofréquence est légèrement différent du modèle décrit plus haut. Le taux d'ionisation en présence du champ radiofréquence est maintenant proportionnel au nombre d'électrons piégés ; il est aussi proportionnel à la fréquence du champ radiofréquence. On peut écrire :

$$\frac{\partial N_{ion}}{\partial t} = \xi(N_{at} - N_{ion}(t)) + \varsigma H(N_{ion}(t) - N_{seuil}) \left(\frac{N_{at} - N_{ion}(t)}{N_{at}} \right) N_{ion}(t)$$

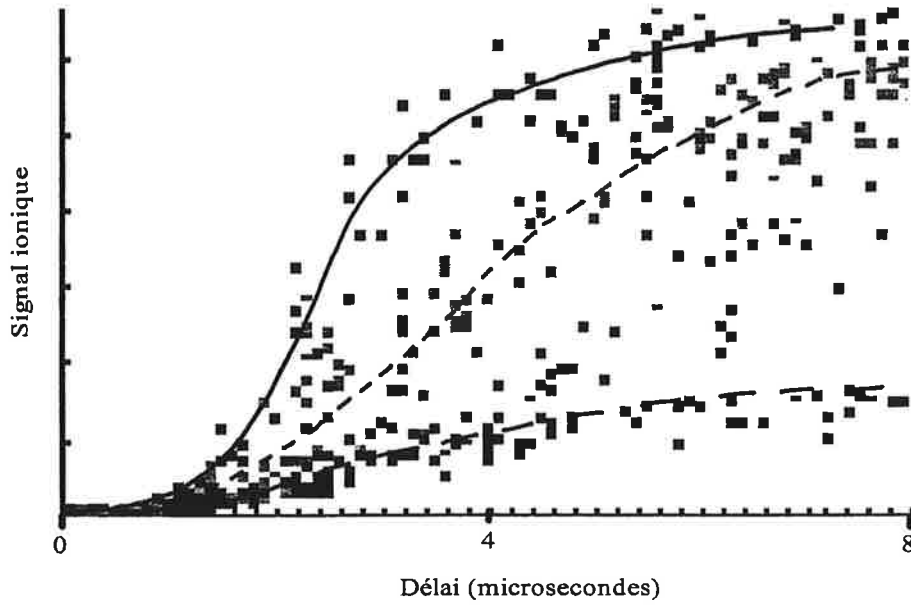


FIG. 2.25: *Etude temporelle de l'évolution du nombre d'ions, en présence d'un champ électrique constant. L'état excité est ici $48d$ (Rb). En noir : sans champ ; en vert, 0.25 V/cm ; en rouge, 0.5 V/cm .*

où ς est le taux de collisions ionisantes en présence de radiofréquence. Le résultat d'une simulation est présenté figure 2.26. On voit que l'effet de la radiofréquence est bien d'accélérer le phénomène d'avalanche : au dessus du seuil d'avalanche, le signal croît exponentiellement. Conformément aux observations expérimentales, il peut intervenir un léger retard dans l'apparition du plasma, dû au fait que les collisions électrons-atomes de Rydberg ne sont pas instantanées, mais dépendent du taux ς . Dans la simulation présentée ici (figure 2.26), $N_{at} = 500.000$, et $\xi = 15.000$ est le même taux d'ionisation que pour la situation "sans RF". Dans ces conditions, on peut évaluer ς d'après la fréquence de la RF et l'amplitude du mouvement des électrons sous son effet (équation 2.9) :

$$\varsigma \sim \frac{1}{2} a_0^2 n^4 \Delta x \omega n_{ryd} = a_0^2 n^4 \frac{eE}{2m_e \omega} n_{ryd} \sim 2.10^6 \text{ s}^{-1}$$

pour $n = 40$, $\omega/2\pi = 100 \text{ MHz}$, et une amplitude de RF de $E = 0,5 \text{ V/cm}$. On a pris $\varsigma = 2.10^6 \text{ s}^{-1}$ dans la simulation présentée figure 2.26.

L'ajout du champ radiofréquence accélère la formation du plasma. Plus précisément, le nombre d'ions produits devient proportionnel au nombre d'électron piégés, si bien que le signal ionique croît exponentiellement. Ceci est apparent sur les données expérimentales. Ce n'est pas le cas en l'absence d'un champ radiofréquence, lorsque l'évolution du système est libre. Alors, comme le montrent les figures 2.11 et 2.19, on observe une brisure de pente au moment du déclenchement de l'avalanche. Les modélisations réalisées permettent de confirmer, tant en présence qu'en absence

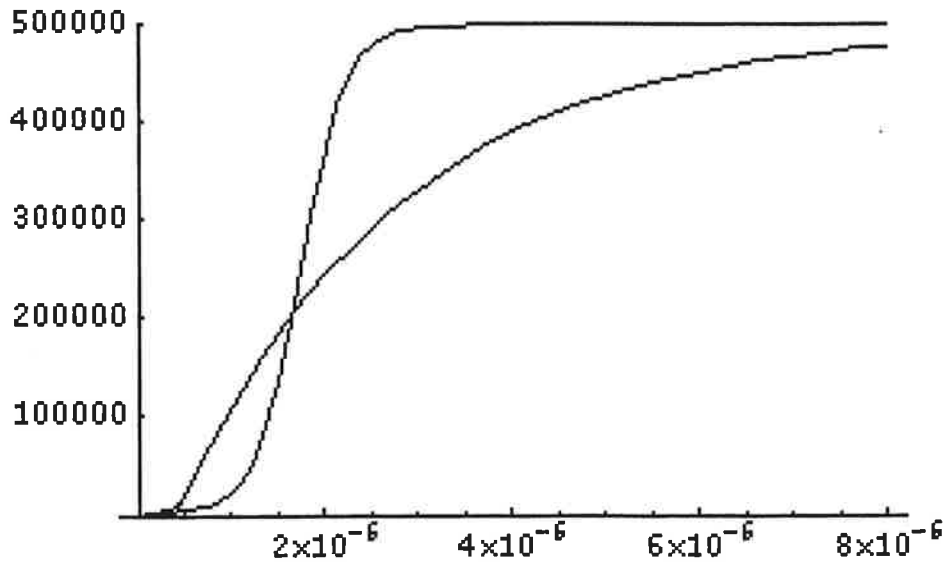


FIG. 2.26: Simulations du phénomène d'avalanche, sans champ radiofréquence (courbe en bas à droite), et en présence d'un champ radiofréquence (courbe en haut à droite) : en abscisse, temps en seconde; en ordonnée, nombre d'ions. En présence d'un champ radiofréquence, le phénomène d'avalanche peut (parfois) paraître retardé, mais il est ensuite accéléré.

du champ radiofréquence, le rôle prépondérant joué par le piégeage des électrons et par le taux de collisions entre électrons et atomes de Rydberg, ce qui valide le scénario que nous avons proposé.

2.6 Questions et perspectives

Si le scénario proposé semble bien rendre compte des observations expérimentales, de nombreuses questions restent posées en ce qui concerne le mécanisme précis d'évolution du gaz de Rydberg gelé vers un plasma ultra-froid. D'une part, l'état final du système est pour l'instant assez mal connu : en particulier, la valeur de la température électronique est encore mal contrôlée. Comme nous le verrons, le plasma est cependant très certainement un plasma ultra-froid, où la longueur d'écrantage est inférieure à la distance moyenne entre particules.

D'autres questions, portant sur le mécanisme de l'évolution du gaz de Rydberg vers un plasma ultra-froid restent posées. En particulier, dans le cadre théorique que nous avons détaillé ci-dessus, il semble difficile de comprendre le fait qu'à aucun moment on ne détecte d'atomes de Rydberg dans un autre état que celui de départ. De même, le rôle des atomes de Rydberg chauds dans l'évolution du système devra être étudié plus en détail dans l'avenir. Nous passons en revue ces interrogations dans les paragraphes qui suivent.

2.6.1 Propriétés du plasma formé

Nous avons jusqu'à présent décrit le mécanisme d'évolution du gaz de Rydberg gelé vers un plasma. L'analyse de l'évolution du système nous a amené à la conclusion qu'une charge d'espace se développe progressivement dans un premier temps, avant de créer un potentiel qui soit suffisamment profond pour devenir un piège à électrons.

Il se forme ensuite, par collisions entre électrons et atomes de Rydberg, un plasma. Le milieu est complètement ionisé, et globalement presque neutre. Le temps de vie du plasma est de l'ordre de $30 \mu s$. Plusieurs questions peuvent être posées à propos de l'état final du système. En particulier, quelle est la température électronique ? Qu'est ce qui détermine la durée de vie du plasma ?

a) Température électronique

Dans les expériences déjà citées portant sur un plasma ultra-froid de Xenon ([18], [16] et [23]) la température électronique est bien contrôlée : elle est déterminée par la différence d'énergie entre la fréquence laser de photoionisation et la limite d'ionisation. Les températures électroniques dans ces expériences varient entre 100 mK et 1000 K. La situation dans notre cas est différente, puisque quelques pourcents des électrons libres sont produits par absorption du rayonnement du corps noir (on peut évaluer leur énergie à 500 cm^{-1}), et tous les autres électrons sont produits par impact avec les premiers électrons. La manière la plus simple d'évaluer la température électronique finale consiste à considérer que les électrons "chauds" (500 cm^{-1}) partagent leur énergie avec autant d'électrons qu'il peuvent libérer, en perdant de son énergie cinétique pour chaque électron qu'il arrache. Cela signifie que la température électronique doit être de l'ordre d'une fraction de l'énergie de liaison initiale, c'est-à-dire quelques Kelvin. Si cette vision est exacte, plus l'état de Rydberg initial est excité, plus la température électronique est basse. On voit que, à la limite où le nombre quantique principal de l'atome de Rydberg excité tend vers l'infini, c'est-à-dire à la limite où on se rapproche de la limite d'ionisation, la température électronique finale tendrait vers 0.

Notons ici que le plasma produit ici, même s'il est plus chaud que celui créé dans le cas du xénon, reste très froid au regard de ce qu'on appelle usuellement un plasma froid ($T_e > 300K$). De plus, il apparaît, si on se reporte à la figure 2.2 qu'on doit se trouver dans une région où la longueur de Debye est inférieure à la distance moyenne entre particules.

b) Durée de vie

Le temps de vie du plasma obtenu est une observation expérimentale importante qui montre que la température électronique doit être très froide : l'obtention d'un piège à électrons, et la possibilité de garder les électrons au sein du plasma montre que les électrons ne peuvent être que très froids.

La décroissance du nombre d'électrons détectés en fonction du temps s'explique par l'expansion du plasma. Celle-ci ne peut être expliquée par l'expansion coulombienne puisque le plasma est presque neutre. Une telle expansion a été décrite dans le cadre du plasma ultra-froid de Xenon

déjà cité [16]. Dans cette référence, il est montré que les modèles usuels invoquant la pression des électrons ne suffisent pas à décrire l'expansion du plasma, car celui-ci est dans le cas présent fortement corrélé. Dans ce cas, la densité décroît d'un facteur 100 en 20 μs environ.

2.6.2 Transition vers un plasma

Le modèle de collisions entre électrons et atomes de Rydberg semble bien expliquer le phénomène d'évolution du gaz d'atomes de Rydberg gelé vers un plasma, même si l'accord entre notre modèle et les observations en ce qui concerne la rapidité du phénomène n'est que qualitatif. Un fait cependant se comprend mal si on se contente de cette explication : pourquoi n'observe-t-on jamais de peuplement d'autres niveaux de Rydberg ? Il semble difficile de l'expliquer si le processus consiste uniquement en des collisions binaires entre électrons et atomes de Rydberg. Nous allons maintenant, à titre d'hypothèse, examiner une autre possibilité d'explication pour l'évolution d'un gaz de Rydberg vers un plasma. Le modèle envisagé ici est très spéculatif et il doit être considéré avec beaucoup de précautions. Dans cette optique, le gaz de Rydberg gelé subit une transition collective et se transforme en plasma ultra-froid. Il apparaît en effet, comme nous allons le voir maintenant, qu'un plasma où ions et électrons sont ultra-froids peut avoir, du fait de l'énergie de corrélation, une énergie interne inférieure à celle d'un gaz d'atomes de Rydberg froids indépendants, pourvu que la densité soit suffisamment forte.

a) Bilan d'énergie

Le système d'atomes de Rydberg froids a, si on néglige les interactions entre atomes, une énergie

$$U_0 = n_e E(n) = n_e \left\langle \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 r} \right\rangle$$

où $E(n)$ est donnée par l'équation 1.9. Cette énergie est déterminée par la distance moyenne entre un électron et le noyau auquel il est lié, c'est-à-dire par la taille de l'atome de Rydberg.

Le plasma ultra-froid formé est quant à lui caractérisé par une énergie donnée par l'équation 2.3, qui est l'énergie de corrélation du plasma. Cette énergie est l'énergie de Coulomb, pour une distance qui vaut la longueur de Debye. La comparaison de ces deux équations donne les conditions de formation spontanée du plasma, c'est-à-dire les conditions pour lesquelles un plasma froid est plus stable qu'un gaz de Rydberg gelé. :

$$n_e > \frac{R_y^2}{n^4} \frac{16\pi^2 \epsilon_0^3 k_B T_e}{e^6}$$

Pour une densité inférieure à cette valeur, le plasma a une énergie interne plus grande que le gaz de Rydberg. Pour une densité supérieure, le plasma a une énergie inférieure ; alors, une formation spontanée du plasma est envisageable.

Dans le cadre de notre expérience, T_e est un paramètre inconnu. Pour une densité typique de 10^{10} cm^{-3} pour les atomes de Rydberg de nombre quantique principal $n=40$, la température électronique nécessaire pour que le plasma soit plus stable que le gaz d'atomes de Rydberg gelé est de 100 mK.

b) Mécanisme proposé

La situation décrite au paragraphe précédent correspond au cas où la longueur de Debye égale la distance moyenne entre un électron et l'ion autour duquel il gravite. Dans ce cas, le noyau d'un atome de Rydberg qui serait plongé dans le plasma, serait lui-même écranté par les charges du plasma, si bien qu'il serait automatiquement ionisé. Il serait en quelque sorte "dilué" dans le plasma. Aucun autre état de Rydberg ne pourrait alors être produit.

Alors, si localement, un plasma se forme, avec des propriétés adéquates (en terme de densité et de température électronique), tout Rydberg plongé dans ce plasma sera automatiquement ionisé : la charge de l'ion sera écrantée du point de vue de l'électron. Le mécanisme que je propose ici consiste en une propagation du plasma depuis un point donné de l'espace. Cette propagation est spontanée, puisque le système va vers un état plus stable. Il s'agit bien entendu d'un mécanisme spéculatif qui nécessite d'être étayé. Un tel phénomène expliquerait qu'on ne détecte jamais d'atomes de Rydberg dans d'autres états que celui initialement peuplé.

c) Vérification expérimentale

Si l'hypothèse avancée ici est juste, le seuil en densité critique pour la formation de plasma varie en n^{-4} . Il s'agirait d'une transition collective, depuis un gaz de Rydberg gelé, vers un plasma ultra-froid. Cependant, même si l'hypothèse proposée s'avérait juste, un point cependant reste très obscur ; il s'agit de l'"étincelle" qui déclenche la formation du plasma. Où et pourquoi commence la transition vers un plasma ? Les collisions avec les électrons piégés par la charge d'espace pourraient expliquer le démarrage du processus.

Notons que ce point de vue présente certaines similarités avec certaines hypothèses récemment formulées dans la référence [23] pour expliquer le fort taux de recombinaison observé dans un plasma ultra-froid. Les auteurs soulignent que ce taux de recombinaison peut difficilement être expliqué par la théorie usuelle de recombinaison, car la recombinaison s'effectue vers des niveaux de Rydberg d'autant plus profonds que l'énergie cinétique des électrons est *faible*. Dans la vision que nous présentons ici, on peut envisager que, au cours de l'expansion du plasma, les électrons se recombinent aux atomes de Rydberg lorsque la densité devient plus faible et donc lorsque la longueur d'écrantage de Debye plus grande. Et ce, d'autant plus facilement que la température électronique est faible. Dans les expériences à venir, nous essayerons d'observer la recombinaison des atomes de Rydberg dans le plasma.

2.6.3 Conclusion

Nous avons décrit dans ce chapitre la transition d'un gaz de Rydberg gelé vers un plasma ultra-froid. Dans les premières microsecondes, quelques atomes de Rydberg sont ionisés (environ 1% de l'ensemble des atomes de Rydberg), soit du fait de collisions avec des atomes de Rydberg à température ambiante, soit parce qu'ils absorbent des photons du rayonnement du corps noir à 300K. Il se développe ainsi une charge d'espace. Quand celle-ci est suffisamment profonde, des électrons (eux-aussi arrachés aux atomes de Rydberg par le rayonnement du corps noir) sont alors piégés dans la charge d'espace. Les collisions entre électrons et atomes de Rydberg provoquent l'ionisation rapide de l'ensemble des atomes.

Nous avons décrit dans ce chapitre l'ensemble des observations expérimentales qui permettent de caractériser l'ionisation par avalanche du gaz d'atomes de Rydberg gelé. Ces observations sont bien reproduites par un modèle simple faisant intervenir les collisions entre électrons et atomes de Rydberg.

Un des points intéressants des expériences que nous avons menées est qu'elles mettent en évidence la formation d'un piège à électrons. Notons que cela ne signifie pas que le théorème de Earnshaw, qui montre l'impossibilité de piéger un corps chargé sous l'effet des seules forces électrostatiques, est violé. Le piège à électrons obtenu n'est en effet stable que tant que la répulsion coulombienne entre ions est négligeable. Le temps de vie du piège obtenu (quelques dizaines de microsecondes) est cependant long au vu de la fugacité des électrons.

Très vite cependant, du fait de l'ionisation de l'ensemble des atomes de Rydberg, le système tend vers un état presque neutre : le surplus de charge positive ne représente en effet qu'environ 1% de l'ensemble des charges libres en présence. La situation est ici très intéressante, car à l'origine le système est constitué principalement de particules neutres indépendantes, et il peut être décrit en termes de collision ou d'interactions entre atomes. Puis le système se transforme en plasma. On sait que les comportements collectifs (écranage, ondes électroniques...) sont alors prépondérants. Le formalisme dans lequel ce système peut être décrit change alors complètement. Il peut par exemple être abordé en terme d'équations hydro-dynamiques.

La situation est d'autant plus intéressante que le type de plasma obtenu est lui même d'une nature très particulière. Nous avons déjà dit que la température électronique finale est mal connue. On peut cependant l'évaluer à une fraction de l'énergie de liaison initiale dans l'atome de Rydberg. La température électronique doit être de l'ordre de 10 K. Comme nous l'avons vu en introduction de ce chapitre, cela signifie que la distance d'écranage dans le plasma (longueur de Debye) est inférieure à la distance moyenne entre particules. Dans ces conditions, en première approximation, les électrons du plasma se meuvent presque librement, en ressentant un champ moyen nul. En réalité, pour ces plasmas l'énergie de Coulomb moyenne entre particules est supérieure à l'énergie thermique. Il en découle que les positions des ions et des électrons sont probablement assez fortement corrélées. On peut s'attendre alors à observer dans le plasma des phénomènes de cristallisation, dans des conditions qui restent à préciser.

Les expériences décrites ici sont donc un exemple supplémentaire montrant combien les atomes

de Rydberg froids sont des objets d'expérience propices à l'étude de l'apparition d'effets collectifs dans les milieux dilués. Ils permettent le développement d'une physique très riche et variée, à la frontière entre de nombreux domaines (physique atomique, physique des plasmas, physique des fluides, physique des solides - amorphes ou cristallins). Une des questions ouvertes est notamment la possibilité d'observer une transition de Mott [83] dans un tel système. On s'attend en effet, lorsque la taille des atomes devient comparable à la distance moyenne entre particules, à observer une délocalisation des électrons. Ceci est l'analogie d'une transition isolant-métal dans un cristal.

Dans notre situation, le phénomène observé n'est pas une transition de Mott. Comme nous l'avons mis en évidence, l'évolution du système se produit car de l'énergie est apportée de l'extérieur au système. Il ne s'agit pas d'une transition de phase. L'évolution du gaz de Rydberg gelé vers un plasma limite donc les possibilités d'observer une transition de Mott dans un tel système. Nous avons cependant vu qu'il existe une façon de retarder l'apparition du plasma : si on supprime les collisions avec les atomes de Rydberg chauds, l'apparition du plasma est retardée, voire supprimée. Notons que ceci souligne combien il est important que les atomes de Rydberg soient froids, de façon à ce que les collisions entre atomes de Rydberg soient négligeables. Reste cependant l'ionisation des atomes de Rydberg par le rayonnement du corps noir, qui conduit, pour des atomes de Rydberg suffisamment excités, à la formation du plasma.

Dans notre situation, où la densité d'atomes de Rydberg est de l'ordre de $5 \cdot 10^9 \text{ cm}^{-3}$, la distance moyenne entre particules est de l'ordre de $3 \mu\text{m}$. Pour former des atomes de Rydberg dont la taille soit comparable à cette distance, il faudrait former des atomes de nombre quantique principal supérieur à 300 (c'est-à-dire seulement $1,5 \text{ cm}^{-1}$ sous la limite d'ionisation). Tant que le rayonnement du corps noir à 300 K est présent, un tel système évoluera extrêmement rapidement vers un plasma. Même si l'enceinte est refroidie à l'Helium liquide, les photons du corps noir (dont l'énergie est alors de l'ordre de 5 cm^{-1}) pourraient stimuler la transformation du gaz de Rydberg en un plasma. Cependant, la densité de photons d'énergie 5 cm^{-1} pour le rayonnement du corps noir à 3 K est réduite d'un facteur 10^6 par rapport à la densité de photons à 500 cm^{-1} du corps noir à 300 K. Dans ces conditions, des simulations similaires à celles exposées plus haut montrent que la charge d'espace critique à partir de laquelle la transition vers le plasma se produit n'est pas atteinte avant plusieurs dizaines de microsecondes, si bien qu'une transition de Mott peut être envisagée dans cette situation. Une autre voie pour observer une transition de Mott est d'obtenir des gaz en même temps froids et bien plus denses qu'un piège magnéto-optique. Ces deux propriétés sont bien sûr remplies par un condensat de Bose-Einstein. Dans un condensat, si on forme des atomes de Rydberg, leur densité doit pouvoir atteindre 10^{14} cm^{-3} . La distance entre particules est alors typiquement de $0,1 \mu\text{m}$. Si on excite les atomes de Rydberg l'état dans $n=50$, la taille des particules sera de l'ordre de la distance interatomique. Si on excite les atomes de Rydberg depuis un condensat de 100 000 atomes confinés dans un rayon de $5 \mu\text{m}$, la transition du gaz de Rydberg gelé vers un plasma ne devrait se produire qu'après un retard supérieur à la microseconde. Un tel système devrait donc être un outil idéal pour l'observation d'une transition de Mott.

Chapitre 3

Détermination des paramètres collisionnels de l'atome de césium par spectroscopie de photoassociation

Ces dernières années, la thématique des collisions binaires entre atomes froids a fait l'objet d'un intérêt croissant, dû en particulier au rôle qu'elles jouent dans les expériences visant la réalisation de condensats de Bose-Einstein. Comme nous l'avons montré au chapitre 1, la longueur de diffusion caractérise à très basse température la collision entre deux atomes. Si on considère deux atomes dans une voie de collision donnée, on montre en effet (voir paragraphe 1.3.1) que la fonction d'onde des deux atomes en collision à longue distance peut s'écrire :

$$G_{coll}(R) = \sqrt{\frac{2\mu}{\pi\hbar^2 k^2}} \sin(k(R - a))$$

où a est la longueur de diffusion de la voie de collision et $\frac{\hbar^2 k^2}{2\mu} = E$, où E est l'énergie de collision. La section efficace de collision entre deux atomes s'écrit :

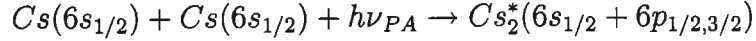
$$\sigma(k) = \frac{8\pi a^2}{1 + k^2 a^2}$$

La valeur absolue de la longueur de diffusion détermine donc complètement à très basse température ($k^2 a^2 \ll 1$) le taux de collisions élastiques binaires. Par ailleurs, le signe de la longueur de diffusion détermine la stabilité d'un condensat de Bose-Einstein, ce qui donne une importance cruciale à la détermination précise de la longueur de diffusion et en particulier de son signe.

Contrairement aux longueurs de diffusion des autres atomes alcalins, la valeur des longueurs de diffusion de l'atome de césium fait encore l'objet d'un débat ouvert. C'est le cas en particulier de la longueur de diffusion triplet : à cause de sa très grande valeur absolue, mise en évidence notamment lors d'expériences de refroidissement évaporatif [40], sa détermination précise nécessite, soit une très bonne connaissance des potentiels moléculaires fondamentaux, soit, au moins, une

très bonne connaissance des paramètres asymptotiques. Plusieurs expériences sont aujourd'hui en cours visant à la réalisation d'un condensat de Bose Einstein avec l'atome de césium. Dans cette perspective, déterminer les longueurs de diffusion de cet atome est un enjeu important.

Nous présentons ici deux méthodes de détermination des longueurs de diffusion. Toutes deux reposent sur des expériences de spectroscopie de photoassociation. La réaction de photoassociation a été présentée en détail au premier chapitre. Rappelons ici qu'elle consiste dans le cas du césium à exciter, avec un laser de photoassociation, à partir d'une paire d'atomes en collision, une molécule excitée dans un niveau asymptotiquement corrélé à l'une des limites de dissociation $6s+6p_{1/2,3/2}$.



Nous allons montrer que la spectroscopie de photoassociation est un outil particulièrement adapté à l'étude des longueurs de diffusion. La raison principale en est que la réaction de photoassociation est efficace principalement à grande distance, car la probabilité de présence des atomes à une distance interatomique R donnée varie approximativement en $4\pi R^2$: par conséquent, elle permet d'une part d'obtenir des informations sur la fonction d'onde de collision à longue distance, et d'autre part de peupler les derniers niveaux liés de puits moléculaires, qui sont des niveaux de grande élongation. Comme il est montré au paragraphe A.5.2, la longueur de diffusion est elle-même un paramètre qui résume à longue distance les interactions à courte distance.

La première expérience que nous avons mise en oeuvre, analogue à des expériences déjà réalisées dans le cas du rubidium [56] et du lithium [55], consiste en l'étude des modulations d'intensité dans un spectre de photoassociation, c'est-à-dire des variations du taux de photoassociation, en fonction du niveau vibrationnel excité. Comme nous l'avons montré au premier chapitre, le taux de photoassociation est proportionnel au carré du recouvrement entre la fonction d'onde des atomes en collision et la fonction d'onde du niveau excité : le taux de photoassociation calculé dans le cadre du modèle perturbatif (rappelé en B) est en très bon accord avec les résultats expérimentaux [10]. Pour des niveaux vibrationnels excités suffisamment élevés, le taux de photoassociation est proportionnel à la densité de probabilité de présence des atomes à une distance égale au point tournant externe de la molécule excitée.

$$\Gamma_{PA} \propto |\Psi(R_0^n)|^2$$

Cette formule est approchée : plus généralement, le taux de photoassociation est proportionnel au carré de l'intégrale de recouvrement entre la fonction d'onde radiale de collision, et la fonction d'onde radiale excitée. Les variations du taux de photoassociation en fonction du niveau vibrationnel final, qui sont dues aux modifications des intégrales de recouvrement, permettent de retracer les modulations spatiales de la fonction d'onde des atomes en collision, et de déterminer la longueur de diffusion des atomes en collision.

Je montrerai dans ce chapitre une mesure la longueur de diffusion de l'état triplet du césium, effectuée en analysant un spectre de photoassociation d'atomes polarisés dans $F=4$, $m_F = 4$.

L'intérêt de cette méthode pour déterminer la longueur de diffusion est que tous les paramètres nécessaires à l'analyse théorique sont déduits de l'expérience; elle ne nécessite le calcul d'aucun potentiel moléculaire. Dans un premier temps, un spectre de photoassociation de l'état 0_g^- corrélé à la limite de dissociation $6s+6p_{3/2}$ a été réalisé. Par un traitement semi-classique de type R.K.R. (que nous décrirons dans la première partie de ce chapitre), on peut déduire de ce spectre les valeurs des points tournants internes et externes R_0^n de l'état excité. Dans le potentiel ainsi construit, on peut alors calculer numériquement les fonctions d'onde des niveaux vibrationnels. Dans un second temps, le spectre de photoassociation 0_g^- a été repris, mais cette fois-ci en utilisant des atomes polarisés dans l'état $F=4, m_F = 4$. Des modulations en intensité du spectre obtenu, on déduit les modulations de la fonction d'onde $|\Psi(R_0^n)|^2$. Un calcul purement asymptotique permet ensuite de déterminer à la fois la longueur de diffusion et le paramètre asymptotique d'interaction de Van-der-Waals C_6 . Seuls les paramètres C_8, C_{10} , et l'échange, qui ont peu d'influence sur le résultat final, sont empruntés à la littérature.

Après avoir ainsi déterminé la longueur de diffusion triplet du césium, nous avons cherché à déterminer la longueur de diffusion des atomes de césium dans l'état $F=3, m_F = 3$, en utilisant la même méthode. Nous avons donc ensuite réalisé la même expérience en photoassociant des atomes polarisés dans l'état $F=3, m_F=3$. Contrairement à l'état triplet, la voie de collision des atomes préparés dans $F=3, m_F = 3$ est une voie couplée. De ce fait, l'analyse des modulations du spectre obtenu est plus compliquée; elle est encore en cours à ce jour; je présente ici une première analyse du spectre obtenu. Je montrerai que la longueur de diffusion de l'état $F=3, m_F = 3$ est, comme la longueur de diffusion triplet, très grande en valeur absolue. La même expérience a été réalisée en présence de trois champs magnétiques différents. Ceci nous a permis de mettre en évidence les modifications de la longueur de diffusion de l'état $F=3, m_F = 3$, lorsqu'on varie le champ magnétique dans lequel l'expérience est réalisée, au voisinage d'une résonance de Feshbach. Dans cette expérience, un niveau moléculaire lié est mis à résonance avec l'énergie de collision des atomes en utilisant un champ magnétique. Conformément aux prédictions, nous avons ainsi observé un déphasage $\delta(B)$ de la fonction d'onde à longue distance, symptomatique de la variation de la longueur de diffusion lors du passage de la résonance. Le déphasage dépend continuellement du champ magnétique B . Nous avons observé un déphasage de π lorsque le champ magnétique passe de 7 à 30 Gauss. Ceci signifie qu'on peut contrôler continuellement la longueur de diffusion des atomes polarisés dans l'état $F=3, m_F=3$, entre $-\infty$ et $+\infty$, en passant par 0.

La seconde méthode de détermination de la longueur de diffusion que nous avons développée consiste en des expériences à deux couleurs, qu'on peut appeler "Autler-Townes". La dernière partie de ce chapitre lui est consacrée. Un premier laser est maintenu en résonance avec une raie de photoassociation. Les molécules froides produites par désexcitation radiative des molécules excitées sont ionisées et détectées (voir le chapitre 4 pour plus de détails sur la formation de molécules froides). La fréquence d'un second laser est balayée continuellement. Par effet de déplacement lumineux, chaque fois qu'il est résonant avec une transition entre un niveau lié du fondamental et le niveau excité, le second laser "pousse" le niveau moléculaire excité hors de la résonance

de photoassociation, ce qui diminue l'efficacité de la photoassociation. Le nombre de molécules détectées diminue alors. Ceci permet la spectroscopie des derniers niveaux liés du fondamental, spectroscopie qui devrait conduire à une seconde détermination des longueurs de diffusion du césium. Cette seconde détermination sera indépendante de la première que nous avons réalisée. Elle devrait permettre la détermination de toutes les longueurs de diffusion.

Avant d'analyser ces deux types d'expériences, nous allons détailler quelles données spectroscopiques ont été obtenues par spectroscopie de photoassociation. Nous rappelons en outre le principe des méthodes semi-classiques d'analyse de données spectroscopiques.

3.1 La spectroscopie de photoassociation

3.1.1 Les spectres

Nous avons réalisé des expériences de spectroscopie de photoassociation en balayant la longueur d'onde du laser de photoassociation sous les limites de dissociation $6s+6p_{1/2}$ et $6s+6p_{3/2}$. Nous sondons principalement les derniers niveaux liés des états moléculaires, ce qui constitue l'originalité principale de la spectroscopie de photoassociation. Comme nous l'avons expliqué au chapitre 1, deux types de spectres sont à notre disposition : des spectres en diminution de fluorescence du piège, et des spectres en ions Cs_2^+ . Sont montrés dans les figures 3.2 et 3.3 les spectres obtenus, pour les deux limites de dissociation. Ces deux figures donnent une vision panoramique de toutes les données spectroscopiques obtenues.

Ces spectres sont réalisés au sein d'un piège magnéto-optique, dont le nombre d'atomes est de l'ordre de 50 millions d'atomes, la densité moyenne de $5 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-3}$ et la température $130 \mu\text{K}$. Le laser de photoassociation est un laser $\text{Sa} : \text{Ti}$, qui est balayable par tranches de 1 cm^{-1} environ, comme expliqué au paragraphe 1.3.3. L'intensité laser typiquement employée est de 450 W/cm^2 , même si nous sommes amenés à réduire cette intensité au voisinage de la limite de dissociation pour limiter la force de pression de radiation sur les atomes. La cadence d'acquisition est de 10 Hz pour le signal ionique (limitée par la cadence du laser YAG utilisé pour pomper le laser d'ionisation), et de 100 Hz pour les spectres en pertes de piège.

Pour calibrer les spectres, on prélève une partie du faisceau laser $\text{Sa} : \text{Ti}$, que l'on fait passer dans une cavité Fabry-Perot d'intervalle spectral libre $746 (\pm 1) \text{ MHz}$ et de finesse 12,5. La calibration du Fabry-Perot lui-même est obtenue en enregistrant simultanément un spectre de la structure hyperfine du césium en absorption saturée et les raies du Fabry-Perot. La calibration absolue des spectres de photoassociation est réalisée en enregistrant simultanément le spectre de photoassociation, et les raies d'absorption du $\text{Sa} : \text{Ti}$ dans une cellule d'iode chauffée à 750°C , raies tabulées dans la référence [33].

Tous les états attractifs qu'on peut atteindre par photoassociation peuvent être observés sur ces spectres : 1_g , 0_g^- , et 0_u^+ sous la limite $6s+6p_{1/2}$; 1_g , 1_u , 0_g^- , et 0_u^+ sous la limite $6s+6p_{3/2}$. Nous avons par ailleurs tenté de photoassocier des atomes dans l'état 1_u asymptotiquement relié à la

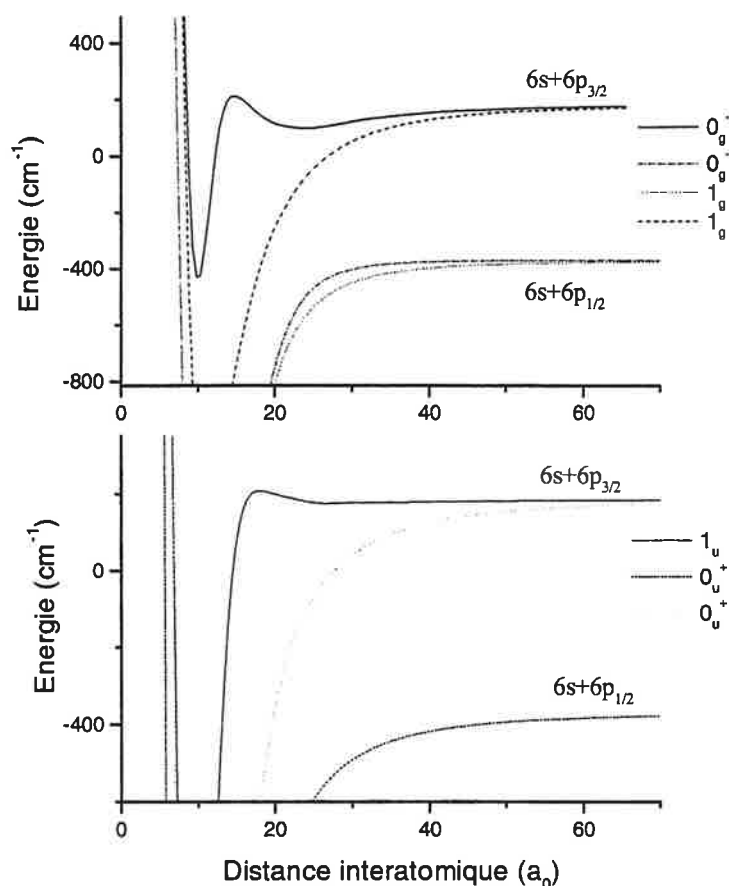


FIG. 3.1: *Potentiels attractifs photoassociables dans le cas du césium. Les états u et g ont été séparés.*

limite de dissociation $6s + 6p_{1/2}$, qui présente une légère barrière répulsive à longue distance, avec un maximum vers $28,5 a_0$ de 30 cm^{-1} ; aucun signal moléculaire, ni diminution de fluorescence ni ion Cs_2^+ n'a été observé. Les potentiels des états attractifs à longue distance pour lesquels des données de photoassociation ont pu être obtenues sont tracés sur la figure 3.1.

a) Sous la limite de dissociation $6s + 6p_{1/2}$

Nous avons réalisé la spectroscopie des états moléculaires attractifs asymptotiquement liés à $6s+6p_{1/2}$ sur 15 cm^{-1} environ. Les résultats ont été publiés [10] et l'analyse spectroscopique a été développée par Cyril Drag dans son manuscrit de thèse [4]. Je me contente donc ici d'en donner les résultats principaux. Comme le montre la figure 3.2, les spectres ionique et en pertes de piège sont très différents l'un de l'autre. Les progressions vibrationnelles des états obtenus par photoassociation sont toutes détectées dans le spectre de pertes de piège. La baisse de fluorescence atteint typiquement 10 à 20% pour des décalages à résonance inférieurs à 15 cm^{-1} . Seules certaines raies vibrationnelles conduisent à la formation de molécules froides et à l'observation d'ions Cs_2^+ .

0_u^+ La largeur des raies de photoassociation, déterminée par la structure hyperfine, est de 200 MHz. 75 raies vibrationnelles sont observées en pertes de piège. Cette progression ne peut pas être précisément ajustée par une série LeRoy-Bernstein (voir paragraphe A.4.3). Comme nous le verrons au chapitre 4, ceci est dû à un couplage radial avec l'état 0_u^+ asymptotiquement relié à $6s+6p_{3/2}$. Ce couplage se traduit par ailleurs par la formation de molécules froides par désexcitation radiative. Des molécules froides sont détectées dans le spectre ionique pour plus de dix raies, dans une bande de fréquence de 3 cm^{-1} autour du décalage -7 cm^{-1} .

0_g^- La largeur des raies, due à la structure hyperfine, est de 200 MHz. 11 niveaux vibrationnels ont été observés en pertes de piège. Les énergies des niveaux vibrationnels ont été reproduites par une série du type LeRoy-Bernstein (voir équation A.8). Ceci a permis de vérifier que le terme dominant dans le développement multipolaire pour cet état est en $\frac{C_6}{R^6}$. La valeur expérimentale trouvée est $C_6^{\text{exp}} = -99900 \pm 6300 \text{ u.a.}$ Du fait de la grande valeur du C_6 , il existe plusieurs niveaux moléculaires de relativement grande élongation spatiale (entre 38 et 53 a_0), ce qui est favorable à la réaction de photoassociation a lieu. On observe aussi la formation de molécules froides, détectées par ionisation : le signal ionique est très faible, observé à environ -7 et -8 cm^{-1} .

1_g La largeur de raies de l'état 1_g est de 3 GHz, à cause de la structure hyperfine. 19 raies vibrationnelles ont été observées, dans l'intervalle $[-13, 5; -3, 5] \text{ cm}^{-1}$. Ces raies ne sont pas bien reproduites par un fit de type LeRoy-Bernstein. Notons cependant la difficulté à pointer les raies 1_g , qui sont très élargies (la largeur d'un niveau est de plus de 3 GHz, pour un écart typique entre deux niveaux vibrationnels de l'ordre de 10 GHz).

D'autre part, de nombreuses raies ioniques, qui semblent coïncider avec les raies 1_g , sont observées mais n'ont pas encore été expliquées ; elles présentent une largeur de raie beaucoup plus faible que celles observées dans le spectre de fluorescence.

b) Sous la limite de dissociation $6s + 6p_{3/2}$

Les spectres en fluorescence et ionique des états photoassociables sous la limite de dissociation $6s + 6p_{3/2}$ ont été obtenus il y a plus longtemps, avant le début de mon travail de thèse. Je n'ai pas participé à leur analyse spectroscopique. J'en rappelle cependant les résultats essentiels [34]. Le spectre obtenu est plus étendu que le spectre sous $p_{1/2}$; le spectre en pertes de piège s'étend sur 40 cm^{-1} : pour des décalages à plus grands, le taux de photoassociation est trop faible, si bien qu'on ne détecte plus de diminution de fluorescence. ; le spectre ionique s'étend quant à lui sur 80 cm^{-1} : tout le puits de potentiel 0_g^- externe est observé, y compris le niveau vibrationnel $v=0$. Les deux spectres sont très différents l'un de l'autre, de manière encore plus marquée que pour le cas du spectre sous la limite de dissociation $6s + 6p_{1/2}$. Dans le cas présent, les états 0_u^+ et 1_g ne sont détectés qu'en pertes de piège, tandis que 1_u ne donne lieu à diminution de fluorescence observée. Les différentes progressions vibrationnelles sont attribuées en comparant la largeur des raies de photoassociation aux largeurs attendues pour les différents états du fait de la structure

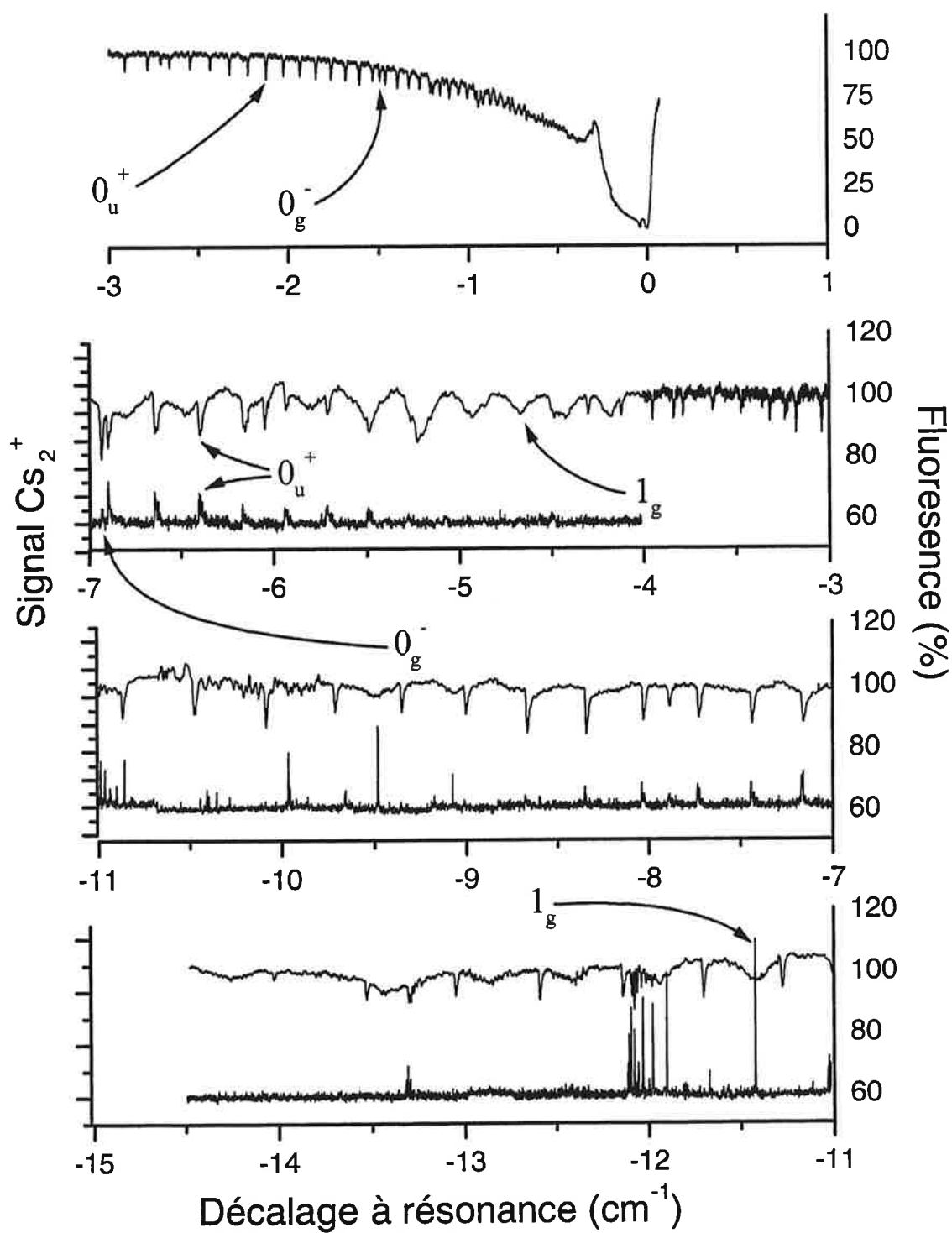


FIG. 3.2: Spectre ionique et spectre en pertes de piège sous la limite de dissociation $6s + 6p_{1/2}$.

hyperfine pour un décalage à résonance de 5 cm^{-1} (respectivement 6 GHz, 6 GHz, 1,5 GHz, et 0,6 GHz pour 1_g , 1_u , 0_u^+ , et 0_g^-).

0_u^+ Environ 80 raies vibrationnelles sont observées dans le spectre en pertes de piège, dans le fenêtre $[-45, -2] \text{ cm}^{-1}$. Aucune en spectre ionique. On a ajusté à la série vibrationnelle une loi de LeRoy-Bernstein, ce qui a permis de déterminer expérimentalement que le potentiel excité varie en $\frac{C_3}{R^3}$, avec $C_3^{\text{exp}}(0_u^+) = 16,1 \pm 0,4 \text{ u.a.}$

1_g L'analyse effectuée est équivalente à celle réalisée pour 0_u^+ . On observe de même 80 raies vibrationnelles, dans la même gamme de fréquence. $C_3^{\text{exp}}(1_g) = 15,72 \pm 0,05 \text{ u.a.}$

1_u L'état 1_u n'est pas observé dans les spectres de fluorescence. Pour les niveaux du fond du puits, l'énergie cinétique relative moyenne est inférieure à la vitesse de capture du piège magnéto-optique, si bien que la désexcitation radiative ne donne pas lieu à des pertes de piège observables. Les autres niveaux vibrationnels ont un taux de photoassociation trop faible pour pouvoir être observés en pertes de piège. La photoassociation de l'état 1_u donne lieu à de la production de molécules froides par désexcitation radiative. Celle-ci est trop faible pour se traduire par une baisse sensible de la fluorescence du piège. Cependant, les molécules froides produites peuvent être ionisées et détectées, si bien que l'état 1_u est présent dans le spectre ionique. On observe 13 raies vibrationnelles, situées dans la fenêtre $[-7; -2, 5] \text{ cm}^{-1}$; le niveau $v=0$ est observé. L'état 1_u est marqué par une structure de potentiel en double-puits. Les niveaux observés sont les niveaux vibrationnels liés dans le puits externe. Chaque raie vibrationnelle est marquée par une structure très complexe, où rotation et structure hyperfine ont des rôles très intriqués. L'analyse spectroscopique de cet état est évoquée plus en détail au paragraphe 3.3.1. On pourra aussi se reporter à la référence [43].

0_g^- De même, l'état 0_g^- est observé principalement dans le spectre ionique. Le spectre s'étend sur 80 cm^{-1} ; le niveau vibrationnel $v=0$ est observé. Quelques raies sont observées en pertes de piège. Comme pour l'état 1_u , l'état 0_g^- est marqué par une structure de potentiel en double puits. Les niveaux vibrationnels observés sont les niveaux du puits externe. Pour trois d'entre eux, un couplage résonant par effet tunnel a été mis en évidence avec des niveaux du puits interne. Pour rendre compte de la totalité du phénomène, il est nécessaire de considérer aussi un couplage électronique radial en zone interne [51]. Ce travail a fait l'objet de la thèse de M. Vatasescu [75].

L'étude spectroscopique des états 1_u et 0_g^- sera décrite plus avant dans la suite de ce manuscrit (voir paragraphes 3.2.1 et 3.3.1). Notons dès à présent un résultat particulièrement important, que je détaillerai au chapitre 4 : la structure en double puits de ces états implique que les fonctions d'onde radiales excitées présentent une forte amplitude aux distances intermédiaires ; de ce fait, la probabilité de désexcitation par émission spontanée dans les niveaux moléculaires fondamentaux est assez grande, ce qui explique la détection de molécules froides suite à la photoassociation de ces états, détection qui s'est avérée impossible pour les états 1_g et 0_u^+ .

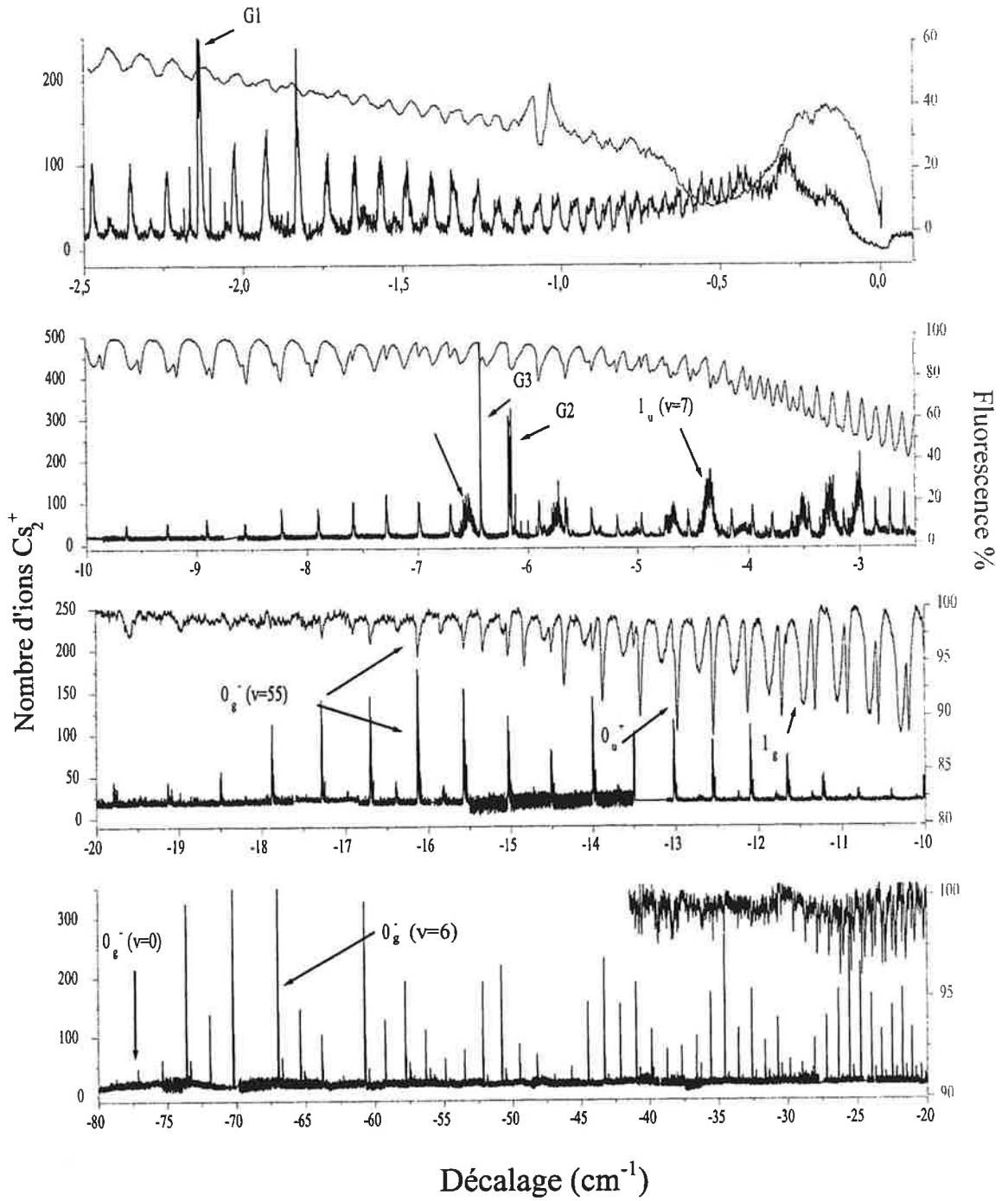


FIG. 3.3: Spectre ionique et spectre en pertes de piège sous la limite de dissociation $6s + 6p_{3/2}$.

3.1.2 Les données spectroscopiques

a) Etats photoassociés

Le tableau suivant résume les données spectroscopiques à notre disposition, portant sur les séries vibrationnelles observées.

	Type de puits	Niveaux observés	Paramètre asymptotique	Pertes de piège	Ionique
1_g sous $6p_{1/2}$	simple	19		oui	oui
0_g^- sous $6p_{1/2}$	simple	11	$C_6 = 99900 \pm 6300 \text{ u.a.}$	oui	oui
0_u^+ sous $6p_{1/2}$	simple	75	non LB (couplage radial)	oui	oui
1_g sous $6p_{3/2}$	simple	80	$C_3 = 15,72 \pm 0,05 \text{ u.a.}$	oui	non
1_u sous $6p_{3/2}$	double	13		non	oui
0_g^- sous $6p_{3/2}$	double	>140		oui	oui
0_u^+ sous $6p_{3/2}$	simple	80	$C_3 = 16,1 \pm 0,4 \text{ u.a.}$	oui	non

b) Structure rotationnelle

La structure rotationnelle n'est observée de façon résolue que pour l'état 0_g^- corrélé à la limite de dissociation $6s+6p_{3/2}$. Pour cet état, chaque raie vibrationnelle jusqu'à $v=74$ présente une structure rotationnelle résolue, qui suit la loi en énergie $B(v)J(J+1)$ prévue (voir paragraphe A.4.2). La structure rotationnelle se resserre quand v augmente, conformément à ce qu'on attend d'après la formule $B(v) = \left\langle \frac{\hbar^2}{2\mu R^2} \right\rangle$: plus le niveau vibrationnel est élevé, plus la distance interatomique moyenne est élevée, plus $B(v)$ est faible. Pour $v > 74$, la structure rotationnelle n'est plus résolue par rapport à la structure hyperfine.

Notons que la structure rotationnelle effectivement observée est peu étendue : aucune raie rotationnelle J supérieure à 8 n'est observée. Ceci s'explique par le fait que les atomes photoassociés sont froids, si bien que peu d'ondes partielles peuvent franchir les barrières rotationnelles dues au terme $\frac{l(l+1)\hbar^2}{2\mu R^2}$. On rappelle la règle de sélection établie paragraphe B.2.2, montrant, dans le cas de l'état 0_g^- , qu'une raie rotationnelle J est atteinte par photoassociation d'atomes dans les ondes partielles de collision $l = J, J \pm 2$.

On observe donc la photoassociation d'atomes dans des ondes partielles de collision inférieures ou égales à $l = 6$. Ceci correspond à une barrière rotationnelle de plus de 3 mK. Ceci est très froid bien entendu, mais cela est vingt fois plus chaud que la température atomique au sein du piège magnéto-optique. Ce phénomène a été interprété par le mécanisme suivant [30]. Certaines paires d'atomes sont photoassociées à très longue distance par les lasers du piège magnéto-optique. Si le décalage à résonance des lasers piège est de $2,5 \Gamma$, la distance typique à laquelle deux atomes sont photoassociés par ceux-ci est de 1700 u.a. ; sous l'effet du potentiel attractif en $\frac{C_3}{R^3}$ excité, les atomes sont alors attirés l'un vers l'autre et gagnent de l'énergie cinétique. Le gain de vitesse peut

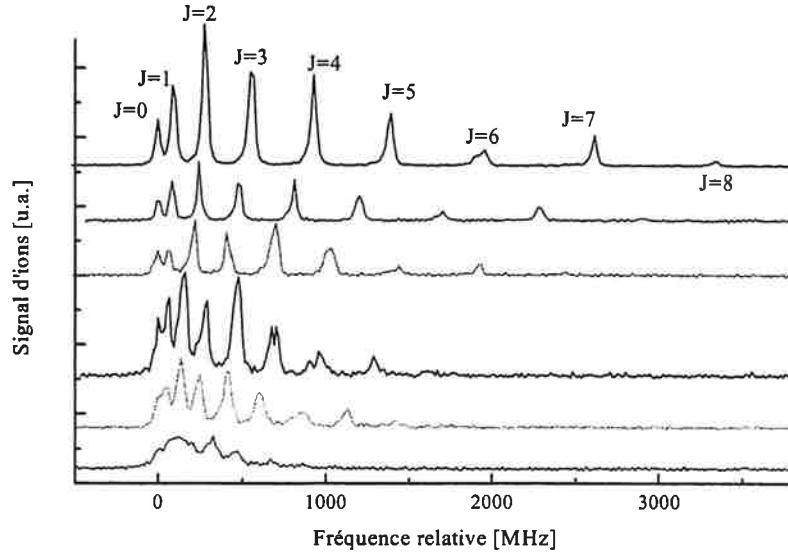


FIG. 3.4: Structure rotationnelle de différentes raies vibrationnelles de l'état 0_g^- . (du haut vers le bas : $v=4, 17, 33, 47, 63, 76$). La structure rotationnelle n'est plus résolue par rapport à la structure hyperfine pour $v > 74$.

s'exprimer simplement, si on suppose que la paire d'atomes reste $\tau = 30 \text{ ns}$ dans l'état moléculaire excité (durée de vie d'un atome dans l'état $6p$) :

$$\Delta v = \frac{3C_3}{\mu R^4} \tau$$

où μ est la masse réduite du césium. Dans ces conditions Δv est de l'ordre de 10 cm/s . Ce processus peut se répéter plusieurs fois, si bien que le gain de vitesse peut être suffisant pour permettre à ces paires d'atomes de franchir les barrières rotationnelles inférieures ou égales à $l = 6$. Ceci correspond à une température effective de 2 mK . Ce processus explique pourquoi on peut observer des raies rotationnelles jusqu'à $J=8$ dans l'état 0_g^- .

3.1.3 Les traitements semi-classiques

Nous décrivons ici brièvement les méthodes utilisées pour l'analyse des données spectroscopiques décrites ci-dessus. Il s'agit de méthodes d'analyse spectroscopique s'appuyant sur l'approximation WKB.

a) LeRoy-Bernstein

Comme je le rappelle au paragraphe A.4.3, LeRoy et Bernstein ont montré [2] que les énergies $E(v)$ des niveaux vibrationnels d'un potentiel moléculaire en $D - C_n/R^n$ suivent la loi suivante :

$$E(v) = D_e - \left[(v_D - v) \frac{(n-2)}{2n} \hbar \left(\frac{2\pi}{\mu} \right)^{1/2} \frac{\Gamma(1+1/n)}{\Gamma(1/2+1/n)} \frac{n}{C_n^{1/n}} \right]^{2n/(n-2)} \quad (3.1)$$

où Γ est la fonction d'Euler. Cette formule, qui s'appuie essentiellement sur l'approximation WKB, suppose que la partie interne du puits de potentiel moléculaire est fortement répulsive, si bien que l'essentiel de la différence de phase entre deux niveaux vibrationnels se construit au voisinage du point de rebroussement externe de la molécule.

b) Développement de Dunham

Comme il est expliqué au paragraphe A.4.2, on peut, au voisinage du rayon d'équilibre d'un potentiel moléculaire, exprimer les énergies propres de rotation-vibration par le développement de Dunham :

$$E(v, J) = U_e + \sum_{ij} Y_{ij} (v + \frac{1}{2})^i (J(J+1))^j \quad (3.2)$$

On note :

$$K_j(v) = \sum_i Y_{ij} (v + \frac{1}{2})^i$$

$K_0(v) = G(v)$ représentent les énergies sans rotation ($J = 0$) ; $K_1(v) = B(v)$ est la constante de rotation.

c) NDE (Near-Dissociation-Expansion)

Comme il a déjà été mentionné, la photoassociation permet la spectroscopie des niveaux vibrationnels très excités. Pour ceux-ci, le développement de Dunham n'est pas valable et, au voisinage de la limite de dissociation, on emploie la méthode NDE. Celle-ci repose sur la théorie de LeRoy Bernstein. Comme le montre la formule 3.1, on a une forme attendue :

$$K_0^\infty(v) = G^\infty(v) = D_e - X(n)(v_D - v)^{2n/(n-2)}$$

Comme l'a montré LeRoy [31], on peut de même calculer la constante rotationnelle dans les mêmes approximations. Le calcul consiste à évaluer $B(v) = \langle v | \frac{J(J+1)\hbar^2}{2\mu R^2} | v \rangle$, où $|v\rangle$ est la fonction d'onde semiclassique $|v\rangle = \frac{1}{\sqrt{p(R)}} \cos(\frac{1}{\hbar} \int p(R) dR - \frac{\pi}{4})$; ici $p(R) = \sqrt{2\mu(E(v) - C_n/R^n)}$; le cosinus oscille rapidement par rapport aux autres fonctions. On le remplace par sa valeur moyenne 1/2. Le calcul est ensuite similaire à celui développé dans la référence [2], que j'ai esquissé au paragraphe A.4.3. On écrit alors $K_1^\infty(v)$ sous la forme :

$$K_1^\infty(v) = B^\infty(v) = X_1(n)(v_D - v)^{\frac{2n}{n-2}-2}$$

Ces formules sont établies pour des distances internucléaires grandes. A ces distances cependant, d'autres termes de l'expansion multipolaire doivent être pris en compte. La structure hyperfine n'est plus négligeable, ni les effets de retard. On contourne cette difficulté en ajustant les données expérimentales avec des coefficients $G^\infty(v)$ et $B^\infty(v)$ multipliés par des coefficients de Padé, qui sont des rapports de fonctions polynômes de $(v_D - v)$, choisis de degré aussi faible que possible. A ma connaissance il n'y a pas de justification physique complète à cette procédure (on peut cependant se référer à la thèse de Daniel Comparat [7]). Elle permet cependant d'obtenir des valeurs pour les constantes $B(v)$ et $G(v)$ qui décrivent bien les résultats expérimentaux.

d) RKR (Rydberg, Klein, Rees)

Lorsqu'un puits de potentiel est connu, on sait que, dans l'approximation semi-classique, il est possible de calculer les énergies propres des niveaux liés. La condition d'existence d'un niveau vibrationnel à une énergie donnée est donnée par la condition de quantification WKB :

$$v + \frac{1}{2} = \frac{\sqrt{2\mu}}{\pi\hbar} \int_{R_1(v)}^{R_2(v)} [E(v) - V(R)]^{1/2} dR \quad (3.3)$$

R_1 et R_2 sont les points de rebroussement interne et externe du niveau lié. Nous allons ici montrer la réciproque : si on a un jeu de données spectroscopiques $E(v, J)$, on peut construire un potentiel dont les énergies $E(v, J)$ sont énergies propres de vibration-rotation. Comme nous allons le voir, le seul jeu de données des énergies vibrationnelles ne suffit pas.

Il faut aussi connaître les progressions rotationnelles pour chaque niveau vibrationnel.

On cherche, conformément à l'approximation Born-Oppenheimer, le potentiel sous la forme :

$$V_J(R) = V(R) + \frac{\hbar^2 J(J+1)}{2\mu R^2} \quad (3.4)$$

On introduit A , l'aire comprise entre le potentiel $V_J(R)$ et l'énergie U .

$$A = \int_{R_1}^{R_2} (U - V_J(R)) dR \quad (3.5)$$

En utilisant la relation $\int_a^b \left(\frac{b-x}{x-a}\right)^{1/2} dx = \frac{\pi}{2}(b-a)$, on réécrit :

$$A = \frac{2}{\pi} \int_{R_1}^{R_2} dR \int_{V_J(R)}^U \left(\frac{U-E}{E-V_J(R)}\right)^{1/2} dE = \frac{2}{\pi} \int_{U_{\min}}^U \int_{R_1(E)}^{R_2(E)} dR \left(\frac{U-E}{E-V_J(R)}\right)^{1/2} dE$$

En dérivant l'équation 3.3 par rapport à E , on obtient :

$$\frac{dv}{dE} = \frac{\sqrt{2\mu}}{2\pi\hbar} \int_{R_1(v)}^{R_2(v)} [E(v) - V_J(R)]^{-1/2} dR$$

A se réécrit donc (en utilisant le changement de variable $v' \leftrightarrow E$) :

$$A = \frac{4\hbar}{\sqrt{2\mu}} \int_{v_{\min}=-0.5}^v (U(v) - E(v'))^{1/2} dv' \quad (3.6)$$

Il découle de l'équation 3.5 que :

$$\left. \frac{\partial A}{\partial U} \right|_{J(J+1)} = R_2 - R_1 \text{ et } \left. \frac{\partial A}{\partial (J(J+1))} \right|_U = \frac{\hbar^2}{2\mu} \left(\frac{1}{R_1} - \frac{1}{R_2} \right)$$

On voit donc qu'il est nécessaire d'avoir des données spectroscopiques sur la vibration *et* sur la rotation pour pouvoir construire un potentiel. En appliquant les relations précédentes à l'équation 3.6, on obtient :

$$\begin{aligned} R_2(v) - R_1(v) &= \frac{2\hbar}{\sqrt{2\mu}} \int_{v_{\min}}^v \frac{1}{\sqrt{G(v) - G(v')}} dv \\ \frac{1}{R_1(v)} - \frac{1}{R_2(v)} &= \frac{2\sqrt{2\mu}}{\hbar} \int_{v_{\min}}^v \frac{B(v')}{\sqrt{G(v) - G(v')}} dv \end{aligned} \quad (3.7)$$

La démarche est donc la suivante : on obtient par spectroscopie un jeu de données ro-vibrationnelles. On en déduit par ajustement les paramètres Y_{ij} du coefficient de Dunham et donc les constantes de vibration et de rotation $G(v)$ et $B(v)$. Puis on modifie éventuellement les $B(v)$ et $G(v)$ par une procédure NDE. On calcule ensuite, en utilisant les valeurs déduites pour les constantes vibrationnelles et rotationnelles, les rayons internes et externes pour chaque niveau vibrationnel, ce qui construit un potentiel.

Cette méthode est valable si on a des données spectroscopiques à la fois pour la vibration et la rotation. Elle n'est valable que tant que l'approximation WKB est valable. C'est-à-dire que la pente du puits de potentiel doit ne pas être trop faible. En particulier, pour le dernier niveau lié, cette technique n'est pas appropriée. Enfin, notons qu'on construit un potentiel du type de l'équation 3.4, si bien que cette méthode ne donne des résultats qui sont physiques que si l'approximation de Born Oppenheimer est valide.

3.2 Détermination de la longueur de diffusion par analyse des minima d'intensité dans les spectres de PA

Une expérience est en cours de réalisation au laboratoire Aimé Cotton, portant sur la réalisation d'un condensat de Bose-Einstein avec l'atome de césium. Dans cette perspective, la détermination

des longueurs de diffusion de cet atome est un enjeu important. Nous allons dans la suite de ce chapitre décrire les différentes expériences que nous avons réalisées de façon à déterminer les longueurs de diffusion de l'atome de césium. La méthode que nous avons développée est une méthode qui ne s'appuie sur aucun calcul indépendant de notre expérience : toutes les données sont déduites de spectres de photoassociation, ce qui rend la méthode "self-consistante" (c'est-à-dire autonome).

Comme nous l'avons annoncé au chapitre 1 (on pourra se reporter à la démonstration de l'annexe B), le taux de photoassociation peut s'écrire (voir équation B.8) :

$$\Gamma_{PA} \propto I_{PA} \exp\left(-\frac{E_r}{k_B T}\right) (S(i, f))^2 \propto \sin^2\left(k_r \left(R_0^n + \frac{\delta_0(k_r)}{k_r}\right)\right) \quad (3.8)$$

Le terme $S(i, f)$ est le recouvrement entre la fonction d'onde des deux atomes en collision et la fonction d'onde excitée. La partie de droite de l'équation 3.8 est valable à très longue distance pour une collision à très basse énergie, où seule l'onde s peut participer au processus de photoassociation (les autres ondes sont repoussées par les barrières centrifuges), et lorsque l'intégrale de recouvrement se réduit à la valeur de la fonction d'onde du continuum, prise au point tournant externe de la molécule excitée. Ceci est généralement vrai dans les cas où la fonction d'onde excitée oscille très vite, sauf au voisinage du point tournant externe de la molécule. Le point tournant externe R_0^n dépend du niveau vibrationnel excité. Par conséquent, en faisant un spectre de photoassociation, les modulations du signal retracent les modulations $\sin^2\left(\sqrt{\frac{2\mu\delta_r}{\hbar}} R_0^n + \delta_0(k_r)\right)$. Ceci doit permettre de déterminer $\delta_0(k_r)$ à très basse température, et donc la longueur de diffusion, à condition de connaître précisément les points tournants externes R_0^n .

Il est en fait nécessaire de connaître précisément les intégrales de recouvrement $S(i, f)$, en particulier pour les niveaux vibrationnels du fonds du puits excité. C'est-à-dire qu'il faut connaître les fonctions d'onde excitées, et donc le potentiel excité. Comme nous allons le voir dans le prochain paragraphe, le cas de la photoassociation de l'état 0_g^- est un cas idéal, où on peut déterminer par les méthodes décrites au paragraphe 3.1.3 le potentiel excité. Une fois ce potentiel connu, la voie est ouverte pour la détermination de la longueur de diffusion.

De façon à écarter l'influence sur le taux de photoassociation d'éventuels phénomènes de saturation, ou bien de modulations liées à la détection des molécules produites, l'analyse effectuée s'est focalisée sur les minima d'intensité des spectres de photoassociation. En particulier, plusieurs "zéros" de photoassociation, pour lesquels aucun signal n'est observé, sont exploités et interprétés comme des raies de photoassociation pour lesquelles le recouvrement de la fonction d'onde de collision et de la fonction d'onde excitée est nul.

La détermination de la longueur de diffusion de l'état triplet du césium a fait l'objet de la thèse de Cyril Drag [4], et d'une publication [35]. Je retrace dans un premier temps les résultats obtenus. La valeur de la longueur de diffusion de l'état triplet est selon nos résultats très grande et positive :

$$a_T = -530_{-295}^{+160} a_0$$

Nous avons réalisé d'autres expériences, en utilisant des atomes polarisés dans l'état $F=3$, $m_F=3$. Deux atomes en collision dans cet état empruntent une voie de collision couplée. L'analyse théorique des modulations d'intensités dans un spectre de photoassociation s'en trouve compliquée. Une analyse complète fera l'objet d'une thèse à venir. Je me contente ici de donner quelques résultats partiels, ne nécessitant pas de calculs : je montrerai ainsi l'existence d'un couplage qui dépend du champ magnétique dans lequel est réalisée l'expérience. De ce fait, on peut modifier la longueur de diffusion de l'atome de césium dans l'état $F=3$, $m_F=3$ en faisant varier un champ magnétique. Trois spectres sont montrés dans ce chapitre, correspondant à trois longueurs de diffusion différentes.

3.2.1 La spectroscopie de l'état 0_g^-

Comme nous l'avons expliqué, les modulations en intensité d'un spectre de photoassociation donnent des renseignements sur le recouvrement entre la fonction d'onde des atomes en collision et la fonction d'onde excitée. De manière à en tirer des informations sur la fonction d'onde des atomes en collision elle-même, il est nécessaire de connaître les fonctions d'onde excitées. La spectroscopie de l'état 0_g^- permet de reconstruire le puits de potentiel externe 0_g^- , et d'en déduire les fonctions d'onde des niveaux ro-vibrationnels de cet état.

a) Le spectre 0_g^-

La structure rotationnelle du spectre de photoassociation 0_g^- est résolue pour les 74 premiers niveaux vibrationnels de 0_g^- . Nous pouvons donc appliquer la méthode exposée au paragraphe 3.1.3, dans le but de reconstruire le potentiel moléculaire excité.

b) Traitement RKR

Grâce à une procédure de type RKR, un potentiel excité a été construit. On pourra pour plus de détails se référer à l'article [32]. Les auteurs ont dans un premier temps réalisé un fit des données spectroscopiques obtenues, de façon à déterminer les coefficients du développement de Dunham. Ils en déduisent les paramètres $G(v)$ et $B(v)$. Ces paramètres sont modifiés ensuite par une procédure NDE. Le détail des fits effectués peuvent être trouvés dans la référence [32]. Ces fits permettent d'évaluer la profondeur du puits D_e , le paramètre asymptotique C_3 , et le nombre non entier ν_D . La validité des fits successifs est évaluée par plusieurs critères : les polynômes de Padé employés doivent être de degrés aussi faible que possible ; les valeurs des coefficients C_3 et D_e doivent être proches des coefficients établis dans la littérature.

Un fois en possession des valeurs $G(v)$ et $B(v)$, on obtient, grâce aux équations 3.7, pour chaque v , les points tournants internes et externes $R_1(v)$ et $R_2(v)$. Une correction est appliquée

aux valeurs de $R_1(v)$, de façon à rendre leur variation "douce", pour les niveaux vibrationnels supérieurs à 50. En effet, pour les v élevés, $R_2(v)$ varie rapidement, si bien que $R_1(v)$ est peu précis.

Une fois le potentiel construit, les énergies propres de vibration et de rotation sont calculées, et comparées aux données expérimentales; la différence entre les niveaux expérimentaux et les niveaux calculés est inférieure à $0,01 \text{ cm}^{-1}$, et les constantes de rotation sont calculées avec une précision meilleure que 0,1%.

Le paramètre C_3 ne peut pas être obtenu par cette méthode car ici, la variation de la barrière de potentiel interne est trop douce pour pouvoir appliquer la méthode de LeRoy-Bernstein. Ceci est un effet du croisement évité à l'origine de l'existence du double-puits; la théorie de LeRoy-Bernstein n'est valable que dans le cas d'une courbe de potentiel isolée. Une généralisation de la méthode de LeRoy a été montrée dans la référence [7].

La profondeur du puits externe 0_g^- est de $77,94 \pm 0,01 \text{ cm}^{-1}$, et son minimum est situé à $23,36 \pm 0,09 a_0$.

3.2.2 Spectre 4-4 et longueur de diffusion triplet.

Cette partie est consacrée à la détermination de la longueur de diffusion de l'état triplet. Pour ce faire on analyse un spectre de photoassociation obtenu avec des atomes polarisés dans l'état $F=4, m_F = 4$. Une paire d'atomes en collision dans cet état suit une voie de collision purement triplet, si bien que le problème est un problème à une voie non couplée.

a) Modulation des raies de photoassociation

La modulation de l'intensité des raies de photoassociation du spectre 0_g^- est apparente dans le spectre en ions présenté figure 3.3. Un tel spectre est cependant réalisé avec des atomes non polarisés. Il existe par conséquent plusieurs voies de collision. De manière à déterminer la longueur de diffusion de l'état triplet du césium, nous avons réalisé un spectre de photoassociation analogue, en utilisant cette fois des atomes polarisés dans l'état hyperfin $F=4, m_F = 4$ (voir séquence de polarisation expliquée au chapitre 1, paragraphe 1.1.6), et en relevant l'intensité de la raie rotationnelle $J=2$ pour chaque raie vibrationnelle (détection ionique). On peut montrer que deux atomes dans l'état $F=4, m_F = 4$ sont d'un point de vue moléculaire purement triplet : en effet, la projection du moment total est $m_F = 8$, et est donc maximale. De ce fait, la projection du spin électronique total doit elle-même être maximale, ce qui implique que l'état moléculaire est purement triplet. La symétrie du système est alors purement ungerade, si bien qu'on peut bien photoassocier l'état 0_g^- en partant d'atomes polarisés dans $F=4, m_F = 4$.

Lorsque les atomes sont polarisés dans l'état $F=4, m_F = 4$, une raie vibrationnelle de l'état 0_g^- présente une structure rotationnelle simplifiée, comme le montre la figure 3.5. Rappelons (voir pour plus de détails le paragraphe B.2.2) les règles de sélection pour l'état 0_g^- : $J = l, l \pm 2$. Dans le cas de la photoassociation d'atomes polarisés ($F=4, m_F=4$ ou $F=3, m_F=3$), on peut montrer (voir

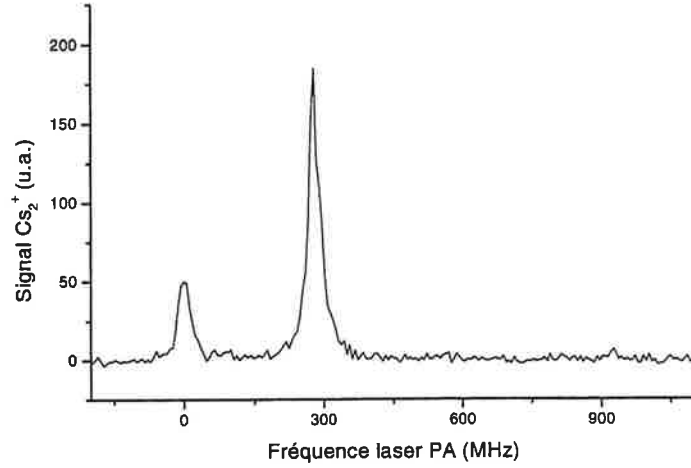


FIG. 3.5: Structure rotationnelle de la raie $v=6$ de l'état 0_g^- ; les atomes sont polarisés dans l'état $F=4, m_F=4$ (la structure observée est similaire pour des atomes polarisés dans l'état $F=3, m_F=3$). On observe la disparition des raies rotationnelles impaires ; par ailleurs, aucun signal n'est observé pour $J=4$, si bien qu'on peut considérer que la seule onde partielle qui est impliquée dans la réaction de photoassociation est l'onde s ($l=0$).

[4]) que seules les ondes partielles paires participent au processus de photoassociation, du fait de la symétrie des fonctions initiale et finale (l'opérateur dipolaire étant quant à lui antisymétrique). La figure 3.5 prouve donc qu'en utilisant la séquence temporelle décrite paragraphe 1.1.6, les atomes sont bien polarisés et que seule l'onde s participe à la réaction de photoassociation. Les autres ondes partielles ($l \geq 2$) sont absentes.

Le spectre obtenu avec des atomes polarisés est présenté figure 3.6. On observe une modulation très claire du nombre de molécules froides détectées. Pour s'affranchir des éventuelles variations liées aux probabilités de désexcitation dans le fondamental et à l'ionisation des molécules produites, l'analyse théorique se portera sur les minima de photoassociation, qui sont des zéros du signal. On observe neuf zéros dans le spectre de photoassociation, interprétés comme des zéros de la probabilité de photoassociation. Le zoom pour les minima d'intensité 2 à 6 est donné figure 3.7.

b) Principe du traitement théorique

La seconde partie de la formule 3.8 n'est valable qu'à très grande distance, où l'effet du potentiel attractif en C_6/R^6 peut être négligé. La photoassociation a lieu typiquement entre 25 et 70 a_0 pour les états vibrationnels de 0_g^- $v=0$ à 74. A cette distance, la valeur de C_6/R^6 est typiquement de 2 cm^{-1} , à comparer à la largeur du continuum d'énergie $k_B T$, de l'ordre de 2,5 MHz. Le terme en C_8/R^8 est de l'ordre de 0,33 cm^{-1} , et le terme en C_{10}/R^{10} de l'ordre de 0,05 cm^{-1} . Les oscillations de la fonction d'onde des atomes en collision ne proviennent donc pas principalement de leur énergie cinétique moyenne initiale $k_B T$, mais surtout du potentiel attractif. Les paramètres asymptotiques

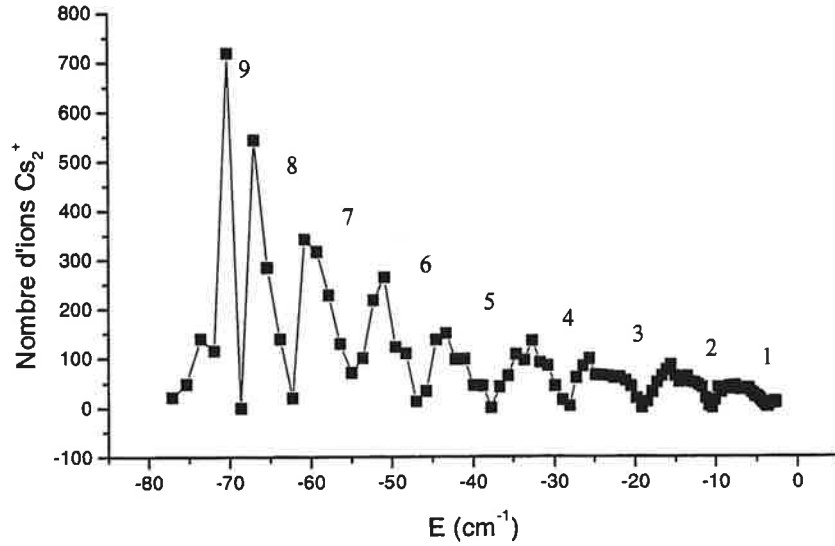


FIG. 3.6: Spectre de photoassociation de l'état 0_g^- en utilisant des atomes polarisés dans l'état $F=4$, $m_F=4$.

sont donc des paramètres très importants. Dans la pratique, on conserve les termes en C_6 , C_8 , C_{10} , ainsi que l'interaction d'échange. A part pour le noeud le plus externe, le rôle de la température peut être complètement négligé.

L'équation de Schrödinger s'écrit (d'après l'équation A.13) dans le cas d'une onde s :

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2\mu} \frac{\partial^2}{\partial R^2} + U_S(R) - E \right] G_S^0(R) = 0 \quad (3.9)$$

$U_S(R)$ comprend les termes en C_6 , C_8 , C_{10} , et l'interaction d'échange. A grande distance, et pour de très basses énergies ($kR \ll 1$), l'équation 3.9 s'écrit $-\frac{\hbar^2}{2\mu} \frac{\partial^2}{\partial R^2} G_S^0(R) = 0$ et par conséquent $G_S^0(R) = C(R/a + 1)$. On peut aussi écrire la fonction d'onde des atomes en collision sous la forme :

$$\sin(kR + \delta_0(k)) = \sin kR \cos \delta_0(k) + \sin \delta_0(k) \cos kR \approx \sin \delta_0(k) \left(\frac{R}{\frac{\tan \delta_0(k)}{k}} + 1 \right) = C(-R/a + 1)$$

où $a = -\lim_{k \rightarrow 0} \left(\frac{\tan \delta_0(k)}{k} \right)$ est la longueur de diffusion. Le principe de l'analyse théorique est de réaliser une intégration numérique de l'équation 3.9 depuis $R = +\infty$, en prenant comme condition aux limites $G_S^0(R) = C(R/a + 1)$, où a est la longueur de diffusion.

On calcule ensuite le recouvrement entre la fonction d'onde trouvée pour la paire d'atomes en collision et la fonction d'onde de la molécule excitée. Le recouvrement dépend, d'une part

des paramètres asymptotiques, de l'énergie d'échange, et de la longueur de diffusion, et d'autre part du niveau vibrationnel excité. Celui-ci est déduit de l'analyse RKR étudiée au paragraphe 3.2.1. Le taux de photoassociation est proportionnel au carré du recouvrement, comme le rappelle l'équation 3.8.

a apparaît ici comme un paramètre qui résume tous les effets du potentiel moléculaire à courte distance ; l'originalité de la démarche suivie est qu'elle ne suppose pas une connaissance préalable du potentiel interne. C'est en ceci que réside la puissance de l'outil théorique utilisé ici, qui apparaît comme une méthode de défaut quantique.

c) Longueur de diffusion

On cherche les valeurs de la longueur de diffusion, ainsi que des paramètres C_6 , C_8 , C_{10} , et de l'interaction d'échange qui permettent de reproduire les minima d'intensité du spectre de photoassociation présenté figure 3.6. Tous ces paramètres ne jouent pas un rôle d'importance équivalente. Les valeurs des paramètres C_8 , C_{10} , et de l'interaction d'échange n'influent pas sensiblement sur les résultats ; elles n'ont donc pas pu être déduites de notre expérience, et elles ont été choisies dans la littérature.

A contrario, la valeur du paramètre C_6 est ici cruciale : une incertitude de 10 %, correspondant aux variations entre les différentes valeurs théoriques de C_6 disponibles, suffit à changer le signe de la longueur de diffusion. Nous avons donc opéré de la manière suivante : pour chaque noeud $i \in [2, 6]$, on a tracé en fonction de C_6 la valeur de la longueur de diffusion pour laquelle le taux de photoassociation calculé (ie : le carré du recouvrement) est minimal au noeud i . On note $a = f_i(C_6)$. Le point important est que la dépendance de la longueur de diffusion en C_6 varie en fonction du noeud considéré -c'est-à-dire $f_i \neq f_j$ pour $i \neq j$. Ceci se comprend aisément : plus la photoassociation a lieu à courte distance (plus le numéro assigné au minimum de photoassociation est élevé), plus l'effet du C_6 est important sur le déphasage de la fonction d'onde des atomes en collision.

La courbe de la longueur de diffusion en fonction du paramètre C_6 est représentée figure 3.7 b), pour cinq zéros du spectre de photoassociation. Cette figure montre sans ambiguïté qu'il existe une valeur pour le couple $\{C_6, a\}$ pour laquelle le calcul du recouvrement reproduit la structure nodale du spectre de photoassociation pour les minima 2 à 6. Dans les limites des incertitudes expérimentales, le couple $\{C_6, a\}$ est unique.

Je ne rentrerai pas dans le détail des études numériques menées. Notons seulement que les paramètres C_8 , C_{10} , et l'énergie d'échange ne sont pas ici des paramètres cruciaux. Les valeurs choisies sont celles de la référence [84] : $C_8 = 9,546.10^{-5}$ et $C_{10} = 1,358.10^{-6}$; on peut faire varier de 15 % les valeurs C_8 , C_{10} sans changement significatif sur la valeur du C_6 et de la longueur de diffusion. La valeur choisie pour l'énergie d'échange est celle de la référence [85]. On peut faire varier cette valeur d'un facteur 2 sans modification substantielle du résultat.

Par cette méthode, il a été possible de déterminer conjointement les deux paramètres suivants :

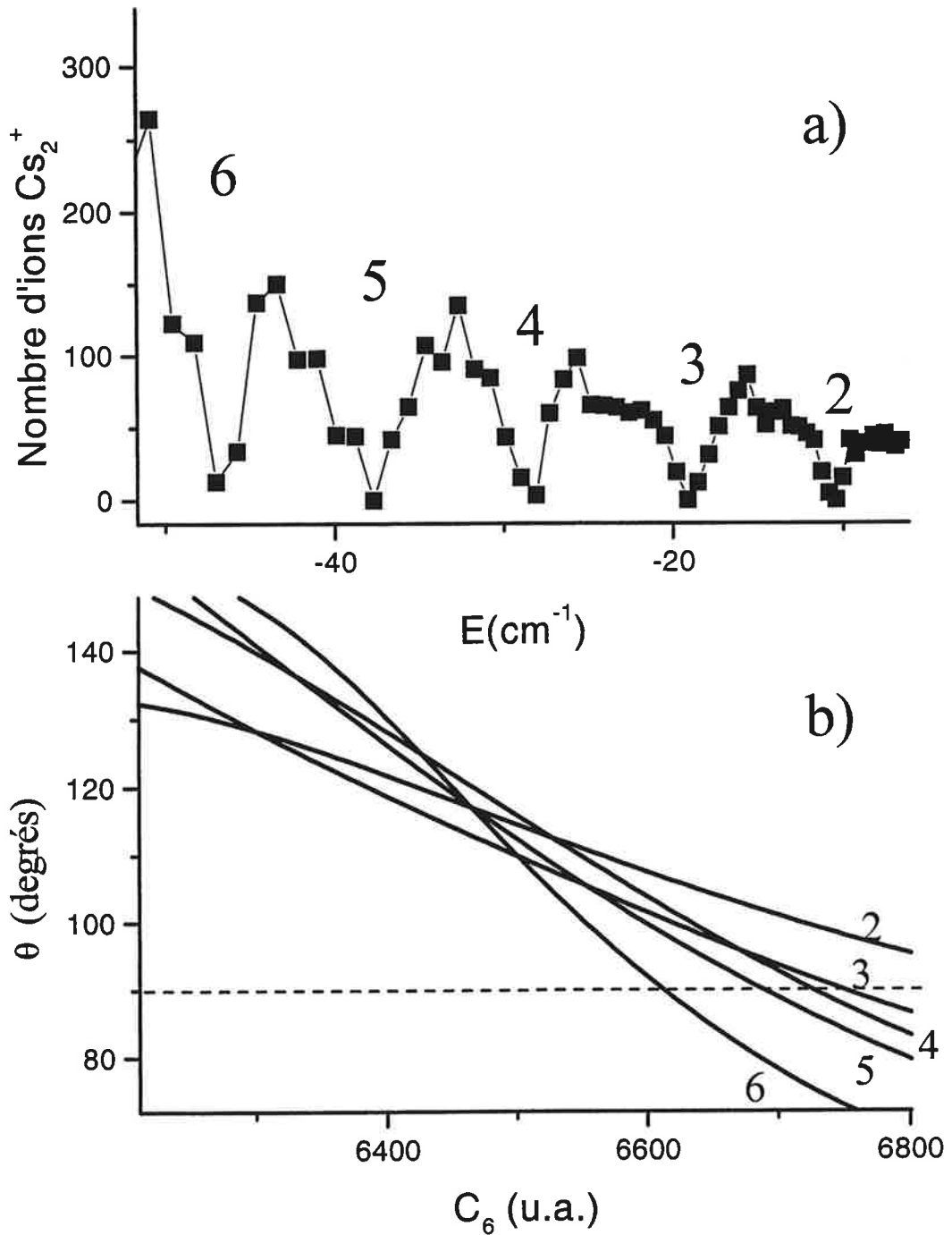


FIG. 3.7: *Partie a)* : zoom du spectre de photoassociation de l'état 0_g^- . Les six minima du spectre utilisés dans l'analyse théorique sont représentés. *Partie b)* : la longueur de diffusion triplet de l'atome de césium étant proche de l'infini, on a choisi de représenter $\theta = \arctan(a/\alpha)$, où $\alpha = (mC_6/\hbar^2)^{1/4}$ est un facteur d'échelle ($\approx 200 a_0$). m est la masse de Cs_2 .

$$C_6 = 6510 \pm 70 \text{ u.a.}$$

$$a = -530_{-295}^{+160} a_0$$

La valeur de la longueur de diffusion trouvée est négative, et très grande. La voie de collision triplet est donc au voisinage d'une résonance de diffusion. Ceci est bien compatible avec les observations réalisées par l'équipe de J. Dalibard lors des tentatives de réalisation de la condensation de Bose Einstein avec l'atome de césium [40][52]. Notons cependant que nos résultats sont en désaccord avec un autre travail récemment publié : il s'agit des expériences de S. Chu portant sur l'observation de résonances de Feshbach dans un piège dipolaire de césium [38], et d'un travail d'interprétation réalisé au NIST [37]. Nous allons dans les paragraphes qui suivent analyser les points forts de notre travail, ainsi que les questions qui restent en suspens, avant de comparer nos résultats avec les leurs.

d) Analyse critique

Dans un premier temps, passons en revue l'ensemble des points qui ont été testés dans notre travail.

i) Les autres minima Comme je l'ai annoncé, nous n'avons pris en considération que 5 des 9 minima présents dans le spectre de photoassociation de l'état 0_g^- : le premier minimum a d'une part été exclu de l'analyse théorique, car il n'est pas bien défini expérimentalement : les niveaux vibrationnels sont alors très rapprochés, et il existe de nombreuses raies de photoassociation au voisinage du minimum d'intensité du spectre, dont plusieurs n'ont pas pu être détectées. Ceci nous a empêché de déterminer la position exacte du minimum de photoassociation.

D'autre part, les minima 7, 8, et 9 (et par conséquent tous les niveaux vibrationnels $v \leq 20$) ont aussi été exclus de l'analyse théorique. Le nombre de raies vibrationnelles entre deux zéros décroît quand on se rapproche du fonds du puits, si bien que la détermination des minima est imprécise.

Par ailleurs, pour $v \lesssim 20$ des phénomènes de saturation dynamique sont attendus aux énergies laser utilisées. En effet, pour $v=17$ (pour lequel le point tournant externe R_0^n est à $34,2 a_0$), le taux de photoassociation par atome est de l'ordre de $0,1 \text{ s}^{-1}$ (voir par exemple [4]) Pour un atome A donné, le taux de passage d'un autre atome B à la distance R_0^n à laquelle la réaction de photoassociation avec l'atome A se produit, s'écrit, pour une densité de l'ordre de 10^{10} cm^{-3} et une vitesse relative moyenne de $0,1 \text{ m/s}$:

$$\Gamma = 4\pi(R_0^n)^2 n \langle v \rangle \sim 0,03 \text{ s}^{-1}$$

Alors, le taux de remplissage du volume dans lequel la photoassociation a lieu est inférieur au taux de photoassociation. Cela signifie qu'on n'est probablement plus à l'équilibre thermody-

namique, et que, par conséquent, le modèle perturbatif de la photoassociation utilisé n'est plus valable. Cette situation est probablement le cas général pour les maxima d'intensité des spectres de photoassociation (qui ont tous été exclus de notre analyse théorique); elle est aussi probablement rencontrée y compris pour les minima de photoassociation pour les distances interatomiques faibles (c'est-à-dire les niveaux vibrationnels peu élevés). La théorie de la photoassociation utilisée n'étant probablement plus valable pour les minima du spectre notés 7, 8, et 9, nous avons choisi de les éliminer de l'analyse théorique.

ii) La température L'effet de la température sur la détermination de la longueur de diffusion a été testé. Notons premièrement que la figure 3.5 montre sans ambiguïté que seule l'onde s participe au processus de photoassociation. D'autre part, comme nous le montrons par ailleurs (voir note paragraphe B.3.2), l'effet de la température est complètement négligeable sur l'amplitude et sur la phase de la fonction d'onde des atomes en collision aux distances où a lieu la photoassociation. Nous avons vérifié numériquement qu'en effet, pour les noeuds utilisés pour l'analyse théorique (2 à 6), l'effet de la température est nul. Par contre, pour le premier minimum (qui correspond à des distances de photoassociation de l'ordre de $60 a_0$), nous avons observé dans la modélisation théorique un effet de température non négligeable sur la phase de la fonction d'onde.

Nous avons exclu le premier minimum de l'analyse théorique, si bien que la température (tant qu'elle est de l'ordre de la température du piège magnéto-optique) n'a aucun effet sur l'analyse théorique. Les calculs ont donc été réalisés à température nulle.

iii) Les effets de retard On a vérifié que les effets de retards sont bien négligeables, pour les deux asymptotes $6s+6s$ et $6s+6p_{3/2}$.

iv) Méthode "self-consistente" Il est à noter que la méthode de détermination de la longueur de diffusion décrite ici est presque "self-consistente". En effet, elle ne dépend pas de paramètres qui ne sont pas déduits de notre expérience, si on excepte les coefficients asymptotiques C_8 et C_{10} , ainsi que l'énergie d'échange, dont on a vu qu'on pouvait largement modifier leurs valeurs autour des valeurs démontrées dans la littérature, sans changer sensiblement le résultat de l'analyse en ce qui concerne la valeur du C_6 et de la longueur de diffusion. Le potentiel excité est obtenu par une analyse de type RKR du spectre de photoassociation de l'état 0_g^- . La longueur de diffusion est déduite, conjointement au paramètre C_6 , des modulations en intensité du spectre de photoassociation de l'état 0_g^- en utilisant des atomes polarisés.

La théorie de photoassociation sur laquelle s'appuie notre raisonnement a aussi été comparée aux expériences, et l'accord entre théorie et expérience est très bon (voir paragraphe 1.3.4). Comme nous le notons ci-dessus, pour des niveaux vibrationnels de l'état 0_g^- trop peu élevés, on s'attend à ce que l'équilibre thermodynamique ne soit plus assuré, ce qui doit engendrer des phénomènes de saturation. Notre analyse théorique s'est donc focalisée sur les minima de photoassociation des niveaux vibrationnels supérieurs à $v = 20$, pour lesquels aucun phénomène de saturation ne

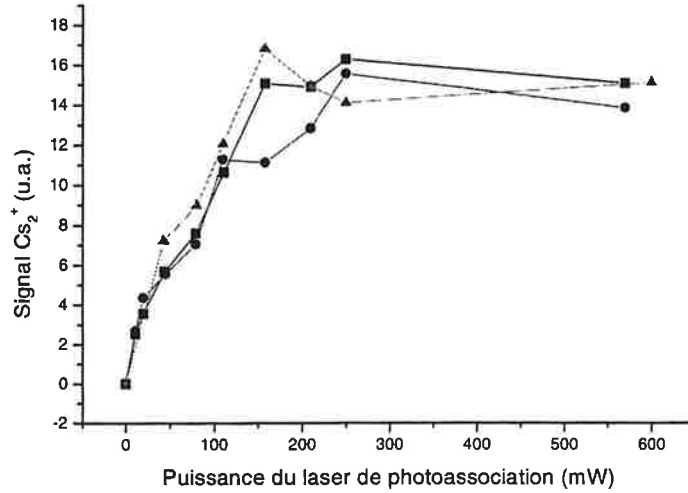


FIG. 3.8: Analyse de l'intensité des raies de photoassociation pour les niveaux rovibrationnels $J = 2$, $v = 17$ (carrés), 18 (ronds) et 20 (triangles) de l'état 0_g^- . Sur cette figure, le signal de $v=18$ est multiplié par 3 et celui de $v=20$ par 9. Ceci montre que l'intensité relative des raies de photoassociation au voisinage d'un minimum du spectre dépend peu de l'intensité du laser de photoassociation.

devrait intervenir.

Les effets systématiques, s'ils existent, sont donc à chercher du côté des conditions expérimentales dans lesquelles est réalisée la mesure de la longueur de diffusion. Notons cependant que notre analyse dépend de manière cruciale de l'analyse RKR qui a été faite du potentiel 0_g^- . Cette analyse est aujourd'hui en cours de vérification.

v) Effet de l'intensité du champ laser Nous avons testé l'effet de l'intensité du laser de photoassociation lui-même sur la détermination des minima de photoassociation. Comme il a été montré expérimentalement récemment [39], une résonance de photoassociation peut en effet être vue dans le modèle de la molécule habillée par le laser de photoassociation comme une résonance de Feshbach : un niveau discret est mis à résonance avec l'énergie de collision des atomes. La fonction d'onde des atomes en collision peut être modifiée par le couplage avec un niveau moléculaire excité lorsque le laser de photoassociation est à résonance. Il peut en résulter une modification de la longueur de diffusion. Un tel phénomène n'a jusqu'à présent pas été analysé en détail dans notre situation. Nous avons cependant vérifié que le rapport de l'intensité des raies de photoassociation $v=17$, 18, et 20, au voisinage d'un zéro de photoassociation, varie peu en fonction de l'intensité laser (voir figure 3.8) : ceci indique que notre détermination de la longueur de diffusion dépend peu de l'intensité laser utilisée.

vi) **Comparaison avec les résultats de S. Chu** Les résultats présentés ici, tant en ce qui concerne la longueur de diffusion triplet que le paramètre C_6 , sont en désaccord avec un autre travail récemment publié ([38], [37]). Les auteurs de ce travail analysent de nombreuses résonances de Feshbach au sein d'un piège dipolaire de césium. La longueur de diffusion déduite est de $2400 a_0$ et le paramètre asymptotique $C_6 = 6890 \pm 35$ u.a. Notons que si la différence des deux résultats sur la longueur de diffusion est très frappante, les deux résultats tombent en accord sur le fait que le césium est au voisinage d'une résonance de diffusion pour l'état triplet. La situation est de ce fait extrêmement délicate pour déterminer la valeur précise et le signe de la longueur de diffusion.

Les résultats entre nos deux groupes sont cependant incompatibles : il apparaît notamment très clairement sur la figure 3.7 que, de notre point de vue, la valeur $C_6 = 6890$ u.a. est exclue. En particulier, si on suppose les valeurs $\{C_6 = 6890$ u.a., $a_T = 2400$ u.a. $\}$ justes, la théorie prévoit un taux de photoassociation nul pour la raie vibrationnelle $v = 39$, alors que nous observons un signal faible, mais non nul.

Les expériences de S. Chu et l'analyse théorique du NIST semblent très solides. Le seul effet systématique qui semble pouvoir jouer un rôle est l'effet du laser YAG utilisé pour le piégeage des atomes de césium, laser qui ne peut évidemment pas être complètement supprimé dans leur expérience. Les auteurs ont cependant modifié son intensité d'un facteur deux, sans modification majeure de la longueur de diffusion mesurée.

De notre côté, des travaux théoriques sont en cours qui visent à analyser l'effet d'un fort champ laser sur la longueur de diffusion. Par ailleurs, nous analysons en détail les phénomènes de saturation dans la réaction de photoassociation. Enfin, des analyses sont menées de façon à calculer un potentiel RKR de l'état 0_g^- .

Comme on le voit, le débat sur la valeur exacte de la longueur de diffusion n'est pas achevé. D'autres analyses et expériences devront trancher. Je décrirai dans la suite de ce mémoire d'autres expériences que nous avons réalisées, et qui devraient permettre la détermination de l'ensemble des longueurs de diffusion de l'atome de césium. Il s'agit de la spectroscopie des derniers niveaux liés des états fondamentaux de l'atome de césium.

Notons que la question est ici considérablement compliquée du fait de la proximité d'une résonance de diffusion : ainsi, une très faible incertitude sur le paramètre C_6 se traduit par une grande incertitude sur la longueur de diffusion. La méthode que nous avons développée a, dans ce cadre difficile, montré son efficacité. Le signe négatif de la longueur de diffusion de l'état triplet du césium (s'il se confirme), de même que sa grande valeur absolue, expliquent que la condensation de Bose-Einstein dans cet état [40] n'ait pas encore été couronnée de succès. Un très fort taux de collisions inélastiques est observé dans le processus de refroidissement évaporatif nécessaire pour atteindre le régime dégénéré [52], ce qui rend difficile la réalisation d'un condensat de Bose-Einstein en partant d'atomes dans l'état $F=4$, $m_F=4$. Le très fort taux de collisions inélastiques dans ce cas est expliqué par l'interaction spin-orbite de deuxième ordre. Pour ces raisons, la réalisation d'un condensat de Bose-Einstein avec l'atome de césium dans l'état $F=4$, $m_F = 4$ semble très difficile. Le même résultat a été obtenu avec l'état $F=3$, $m_F = -3$ [88].

A ma connaissance, toutes les équipes qui travaillent dans la perspective de l'obtention d'un condensat avec l'atome de césium, se sont donc à ce jour tournées vers un autre état : l'état $F=3$, $m_F = 3$, qui permet, comme état Zeeman de plus basse énergie en champ magnétique, d'éliminer tout effet de collisions inélastiques. La proximité d'une résonance de Feshbach permet en effet un contrôle de la longueur de diffusion et donc de la section efficace de collision avec un simple champ magnétique de quelques Gauss. La partie suivante de ce chapitre est consacrée à l'étude expérimentale de cette résonance de Feshbach, en utilisant les mêmes techniques que celles qui nous ont permis de déterminer la longueur de diffusion triplet du césium.

3.2.3 Etude expérimentale d'une résonance de Feshbach

La condensation de Bose-Einstein s'est avérée jusqu'à présent impossible dans le cas de l'état triplet $F=4$, $m_F = +4$ du césium pour les raisons relevées au paragraphe précédent. Une alternative pour éviter les collisions inélastiques est de réaliser un piège pour l'état $F=3$, $m_F=3$, qui présente l'avantage d'être minimal en énergie. Il est cependant impossible de réaliser un maximum local de champ magnétique. Piéger l'état $F=3$, $m_F=3$ nécessite donc la mise en oeuvre d'un piège de nature différente de ceux utilisés jusqu'à présent pour atteindre la condensation de Bose-Einstein avec l'atome de césium : il peut par exemple s'agir d'un piège optique, utilisant le déplacement lumineux. Une solution alternative développée au laboratoire Aimé Cotton est la réalisation d'un piège mixte, composé d'un piégeage 2D optique, et d'un gradient de champ magnétique pour compenser la gravité. Le second avantage de l'état $F=3$, $m_F = 3$ en vue de la réalisation de la condensation de Bose-Einstein réside dans l'existence d'une résonance de Feshbach pour de faibles champs magnétiques. Celle-ci permet le contrôle de la longueur de diffusion de l'atome, en utilisant un champ magnétique de seulement quelques dizaines de Gauss. On pourra donc jouer facilement à la fois sur le taux de collisions élastiques lors du refroidissement évaporatif, et sur la stabilité du condensat.

Une résonance de Feshbach se définit comme l'existence d'un niveau moléculaire lié dont l'énergie est dégénérée avec l'énergie de collision des atomes. Le niveau moléculaire appartient à un état dont la limite de dissociation est située au dessus de l'énergie de collision des atomes (voir figure 3.16). Si les deux états (libre et lié) sont couplés, la fonction d'onde de collision subit un déphasage à longue distance, c'est-à-dire que la longueur de diffusion des atomes en collision est modifiée du fait du couplage. Si ces deux états ont des moments magnétiques différents, leur énergie relative peut être modifiée en utilisant un champ magnétique. Il est ainsi possible de modifier la longueur de diffusion de manière résonante en utilisant un champ magnétique. L'existence d'une résonance de Feshbach pour l'état $F=3$, $m_F = 3$ du césium a été prouvée en 1999 dans des expériences de thermalisation d'un réseau optique à une dimension [41] ; le couplage entre l'état de collision et l'état moléculaire lié a été par la suite interprété comme résultant de l'interaction d'échange [37]. Le champ magnétique pour lequel la résonance se produit est de 30 Gauss environ.

Les pages qui suivent sont consacrées à une étude expérimentale de cette résonance de Feshbach,

et à la détermination de la longueur de diffusion de l'atome de césium dans l'état $F=3$, $m_F = 3$, qui reste mal connue à ce jour ; nous allons montrer que nous pouvons utiliser la méthode décrite dans les paragraphes précédents pour obtenir une estimation de la longueur de diffusion. Je ne présenterai dans ce mémoire que les résultats expérimentaux, ainsi que les données qualitatives qu'on peut en déduire. L'analyse théorique quantitative de ces données expérimentales fera l'objet d'une thèse à venir. A nouveau, nos expériences se focalisent sur l'analyse des intensités relatives des raies de photoassociation de l'état 0_g^- , cette fois-ci en utilisant des atomes polarisés dans l'état $F=3$, $m_F=3$. Nous allons montrer que les modulations d'intensité du spectre dépendent du champ magnétique dans lequel l'expérience est réalisée, ce qui traduit une variation de la longueur de diffusion avec le champ magnétique au voisinage d'une résonance de Feshbach. Nous montrons en particulier qu'on peut continuellement modifier la longueur de diffusion entre $-\infty$ et $+\infty$ en passant par 0, en utilisant un champ magnétique compris entre 7 et 30 Gauss.

a) Motivation et principe

Nous suivons la même méthode que celle décrite dans les paragraphes précédents ; après avoir polarisé les atomes froids dans l'état $F=3$, $m_F = 3$, nous réalisons un spectre de photoassociation de l'état 0_g^- , et nous relevons les intensités des différentes raies vibrationnelles. Nous focalisons à nouveau notre attention sur les minima de photoassociation. L'analyse des modulations du spectre permet d'acquérir des informations sur la fonction d'onde des atomes en collision. L'analyse sera facilitée du fait que nous connaissons déjà le paramètre asymptotique C_6 , déterminé conjointement à la longueur de diffusion triplet.

Les atomes sont polarisés dans l'état $F=3$, $m_F=3$, en appliquant la procédure décrite au paragraphe 1.1.6. Puis, en utilisant les atomes polarisés, dans un champ magnétique de 7 Gauss, nous avons repris la spectroscopie de photoassociation de l'état 0_g^- , en relevant pour chaque raie entre $v=2$ et $v=74$ l'intensité de la raie rotationnelle $J=2$. Les résultats obtenus sont montrés figure 3.9, en regard des résultats obtenus pour la photoassociation des atomes dans l'état $F=4$, $m_F = 4$.

On observe de nouveau une modulation en intensité du spectre. On n'observe cependant que trois minima de photoassociation, tous trois pour des nombres vibrationnels élevés. Pour des niveaux vibrationnels moins élevés, des modulations sont toujours observées, et reproductibles, mais aucun zéro ne peut être mis en évidence. Cette observation est qualitativement très différente de celles réalisées lors de l'analyse du spectre de photoassociation d'atomes dans l'état $F=4$, $m_F = 4$. Nous montrerons que cette différence provient de ce que la voie de collision pour des atomes dans l'état $F=3$, $m_F = 3$ est une voie couplée.

Les mêmes expériences sont reproduites pour trois champs magnétiques différents, ce qui permet de montrer la modification de la longueur de diffusion en fonction du champ magnétique, au voisinage de la résonance de Feshbach.

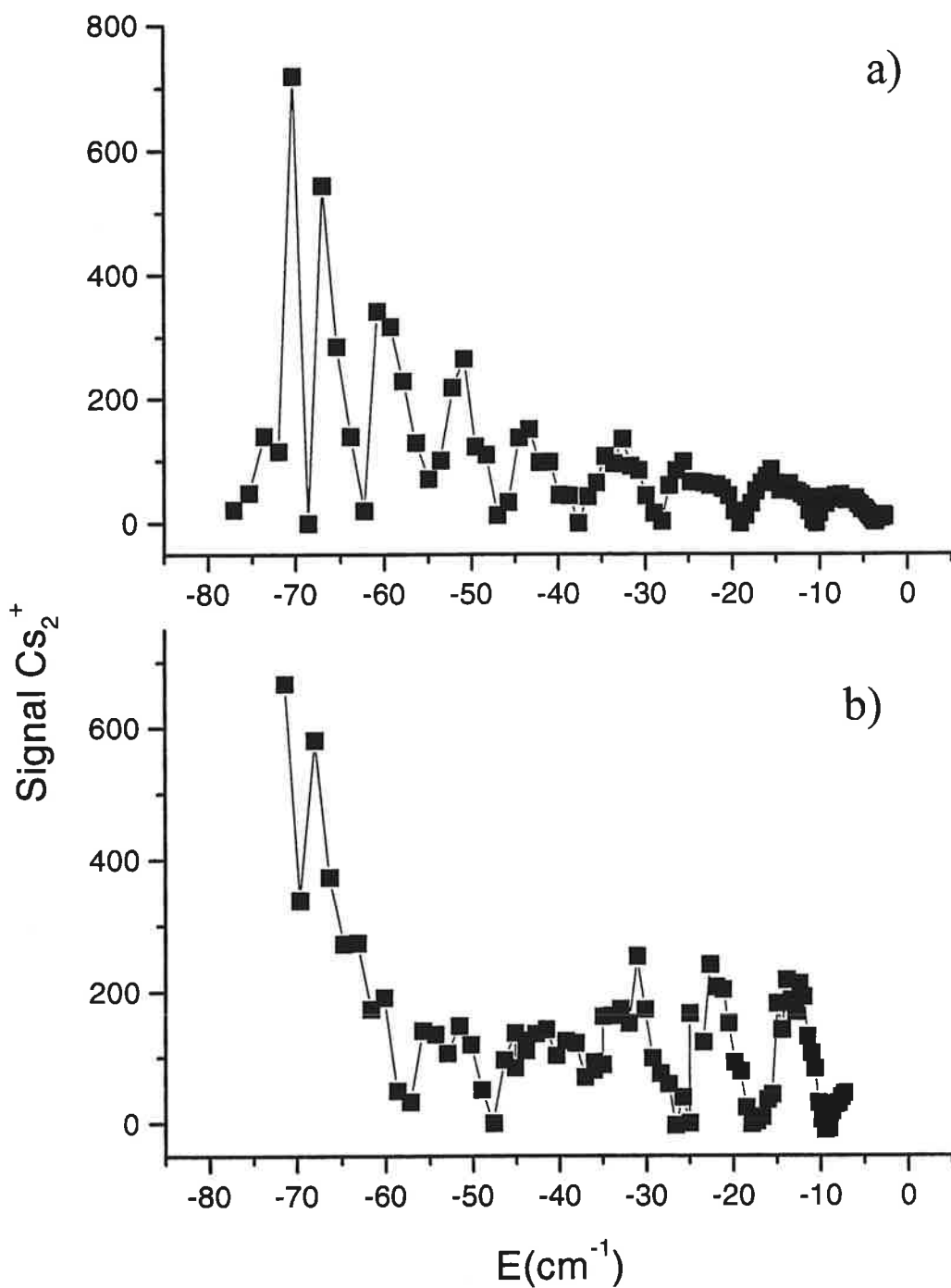


FIG. 3.9: Comparaison des spectres de photoassociation polarisés : a) les atomes sont polarisés dans l'état $F=4$, $m_F = 4$; b) les atomes sont polarisés dans l'état $F=3$, $m_F = 3$. L'analyse des modulations d'intensité du spectre a) a conduit à la détermination de la longueur de diffusion de l'état triplet. Le paragraphe 3.2.3 est consacré à l'étude qualitative du spectre b).

b) Mise en évidence d'un couplage

Dans le cas de la détermination de la longueur de diffusion triplet (photoassociation des atomes polarisés dans l'état $F=4, m_F=4$), l'intensité des raies de photoassociation du spectre 0_g^- se présente sous la forme d'oscillations dans le spectre. Conformément à l'équation 3.8, le taux de photoassociation pour des niveaux vibrationnels suffisamment élevés peut s'écrire sous la forme $\Gamma_{PA} \propto |\Psi(R_0^n)|^2$. Alors, si on considère la racine carrée de l'intensité des raies de photoassociation, et si on trace cette valeur en fonction du point tournant externe du niveau vibrationnel excité, on visualise qualitativement, du moins pour les distances interatomiques élevées, la valeur absolue de la fonction d'onde des atomes en collision (voir partie b) de la figure 3.10). Alors, on peut tracer une fonction d'onde, à un signe arbitraire près (voir partie a) de la figure 3.10). En particulier, il est facile d'interpréter les minima du signal de photoassociation comme des voisinages des noeuds de la fonction d'onde des atomes en collision. Notons que cette analyse permet de donner des informations quantitatives sur la phase de la fonction d'onde des atomes en collision. Cependant, du fait des éventuels phénomènes de saturation et des variations dans l'efficacité de détection, elle ne donne pas d'information sur l'amplitude globale de la fonction d'onde, ni sur les variations de l'amplitude en fonction de la distance interatomique.

On a tracé dans la partie c) de la figure 3.10, en fonction du point tournant externe de la molécule excitée, la racine carrée du signal Cs_2^+ obtenu dans le cas de la photoassociation des atomes polarisés dans l'état $F=3, m_F=3$. On espère ainsi obtenir des informations sur la valeur absolue de la fonction d'onde des atomes en collision. La comparaison de la partie c) et de la partie b) de la figure 3.10 est riche d'informations. En particulier, pour les distances interatomiques courtes, il apparaît que les oscillations du signal pour le spectre 3-3 sont difficiles à interpréter en termes d'oscillations régulières d'une fonction d'onde. A grande distance, cependant, le signal reprend une apparence oscillante. On peut alors observer un très léger déphasage (modulo π) des oscillations du spectre 3-3 par rapport aux oscillations du spectre 4-4.

Ces observations suggèrent les conclusions suivantes : à courte distance, le taux de photoassociation ne peut se mettre sous la forme : $\Gamma_{PA} \propto |\Psi(R_0^n)|^2$. Ceci est la signature du fait que la voie de collision n'est pas une voie de collision découplée : l'état se projette sur plusieurs états. On est ici dans une situation où l'approximation de Born-Oppenheimer échoue à bien décrire l'état du système : à courte distance interatomique, la paire d'atomes ne peut pas être décrite par une fonction d'onde simple. On retiendra cependant qu'un fort signal de photoassociation pour les niveaux vibrationnels les plus bas ($v \leq 30$) signale une grande probabilité de présence des atomes à distances relativement courtes ($R \leq 38 a_0$). A plus grande distance interatomique ($R \geq 40 a_0$), cependant, le signal de photoassociation reprend une apparence d'oscillations régulières, qu'on peut mettre sous la forme $|\Psi(R_0^n)|^2$ où Ψ représente une fonction d'onde à longue distance. La paire d'atomes en collision est donc bien décrite par une fonction d'onde à longue distance. On peut déduire de la phase de la fonction d'onde de collision à longue distance la longueur de diffusion de l'état $F=3, m_F = 3$.

Les prochains paragraphes sont consacrés à l'évaluation de la longueur de diffusion de l'état

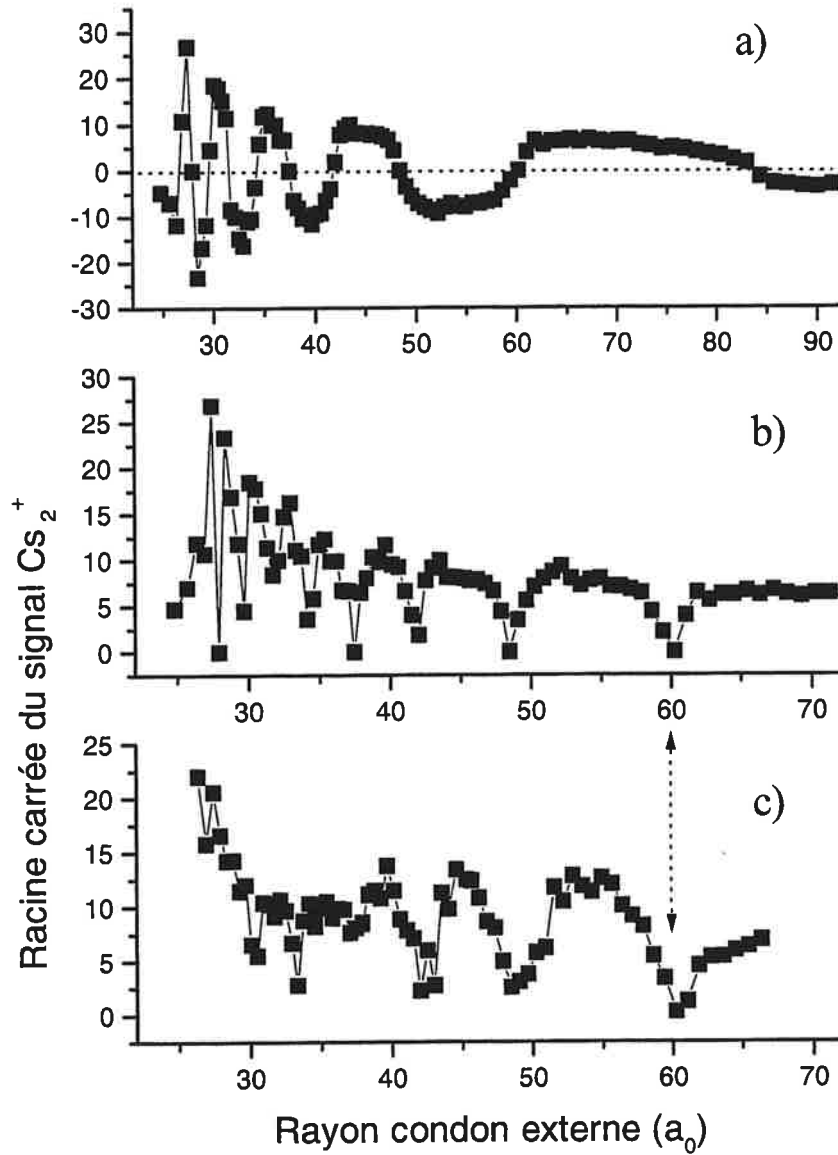


FIG. 3.10: Spectre de photoassociation en fonction du point tournant externe des molécules excitées. Pour les niveaux vibrationnels suffisamment élevés, le taux de photoassociation est proportionnel à $|\Psi(R_0^n)|^2$. Cette figure montre qualitativement comment on peut déduire du spectre de photoassociation des informations sur la fonction d'onde des atomes en collision. Sur la partie b) est tracée la racine carrée du signal de photoassociation obtenu avec des atomes dans l'état $F=4, m_F = 4$; ceci donne des renseignements sur $|\Psi(R_0^n)|$. Sur la partie a), on a qualitativement construit, en partant de b), une fonction d'onde $\Psi(R_0^n)$; le signe de la fonction d'onde obtenue est arbitraire. Sur la partie c) est tracée la racine carrée du signal de photoassociation obtenu avec des atomes dans l'état $F=3, m_F = 3$. La flèche pointillée montre que le minimum de photoassociation se trouve pour la même distance interatomique, que les atomes soient dans $F=4, m_F = 4$ ou dans $F=3, m_F = 3$. Cela signifie que la longueur de diffusion de l'état $F=3, m_F = 3$ est approximativement égale à celle de l'état triplet, ce qui signifie ici, très grande en valeur absolue.

$F=3$, $m_F = 3$, ainsi qu'à sa variation en fonction du champ magnétique. Dans le spectre présenté figure 3.10, les oscillations à longue distance du spectre 3-3 et du spectre 4-4 sont presque en phase, ce qui implique que la longueur de diffusion de l'état $F=3$, $m_F = 3$ est, pour un champ magnétique de 7 Gauss, presque "identique" à la longueur de diffusion triplet. Comme nous l'avons montré plus haut, la longueur de diffusion triplet est très grande, ce qui signifie qu'on est au voisinage d'une résonance de diffusion pour l'état triplet. Par conséquent, l'état $F=3$, $m_F = 3$ a lui aussi à 7 Gauss une longueur de diffusion très grande en valeur absolue.

c) Variation du couplage avec le champ magnétique

Nous avons analysé, en fonction du champ magnétique dans lequel est réalisée l'expérience, les modifications des modulations d'intensité du spectre de photoassociation.

i) **Calibration du champ magnétique** Pour connaître de façon précise le champ magnétique dans lequel on opère, nous avons procédé à une calibration, en observant le déplacement des raies de photoassociation d'atomes polarisés en fonction du champ magnétique. Ce déplacement est entièrement dû à l'effet Zeeman atomique¹, qui vaut 1,4 MHz par Gauss, pour chaque atome. Sur la figure 3.11 est représentée l'expérience de calibration du champ magnétique. On mesure un décalage de la résonance de photoassociation $v=6$, $J=2$, de l'état 0_g^- , lorsque les atomes sont polarisés dans l'état $F=4$, $m_F = 4$. Ceci permet de déduire le champ magnétique local à l'endroit de la photoassociation, en fonction de la tension appliquée aux bobines utilisées pour produire le champ magnétique.

Notons que, au vu de la séquence temporelle employée pour la polarisation des atomes (voir paragraphe 1.1.6), on ne peut pas assurer que le champ magnétique soit constant au cours de la photoassociation à mieux de 15 % près (temps de montée trop long du pulse de champ magnétique). Des expériences plus précises en champ (en cours au laboratoire) nécessiteront de légères améliorations dans l'électronique utilisée pour appliquer les champs magnétique.

ii) **Effet sur la fonction d'onde des atomes en collision** Nous avons, pour trois valeurs de champ magnétique, répété l'expérience décrite précédemment. On relève, pour les différentes raies vibrationnelles, l'intensité de la raie de photoassociation $J=2$. Plusieurs effets ont été mis en évidence.

α - **Déphasage** Comme nous l'avons montré plus haut, pour les niveaux vibrationnels supérieurs à 33, les modulations d'intensité du spectre de photoassociation ont un aspect oscillant assez régulier. Cela suggère l'idée que le taux de photoassociation est alors représentatif du module carré de la fonction d'onde des atomes en collision, conformément aux prédictions.

¹On montrera au chapitre 4, paragraphe 4.3.1 a), que l'effet Zeeman dans le cas a) de Hund est proportionnel à Ω (projection de J sur l'axe moléculaire). 0_g^- étant une combinaison linéaire d'états du cas a) tels que $\Omega = 0$ (voir page 229), l'effet Zeeman sur 0_g^- est nul.

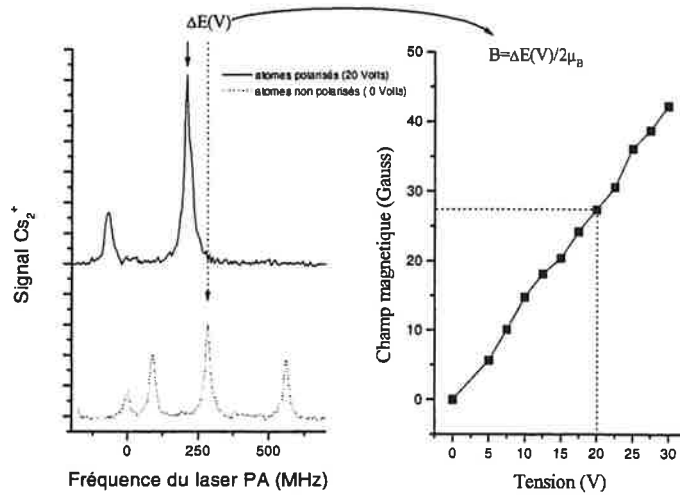


FIG. 3.11: *Méthode de calibration du champ magnétique.* Sont présentés sur la partie de droite deux spectres de la raie $v=6$ de l'état 0_g^- , l'un utilisant des atomes non polarisés, sans champ magnétique, l'autre en ayant polarisé les atomes dans l'état $F=4$, $m_F=4$. La mesure du décalage en fréquence entre les deux raies $J=2$ permet de déduire le champ magnétique local utilisé pour polariser les atomes, à l'endroit où le laser de photoassociation est appliqué, en vertu de l'équation : $\Delta E = 2\mu_B B$.

Le premier effet, très frappant, est la modification des maxima et des minima du spectre de photoassociation, en fonction du champ magnétique appliqué. Ceci est symptomatique d'un déphasage à longue distance de la fonction d'onde des atomes. Celui-ci est mis en évidence dans la figure 3.12 : dans cette figure, on a représenté les modulations en intensité du spectre de photoassociation pour les niveaux vibrationnels 33 à 57, pour trois champs magnétiques différents (7 gauss, 18,5 Gauss, et 30 Gauss). Les signaux de photoassociation aux différents champs ont été arbitrairement normalisés de manière à ce que les modulations présentent à peu près la même amplitude à longue distance. Comme dans le cas étudié dans les paragraphes précédents, les modulations du spectre s'expliquent les modulations de la fonction d'onde des atomes en collision. Celle-ci se déphase donc à longue distance, à cause d'un couplage à courte distance.

Comme on le voit sur la figure 3.10, les zéros du spectre de photoassociation pour les niveaux vibrationnels excités de 0_g^- ($v > 37$) sont localisés, en termes de rayon de Condon externe, à peu près au même endroit pour le spectre obtenu avec des atomes dans $F=4$, $m_F=4$, et pour des atomes dans $F=3$, $m_F=3$: autour de $42 a_0$, $49 a_0$, et $60 a_0$. Le paramètre asymptotique C_6 étant le même pour le potentiel singulet et le potentiel triplet, il est le même pour une paire d'atomes dans l'état $F=3$, $m_F=3$ (qui est, du fait de la structure hyperfine, combinaison linéaire triplet-singulet). La différence dans les modulations d'intensité du spectre de photoassociation provient par conséquent uniquement de la différence de longueur de diffusion, qui résume les interactions aux courtes distances interatomiques. On peut donc déduire de la figure 3.10 que la longueur de

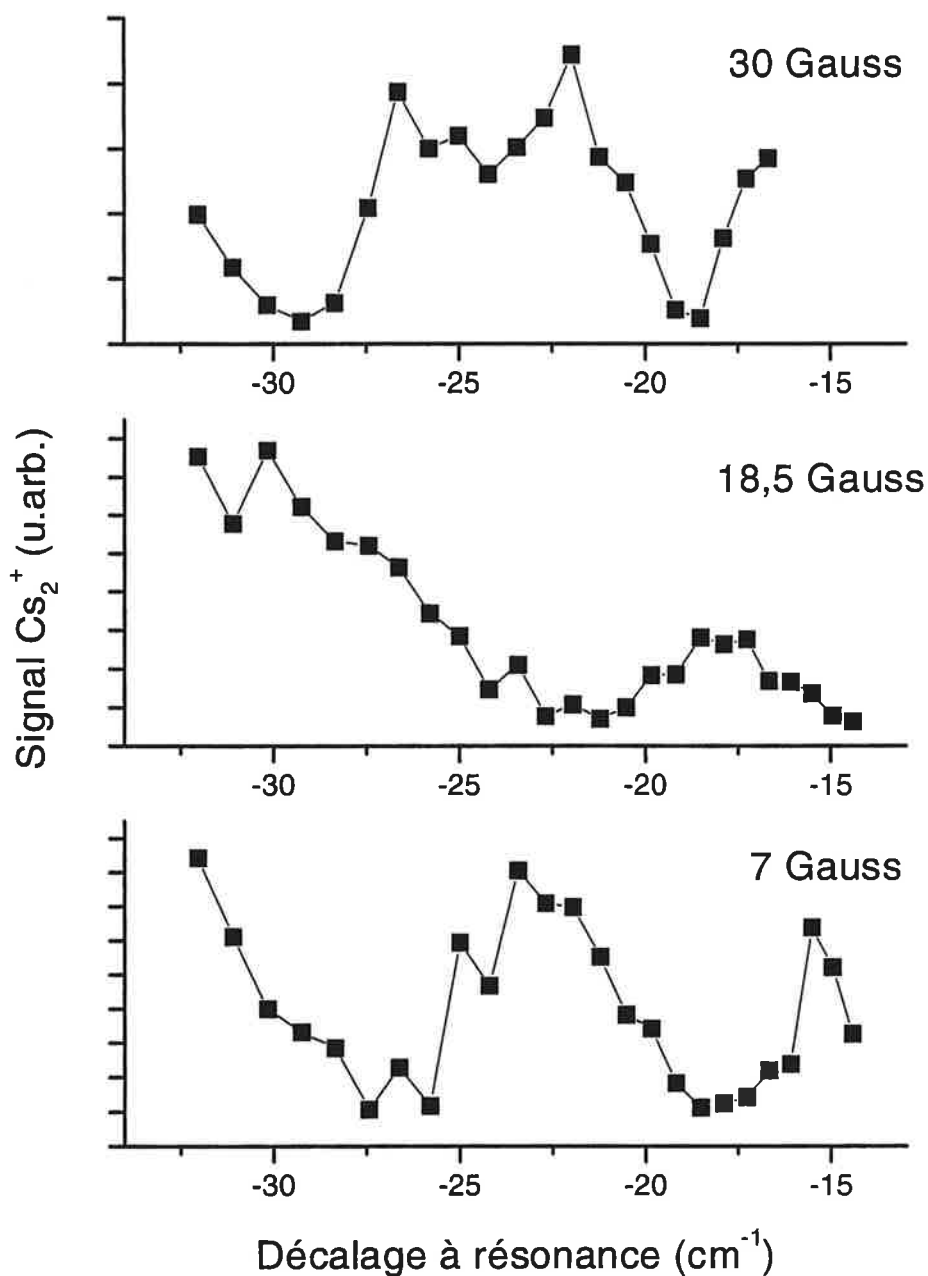


FIG. 3.12: Modulation en intensité des raies de photoassociation pour des atomes polarisés dans l'état $F=3$, $m_F=3$; trois spectres sont présentés ici, correspondant à trois champs magnétiques différents dans lesquels l'expérience est réalisée. Les minima et maxima de photoassociation sont clairement opposés entre le spectre réalisé dans 7 Gauss et celui réalisé dans 18,5 Gauss. Ceci est la signature d'un déphasage de $\pi/2$ entre les fonctions d'onde de collision à 7 et 18,5 Gauss. On peut en déduire que la longueur de diffusion est proche de zéro quand le champ magnétique vaut 18,5 Gauss. A contrario, les zéros et maxima à 7 et 30 Gauss coïncident approximativement, ce qui implique que la longueur de diffusion à 30 Gauss est très grande en valeur absolue.

diffusion de l'état $F=3$, $m_F=3$ à 7 Gauss est "environ égale" à celle de l'état triplet $F=4$, $m_F=4$. L'expression "environ égale" est ici toute qualitative : nous avons vu que la longueur de diffusion de l'état triplet est difficile à déterminer, car elle se situe au voisinage d'une résonance de diffusion. De ce fait, une très faible différence dans le spectre de photoassociation peut traduire une grande différence dans la valeur de la longueur de diffusion. On peut cependant dire que la longueur de diffusion de l'état $F=3$, $m_F=3$ à 7 Gauss est très grande en valeur absolue.

Par ailleurs, il ressort très clairement de la figure 3.12 que la longueur de diffusion de l'état $F=3$, $m_F=3$ dépend du champ magnétique. En effet, les minima du spectre de photoassociation à 18,5 Gauss coïncident approximativement aux maxima du spectre de photoassociation à 7 Gauss. Cela signifie que les fonctions d'onde des atomes à 7 Gauss et à 18,5 Gauss sont à peu près en opposition de phase. La longueur de diffusion à 7 Gauss étant proche de l'infini, ceci signifie que la longueur de diffusion à 18,5 Gauss est proche de 0. A nouveau, à 30 Gauss, la spectre de photoassociation présente des zéros en $41 a_0$ et $48 a_0$. La longueur de diffusion est alors proche de l'infini. La longueur de diffusion diverge donc quand le champ magnétique tend vers 30 Gauss. Comme nous l'expliquons au paragraphe A.5.2, cela retrace l'existence d'un niveau lié dont l'énergie est dégénérée avec l'énergie de collision des atomes.

En appliquant un champ magnétique, on déplace donc un niveau moléculaire lié de telle sorte que son énergie propre devient égale à l'énergie de collision des atomes. Le couplage (qui a été expliqué par l'interaction d'échange dans [37]) avec le niveau lié est alors résonant : il s'agit d'une résonance de Feshbach.

Nous avons donc mis en évidence de la modification de la longueur de diffusion en fonction du champ magnétique. Nous avons montré que la longueur de diffusion est petite aux alentours de 18 Gauss, et qu'elle est très grande en valeur absolue à 7 Gauss et à 30 Gauss. Ceci est la signature d'un couplage à courtes distances, résonant pour une certaine valeur de champ magnétique. Il s'agit d'une résonance de Feshbach, située aux environs de 30 Gauss, ce qui confirme les observations déjà réalisée précédemment [41].

β - Effet sur l'amplitude de la fonction d'onde La fonction d'onde connaît un déphasage à longue distance, comme on l'a vu ci-dessus pour trois champs magnétiques. On peut, plus précisément, observer une résonance de photoassociation particulière et observer son intensité en fonction du champ magnétique. Cette expérience est représentée sur la figure 3.13.

Sur cette figure est tracée l'intensité des raies de photoassociation $v=19$ et $v=44$ en fonction du champ magnétique. Il est à noter que l'intensité de la raie $v=44$ tombe pratiquement à zéro pour un champ de 17 Gauss. On devrait pouvoir observer une disparition totale de la raie de photoassociation pour une certaine valeur du champ. Nous n'avons pas recherché cette valeur précise, car notre expérience est entachée d'une incertitude relative de 15 % sur le champ magnétique, liée au temps de montée lent des bobines utilisées pour produire celui-ci.

Comme le montre la figure 3.13, l'intensité de la raie vibrationnelle $v = 19$ n'est nulle pour aucune valeur du champ magnétique. De manière générale, le comportement en fonction du champ

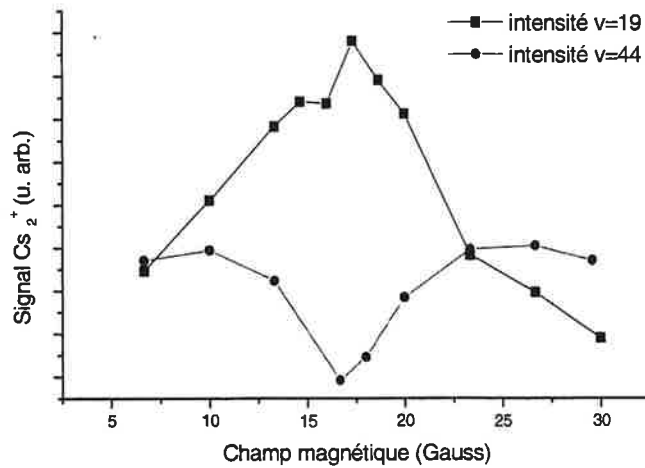


FIG. 3.13: Intensité des raies de photoassociation $v=19$, $J=2$, et $v=44$, $J=2$ en fonction du champ magnétique. Le signal pour $v=44$ s'annule aux environs de 17 Gauss. Par contre, le signal pour $v=19$ ne s'annule jamais. Ceci est le signe d'un couplage à courte distance, qui augmente la probabilité de présence à relativement courte distance interatomique, à laquelle la photoassociation du niveau vibrationnel $v=19$ est efficace.

magnétique des raies vibrationnelles $v \lesssim 30$ est très différent du comportement des raies vibrationnelles $v \gtrsim 30$. Alors que ces dernières caractérisent plutôt la fonction d'onde des atomes en collision, l'intensité des raies de photoassociation $v \leq 30$ donne plutôt des renseignements sur l'état de la paire d'atomes aux courtes distances interatomiques.

Nous allons maintenant évaluer qualitativement la probabilité de présence des atomes en collision à courte et à longue distance interatomique. Le graphe présenté figure 3.12 a été réalisé de manière à mettre en évidence le déphasage à longue distance de la fonction d'onde : les amplitudes des maxima de photoassociation ont été arbitrairement choisies égales à longue distance (entre 40 et 60 a_0 environ). Ceci ne correspond pas exactement à nos observations. Une image plus exacte de l'amplitude du signal observé est montrée figure 3.14. Ce graphe suggère que l'amplitude à relativement longue distance de la fonction d'onde des atomes en collision est petite lorsque la longueur de diffusion est nulle.

Lorsqu'on considère un potentiel isolé, ou un mouvement purement adiabatique, et lorsque la longueur de diffusion est nulle, l'amplitude de la fonction d'onde est petite à courte distance. La situation dans le cas présent est donc opposée : ici, le spectre de photoassociation est intense pour les niveaux vibrationnels inférieurs à $v = 30$, ce qui indique une forte probabilité de présence à relativement courtes distances, alors que la longueur de diffusion est très petite.

On peut comprendre la situation par l'image simple suivante : du fait du couplage résonant, la fonction d'onde des atomes en collision est augmentée à courte distance, car les atomes oscillent dans un niveau quasi moléculaire lié, avant de se pré-dissocier. A plus longue distance (entre 40 et

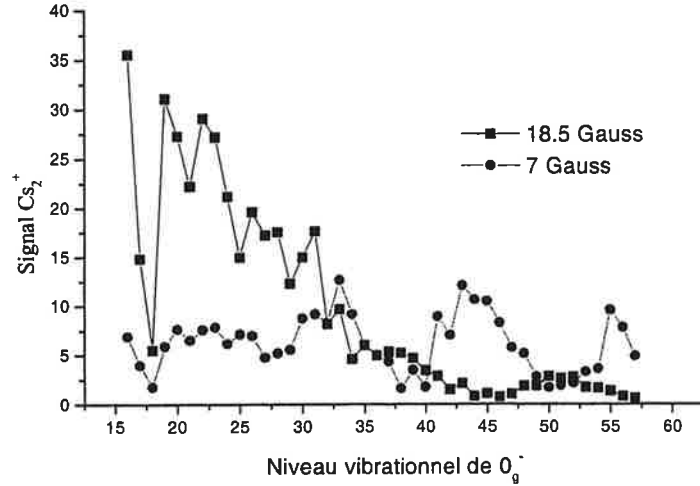


FIG. 3.14: Comparaison du spectre de photoassociation 0_g^- à partir d'atomes polarisés dans l'état $F=3$, $m_F = 3$, pour deux champs magnétiques : 7 et 18,5 Gauss. On distingue qualitativement deux régions distinctes : pour $v \leq 30$ et $v \geq 30$. Le spectre pour $v \leq 30$ renseigne sur la probabilité de présence des atomes à une distance interatomique inférieure au point tournant externe de $v=30$, c'est-à-dire $38 a_0$. Pour $v > 30$, le spectre renseigne sur la fonction d'onde de collision pour $R > 38 a_0$.

$60 a_0$), le couplage en zone interne se traduit par un déphasage de la fonction d'onde (si bien que la longueur de diffusion peut être nulle), et aussi par une diminution de l'amplitude de la fonction d'onde. Rappelons ici qu'aux distances considérées ici ($< 70 a_0$), le potentiel d'interaction entre les atomes n'est pas négligeable. A plus longue distance, dans la région où le potentiel peut être négligé, on s'attend à ce que le couplage ne modifie que la phase des oscillations de la fonction d'onde des atomes en collision, et non pas leur amplitude.

γ - Effet sur la partie interne de la fonction d'onde On a représenté sur la figure 3.15 les intensités des raies de photoassociation (signal Cs_2^+) pour les niveaux vibrationnels 16 à 20, en fonction du champ magnétique. Le minimum de photoassociation pour $v=18$ semble ne pas dépendre du champ magnétique. Seule l'intensité de l'ensemble des raies de photoassociation correspondant à des niveaux vibrationnels profonds (pour lesquels la photoassociation a lieu à courtes distances) semble affectée par les variations de champ magnétique.

Ceci indique que, si la probabilité de présence des atomes à courte distance est augmentée lorsque le couplage est résonant, l'état de la paire d'atomes à courte distance est toujours couplé, quel que soit le champ magnétique entre 7 et 30 Gauss. Ceci signifie que la résonance de Feshbach est large (20 Gauss correspond à un déplacement Zeeman de plusieurs dizaines de MHz, comme on le verra plus loin). Pour avoir une idée précise de l'état de la paire d'atomes à courte distance, il est nécessaire de connaître les fonctions d'onde non couplées, ainsi que le potentiel d'interaction. Le

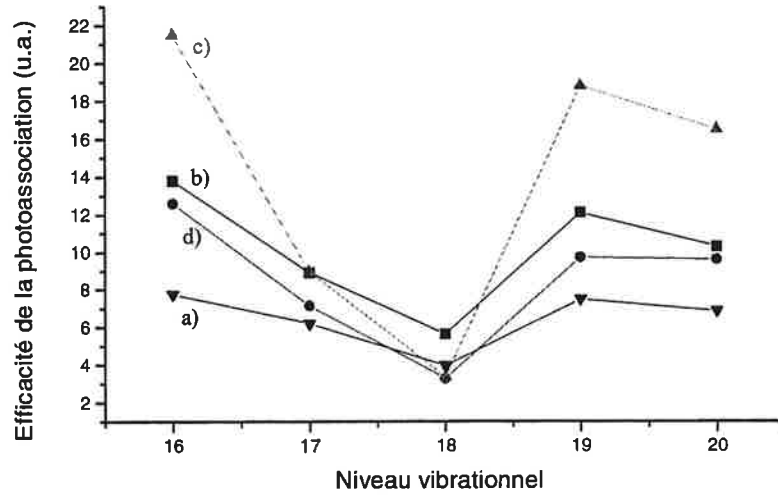


FIG. 3.15: Intensité des raies de photoassociation 16 à 20 en fonction du champ magnétique : a) -7 Gauss ; b) 3,5 Gauss ; c) 17.5 Gauss ; d) 35 Gauss.

formalisme des équations couplées est alors nécessaire pour décrire ce problème. Nous rappelons en annexe quelques éléments élémentaires portant sur la résolution d'équation couplées. Une étude générale de ce problème sort cependant du cadre de ce manuscrit.

Notons que la situation rencontrée ici montre que la longueur de diffusion ne caractérise pas toujours entièrement les collisions entre atomes froids. En effet, d'après les observations faites ici, il est possible d'obtenir une longueur de diffusion nulle, et en même temps une forte amplitude de la fonction d'onde à courte distance. Si l'état atomique n'est pas minimal en énergie, il est envisageable que le taux de collisions inélastiques soit fort, bien que la longueur de diffusion soit nulle. Si l'état atomique est minimal en énergie, les collisions inélastiques sont évidemment supprimées. L'augmentation de la probabilité de présence à courte distance pourrait cependant conduire, malgré une longueur de diffusion faible, à un taux de collision à trois corps important. Un tel phénomène a été mis en évidence dans un condensat de sodium [54].

d) Interprétation : la théorie asymptotique et les équations couplées

L'analyse des données expérimentales menée ici prouve, sans calcul supplémentaire par rapport aux calculs numériques effectués pour la détermination de la longueur de diffusion de l'état triplet, l'existence une résonance de Feshbach située aux alentours de 30 Gauss. Nous montrons aussi que la longueur de diffusion de l'état $F=3$, $m_F=3$ est quasi-nulle pour un champ de 18,5 Gauss. Ceci signifie qu'on peut faire varier continuellement, de $-\infty$ à $+\infty$ la longueur de diffusion, en passant par une longueur de diffusion nulle.

Pour aller plus loin dans l'analyse, et en particulier pour déterminer le valeur précise de la longueur de diffusion au voisinage de la résonance de Feshbach, il convient de prendre en compte

le couplage en utilisant le formalisme des équations couplées, et en le mettant au service de la théorie asymptotique développé dans le cas non couplé de la longueur de diffusion triplet. Une telle analyse est en cours, mais ne fait pas partie de mon travail de thèse. Notons qu'elle permettra de connaître précisément, en fonction du champ magnétique, la longueur de diffusion, et aussi de retracer les modulations d'intensité à courte distance. On peut se reporter à la référence [44] pour une présentation de la théorie utile à la description d'une résonance de Feshbach.

Dans l'annexe A.7, je présente brièvement les équations couplées, visant à décrire une résonance de Feshbach. J'en rappelle les résultats dans le prochain paragraphe. Le formalisme utilisé ici pourrait s'appliquer à plusieurs expériences décrites dans ce manuscrit ; résonance de Feshbach (ce paragraphe), couplage radial et photoassociation de l'état 0_u^+ (paragraphe 4.1.3), photoassociation Raman stimulée (paragraphe 4.2.2) ; on pourrait aussi l'utiliser pour la description de la réaction de photoassociation, afin d'analyser l'effet de la résonance de photoassociation sur la fonction d'onde des atomes en collision.

Ce paragraphe vise à montrer qualitativement comment le formalisme des équations couplées est un cadre nécessaire à l'interprétation des spectres de photoassociation présentés dans cette partie. Dans l'annexe A.7, je rappelle que si un état moléculaire s'écrit sous la forme

$$|\Psi\rangle = \Phi(R) |2\rangle + \Psi(R) |1\rangle$$

où $|1\rangle$ et $|2\rangle$ représentent une base électronique, alors, les fonctions d'onde Φ et Ψ obéissent au système d'équations couplées suivant :

$$\left(-\frac{\hbar^2}{2\mu R} \frac{\partial^2}{\partial R^2} R + \frac{J(J+1)\hbar^2}{2\mu R^2} + V_2(R) \right) \Phi(R) + V_{12}\Psi(R) = E\Phi(R) \quad (3.10)$$

$$\left(-\frac{\hbar^2}{2\mu R} \frac{\partial^2}{\partial R^2} R + \frac{J(J+1)\hbar^2}{2\mu R^2} + V_1(R) \right) \Psi(R) + V_{21}\Phi(R) = E\Psi(R) \quad (3.11)$$

où $V_{1,2}$ représentent les potentiels adiabatiques et $V_{12,21}$ le couplage. On montre alors que $\Psi(R) = \Psi_0(R) + \Psi_{fesh}(R)$, où $\Psi_0(R)$ est la solution propre adiabatique de l'équation 3.11, lorsque $V_{21} = 0$, et

$$\Psi_{fesh}(R) = - \int_{R_{int}}^{R_{ext}} dR' F(R-R') V_{21}(R') \Phi(R') \quad (3.12)$$

où $F(R)$ est la fonction de Green $F(R) = -\frac{1}{4\pi} \frac{\exp(ikR)}{R}$; R_{int} et R_{ext} sont les points tournants interne et externe du niveau moléculaire.

Il est clair d'après la formule 3.12 que l'effet de la résonance de Feshbach sur Ψ est particulièrement marqué à courte distance : en effet, du fait de la forme en $1/R$ de la fonction de Green, $\Psi_{fesh}(R)$ aura une contribution importante dans les régions où V_{12} est non nul, et où la fonction d'onde $\Phi(R)$ est non nulle (c'est-à-dire dans les limites $R \in [R_{int}; R_{ext}]$)

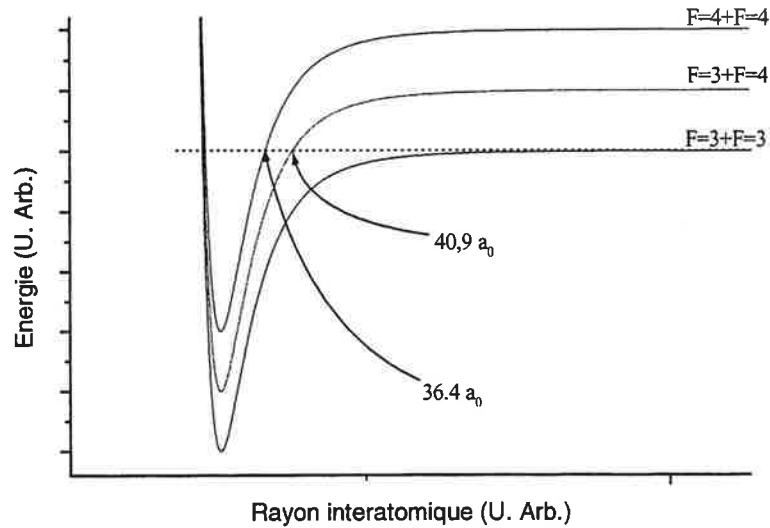


FIG. 3.16: Schéma de principe de la résonance de Feshbach. L'étude des spectres de photoassociation 3-3 montre que quand la distance de photoassociation est inférieure à $40 a_0$, l'effet du couplage est très important. Cela accrédite l'idée que le couplage se produit avec un niveau lié dans un des potentiels convergeant asymptotiquement vers les limite de dissociation 4-4 ou 4-3.

Dans le cas qui nous intéresse, comme nous l'avons déjà souligné, il apparaît très clairement sur les spectres (voir par exemple figure 3.14) qu'on peut en effet distinguer deux régions bien distinctes : pour $v \lesssim 30$ (qui correspond à un point tournant externe, et donc à une distance typique de photoassociation de $38 a_0$), les oscillations du spectre se brouillent. Qualitativement, on peut donc affirmer que le niveau moléculaire lié résonant avec l'énergie de collision des atomes a un point tournant externe de l'ordre de $38 a_0$.

Ceci indique que la résonance de Feshbach provient d'un niveau moléculaire asymptotiquement lié à la limite de dissociation $F = 3 + F = 4$ ou bien $F = 4 + F = 4$. En effet, supposant que $C_6 = 6510$ u.a., il est aisé de montrer que le point tournant externe d'un tel niveau vaut respectivement $40,9 a_0$ ou $36,4 a_0$. La situation est schématiquement détaillée figure 3.16. Il est pour l'instant difficile, à l'aide de ces seules données, de savoir à laquelle de ces deux asymptotes le niveau moléculaire lié appartient. Notons cependant que le spectre de photoassociation à 30 Gauss (c'est-à-dire au voisinage de la résonance de Feshbach) possède un minimum pour $v=36$, niveau dont le point tournant externe vaut $41 a_0$. Ceci semble indiquer que le point tournant externe du niveau avec lequel la résonance se fait est inférieur à $41 a_0$, c'est-à-dire que le niveau semble asymptotiquement lié à l'asymptote $F = 4 + F = 4$.

Pour les raies supérieures à $v = 30$, les oscillations du spectre prennent un aspect régulier. Ceci aussi peut s'expliquer à l'aide de la formule 3.12 : en effet, si on note $\Psi(R) = G(R)/R$, on montre aisément qu'à grandes distances, la fonction d'onde $G(R)$ des atomes en collision s'écrit sous la forme :

$$G(R) \propto \exp(i(kR + \delta_{fesh}))$$

La résonance de Feshbach se traduit donc à longue distance par un déphasage de la fonction d'onde des atomes en collision. Celle-ci conserve alors un aspect d'oscillations régulières, et ce sont ces oscillations qui expliquent les oscillations du spectre de photoassociation, conformément à la formule pour le taux de photoassociation : $\Gamma_{PA} \propto |\Psi(R_0^n)|^2$.

La résonance de Feshbach se produit donc avec un niveau moléculaire lié à la limite de dissociation $F = 4 + F = 3$ ou $F = 4 + F = 4$. Ceci confirme que l'interaction d'échange est à l'origine de la résonance de Feshbach que nous avons étudiée dans cette partie du manuscrit [37]. Comme le montre la figure 1.16, le couplage est donc important entre 20 et 28 a_0 . L'interaction d'échange conserve F_t , si bien que le niveau initial sera donc couplé aux niveaux pour lesquels $F_t = 6$. Le couplage est donc ici un couplage à trois voies, liées respectivement aux limites de dissociation atomiques $F=3 + F=3$, $F=3 + F=4$ ou $F=4 + F=4$.

Comme il a été évoqué au chapitre 1, et comme nous le verrons plus précisément au paragraphe 3.3.1, la symétrie u/g est brisée par l'interaction hyperfine. On peut calculer, en fonction de R , comment se projette un état de $F_t=6$ sur la base gerade-ungerade. Le résultat de ce calcul est lui aussi représenté sur la figure 1.16. Comme on le voit sur cette figure, les états couplés avec l'état initial sont des états qui à courte distance sont purement ungerade. Du fait du couplage, la partie ungerade de l'état de collision augmente donc à courte distance ($R \leq 40 a_0$), ce qui explique probablement en partie pourquoi l'intensité des raies du spectre 0_g^- (de symétrie gerade) de photoassociation augmente pour les niveaux vibrationnel $v \leq 30$ lorsqu'on s'approche de la résonance de Feshbach.

e) Conclusion

Nous avons dans cette partie décrit une étude expérimentale d'une résonance de Feshbach. Si on est capable de trouver sans calcul la valeur du champ magnétique pour laquelle la longueur de diffusion est proche de zéro, la détermination de celle-ci au voisinage de la résonance de Feshbach est plus problématique. La difficulté repose ici, comme dans le cas de la détermination de la longueur de diffusion triplet, sur la grande valeur absolue de la longueur de diffusion, au voisinage de la résonance.

De manière à connaître, en fonction du champ, la valeur de la longueur de diffusion, il pourrait être intéressant de reprendre les expériences effectuées ici, en se plaçant au voisinage de la valeur pour laquelle la longueur de diffusion est nulle. On pourrait alors, sans difficulté, déduire des modulations en intensité du spectre pour les niveaux vibrationnels excités, la longueur de diffusion, sans que la dépendance en fonction de paramètre asymptotique C_6 soit cruciale. Déterminer la longueur de diffusion pour trois champs magnétiques dans la région où le champ est petit devrait permettre de la déduire pour tous les champs, grâce à la formule A.23. On pourrait par exemple choisir les valeurs de 12, 17, et 22 Gauss. Un travail préliminaire à la réalisation d'une telle

expérience est l'amélioration du dispositif électronique qui pilote les bobines qui créent le champ magnétique, pour en réduire le temps de montée. On pourra ainsi diminuer très sensiblement l'incertitude sur le champ magnétique, qui est à l'heure actuelle de l'ordre de 15 %.

Nous avons noté que pour aller plus loin dans l'analyse théorique des résultats expérimentaux présentés ici, il est nécessaire d'employer le formalisme des équations couplées qui seul peut reproduire les modulations d'intensité du spectre de photoassociation pour les niveaux vibrationnels profonds.

Les résultats présentés ici mettent en évidence l'existence d'une résonance de Feshbach aux environs de 30 Gauss, et montrent que la longueur de diffusion presque nulle pour un champ de 18,5 Gauss. Ceci devrait permettre le contrôle des collisions lors du refroidissement évaporatif en vue de l'obtention d'un condensat avec l'atome de césium. On s'attend en effet à ce que la section efficace de collisions élastiques varie comme le carré de la longueur de diffusion.

Il convient cependant d'insister que, contrairement à ce qui se passe lorsqu'il n'existe qu'une voie de collision, le fait d'obtenir une longueur de diffusion nulle ne signifie pas que la probabilité de présence à courte distance est faible. La résonance de Feshbach est très large, et le couplage avec l'état discret n'est jamais négligeable, quel que soit le champ magnétique entre 7 et 30 Gauss au moins. Cela signifie que, lors du refroidissement évaporatif prévu pour la condensation de Bose-Einstein, il est très probable que l'efficacité du refroidissement soit diminuée du fait de la quasi-résonance avec un état lié, qui augmente la probabilité de présence à courte distance. Il est probable que ceci engendre une augmentation du taux de collisions à trois corps, comme il a par ailleurs été observé au sein d'un condensat de sodium au voisinage d'une résonance de Feshbach [54].

En outre, une fois le condensat obtenu, au voisinage de la résonance de Feshbach, la phase atomique est couplée à un état discret moléculaire, ce qui pose la question de la nature même de l'échantillon obtenu. Dans un tel condensat, il existerait un couplage entre la phase du condensat atomique, et une autre phase, que l'on est tenté d'appeler moléculaire. Le problème ici est que le formalisme décrit ici vaut pour l'interaction entre deux atomes. Associer deux atomes particuliers dans un condensat brise-t-il la cohérence? Ceci ouvre la question : qu'est-ce qu'un condensat de molécules? Qu'est-ce que la longueur de diffusion molécule-molécule? On peut se reporter à la référence [48] pour ces questions. Notons que de ce point de vue, l'observation d'une résonance de Feshbach dans un condensat est formellement équivalente à la réalisation d'une expérience de photoassociation Raman stimulée dans un condensat, puisque dans les deux cas on couple les atomes d'un condensat à un niveau moléculaire. On reviendra au chapitre 4 sur la question de la photoassociation Raman stimulée.

La question de la condensation de Bose-Einstein pour les molécules est aujourd'hui une question "chaude", qui fait l'objet de nombreuses publications théoriques (voir par exemple [94], [95], [96], ou [97]). Ces publications font intervenir une résonance de Feshbach, ou bien une expérience de photoassociation Raman stimulée, ou bien les deux. Je ne souhaite pas ici écrire une revue de toutes les idées émises à ce sujet. Plusieurs expériences ont déjà été réalisées au sein de condensats,

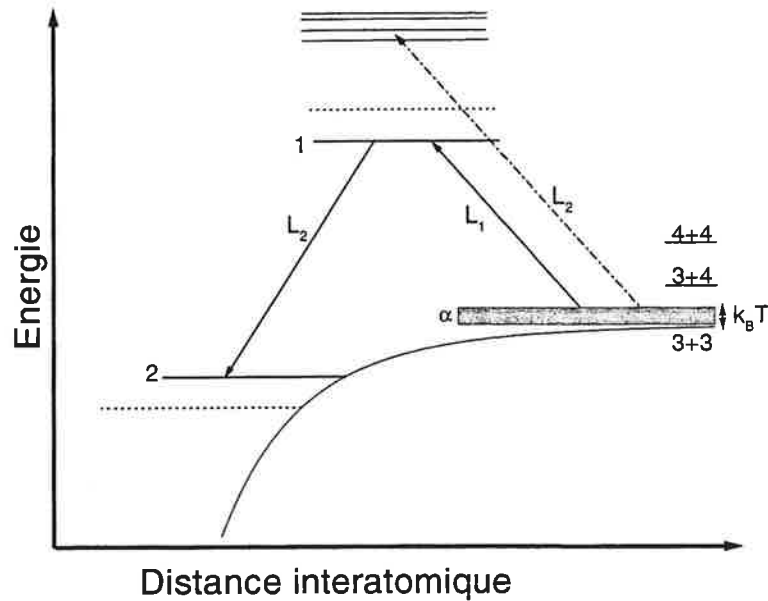


FIG. 3.17: Schéma de principe des expériences à deux photons pour la détermination de la longueur de diffusion. Un premier laser L_1 est à résonance avec une raie de photoassociation. L'état excité est noté $|1\rangle$. La fréquence d'un second laser L_2 est balayée. A cause du déplacement lumineux engendré par L_2 , l'efficacité de photoassociation est diminuée lorsque le laser L_2 est à résonance entre $|1\rangle$ et un niveau moléculaire du fondamental.

portant sur la photoassociation Raman stimulée [57], ou sur l'analyse d'un condensat au voisinage d'une résonance de Feshbach, soulignant la possibilité de manipuler le condensat [46], de mettre en évidence des effets à N corps [54]. Dans la référence [47], les auteurs montrent une implosion d'un condensat de rubidium lorsque la longueur de diffusion dans le condensat devient négative : le condensat commence par s'effondrer, avant d'exploser en éjectant des atomes chauds (et aussi très probablement des molécules), ce qui est encore mal compris.

3.3 La spectroscopie de frustration de photoassociation par effet Autler-Townes

Nous décrivons ici une deuxième méthode, indépendante de la première, pour déterminer les paramètres collisionnels de l'atome de césium. Cette nouvelle mesure doit d'une part permettre de valider nos mesures de longueurs de diffusion, et d'autre part de mieux caractériser le niveau moléculaire à l'origine de la résonance de Feshbach observée et décrite ci-dessus.

L'étude menée ici consiste à exploiter le déplacement des niveaux moléculaires dû à l'effet Autler-Townes. Conformément aux notations de la figure 3.17, un premier laser L_1 est résonant

avec un niveau moléculaire excité, noté $|1\rangle$; l'état photoassocié dans notre cas est 1_u , et on détecte les molécules produites par désexcitation dans le fondamental. Un second laser est balayé en longueur d'onde. Ce laser a deux effets, symbolisés par les flèches notées L_2 dans la figure 3.17 : le laser L_2 peut induire lui-même une réaction de photoassociation et augmenter ainsi le nombre de molécules froides détectées. Le second effet du laser L_2 apparaît à chaque fois que sa fréquence coïncide avec la différence d'énergie entre le niveau photoassocié par L_1 et un niveau lié dans le potentiel fondamental. Le couplage entre les deux niveaux se traduit par un déplacement lumineux du niveau photoassocié. Ceci réduit le taux de photoassociation par le laser L_1 , et donc le nombre de molécules produites. On peut ainsi réaliser une spectroscopie, qu'on peut par exemple appeler "spectroscopie de frustration de photoassociation" par effet Autler-Townes, qui donne accès aux derniers niveaux liés dans le fondamental. Ce type de spectroscopie a déjà été utilisé pour déterminer les paramètres collisionnels dans le cas du lithium [49] et du rubidium [50]. On sait en effet que la valeur de la longueur de diffusion pour un état donné dépend de façon cruciale de la position en énergie du dernier niveau lié dans le potentiel fondamental. Nos données devraient ainsi permettre la détermination des longueurs de diffusion de l'atome de césium, et des paramètres asymptotiques.

Avant toute étude approfondie des spectres Autler-Townes obtenus, il est nécessaire de préciser la nature du niveau $|1\rangle$. Nous allons par conséquent dans un premier temps résumer quelques résultats de spectroscopie concernant l'état 1_u , corrélé à la limite de dissociation à $6s + 6p_{3/2}$. Les spectres obtenus ont fait l'objet d'une étude théorique approfondie, que l'on pourra trouver dans la référence [64].

Puis je préciserai les modalités de l'expérience Autler-Townes réalisée, ainsi que les résultats obtenus. Enfin, je résumerai le principe de l'analyse théorique de ces données.

3.3.1 Spectroscopie de l'état 1_u .

Je rappelle ici quelques résultats que nous avons obtenus concernant la spectroscopie de l'état 1_u sous $p_{3/2}$. Ces résultats sont remarquables en ce qui concerne l'accord entre théorie et expérience. Nous nous intéressons cependant à ces résultats surtout parce qu'ils permettent de caractériser l'état relais que nous utilisons pour la spectroscopie de type Autler-Townes, dont le principe est esquissé ci-dessus.

a) Spectre 1_u

Les données spectroscopiques 1_u sont toutes obtenues en utilisant la détection ionique. Aucune diminution n'est observé dans la fluorescence du piège. Le spectre présente des modulations en intensité, très différentes selon qu'on réalise l'expérience en piège magnéto-optique ou en dark-spot. Ceci est dû à la différence entre les noeuds de la fonction d'onde du fondamental lorsque les atomes sont dans $F=4$, et lorsque les atomes sont dans $F=3$. Si on réalise un zoom d'une raie vibrationnelle, on observe une structure très complexe, due au mélange de la structure hyperfine

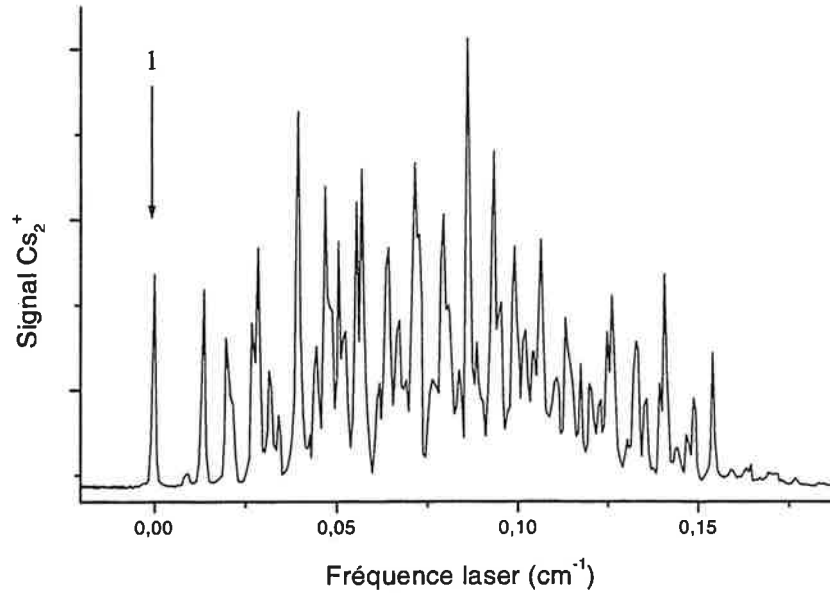


FIG. 3.18: Zoom de la raie vibrationnelle $1_u v=1$, en détection ionique. La raie 1 désignée par la flèche correspond au sous-niveau $|1\rangle$ utilisé comme état relais dans les expériences à deux photons (voir texte).

et de la structure rotationnelle [64].

b) Principe du traitement théorique

L'analyse théorique de la structure complexe mise en évidence par la figure 3.18 nécessite la prise en compte simultanée de la structure hyperfine et de la structure rotationnelle de la molécule. Cette étude est détaillée dans la référence [64]. Si on tient compte de la rotation des noyaux, une molécule dans l'état 1_u , est caractérisée par les nombres quantiques F_1, F_2, F_t, M_F, F, M , où F est le moment angulaire total de la molécule, et M sa projection sur un axe fixe. Il convient de diagonaliser la somme des matrices d'interaction asymptotique, prises à une distance interatomique fixe (le fond du puits de potentiel 1_u), et de l'opérateur $B_v \vec{l}^2$, où B_v est la constante rotationnelle $\langle \frac{1}{2\mu R^2} \rangle$. Pour expliciter les interactions asymptotiques, le vecteur d'état de la molécule se calcule explicitement avec l'algèbre angulaire en fonction de la base du cas (a) de Hund, base dans laquelle on sait calculer le développement multipolaire et l'interaction d'échange. Pour expliciter l'opérateur $B_v \vec{l}^2$, il convient de développer le vecteur d'état sur une base où l est bon nombre quantique, c'est-à-dire sur la base des ondes partielles. Il suffit pour ce faire d'utiliser les fonctions de rotation de Wigner. Il s'agit ensuite de diagonaliser la matrice d'interaction totale. L'interaction d'échange n'est pas introduite pour décrire l'état 1_u , car on est à suffisamment longue distance pour pouvoir la négliger. L'accord entre théorie et expérience jugera cette approximation. On suppose par ailleurs que les ondes partielles participant au processus de photoassociation sont les ondes s,

p, d, f et g. Le calcul a été effectué pour $F_1=F_2=3$.

Il est alors possible de calculer l'intensité d'une raie de photoassociation. Dans l'état initial, on suppose que les deux atomes sont dans $F=3$. F_t et m_{F_t} sont par contre aléatoires ; les ondes partielles prises en compte sont $l \in [0, 4]$, et on leur attribue un poids, lié à la hauteur des barrières rotationnelles à franchir pour participer au processus de photoassociation. On calcule alors le moment dipolaire de transition entre l'état initial, et l'état final, et l'intensité de photoassociation, conformément au modèle perturbatif de la photoassociation développé en annexe B, est donnée par :

$$\sum_{\eta'} \langle \eta | \vec{\epsilon} \cdot \vec{\mu} | \eta' \rangle \langle \eta' | \rho(0) | \eta' \rangle \langle \eta' | \vec{\epsilon} \cdot \vec{\mu} | \eta \rangle$$

$|\eta\rangle$ est l'état photoassocié, caractérisé par F et M . L'accord entre théorie et expérience est remarquable. Nous avons répété ces expériences de spectroscopie de l'état 1_u , cette fois-ci à partir d'atomes polarisés dans l'état $F=3$, $m_F = 3$, et en utilisant un laser de photoassociation lui-même polarisé ; l'accord avec la théorie reste excellent.

Les résultats présentés ici montrent donc qu'on peut interpréter le spectre de photoassociation de l'état 1_u sans faire intervenir l'énergie d'échange. On a donc affaire à un état purement longue distance, au sens où les ont définis Stwalley Unang et Pichler [65]. Le type de molécules auquel nous avons ici affaire est tout à fait particulier : les fonctions d'onde électroniques ne se recouvrent pas, et la cohésion de la molécule est assurée par les seules forces électrostatiques. A nouveau, les expériences de photoassociation nous placent à la limite entre physique atomique et physique moléculaire.

c) Résultat ; caractérisation de la composante relais.

Grâce à l'interprétation du spectre de photoassociation de l'état 1_u , nous pouvons caractériser entièrement chaque sous-structure d'une raie vibrationnelle. En particulier, nous nous intéressons dans la suite au niveau noté $|1\rangle$ sur la figure 3.18. Ce niveau est choisi parce qu'il est bien isolé. Dans les expériences à deux photons présentées ici, le premier laser est fixé à résonance avec ce niveau $|1\rangle$. Le second laser est balayé, ce qui permet de sonder des niveaux ro-vibrationnels des états fondamentaux, tels que le moment dipolaire avec le niveau $|1\rangle$ est non nul, ou non négligeable. Le niveau $|1\rangle$ a un moment angulaire total $F_t=7$.

Une transition à un photon depuis cet état, pour lequel $F_t=7$, permet d'atteindre des états tels que $F_t=6,7$ ou 8 . On en déduit qu'on doit, par spectroscopie Autler-Townes, observer des niveaux de $F_t=6, 7$ ou 8 , asymptotiquement corrélés à $F = 3+F = 3$, $F = 3+F = 4$, ou $F = 4+F = 4$. Ces niveaux sont des niveaux de grande élongation, puisque la distance interatomique moyenne pour 1_u , $v = 1$ est de l'ordre de $30 a_0$. A ces distances, le moment de rotation des noyaux est découplé du moment angulaire interne (voir par exemple le paragraphe A.5.1). l est alors un bon nombre quantique. Un niveau rotationnel très excité du potentiel fondamental sera donc caractérisé d'une

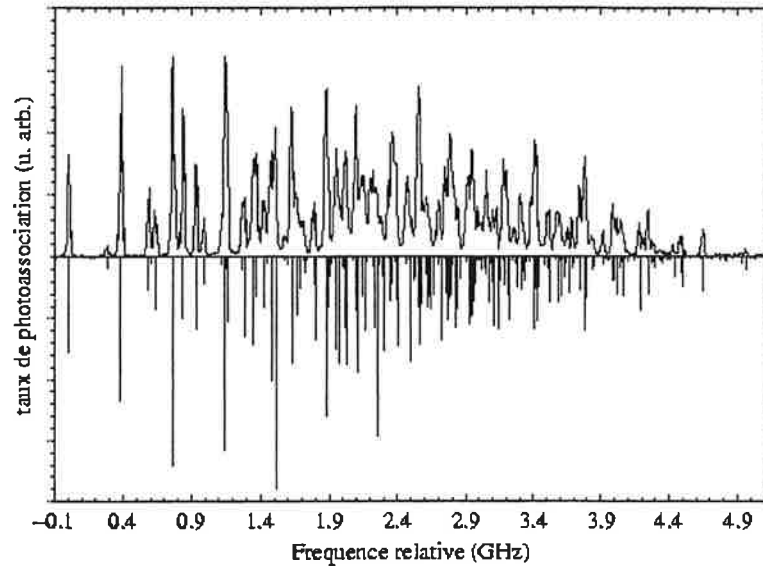


FIG. 3.19: Comparaison entre le spectre expérimental (avec des atomes préparés dans l'état $F=3$, mais non polarisés) et la théorie (voir référence [64]). Le très bon accord entre théorie et expérience confirme que l'interaction d'échange est complètement négligeable.

part par son moment angulaire ($F=3+F=3$, $F=3+F=4$, ou $F=4+F=4$) et d'autre part par une structure rotationnelle $l(l+1) \left\langle \frac{\hbar^2}{2\mu R^2} \right\rangle$. Par ailleurs, le niveau $|1\rangle$ comprend, projeté sur la base des ondes partielles de collision, des ondes $l=0, 2, 4$, et, marginalement, 6. On s'attend donc à observer $l=0, 2$ et 4, ainsi que peut-être 6.

La composante relais peut être choisie dans la raie de photoassociation $v=0$, $v=1$ ou $v=2$.

3.3.2 Spectroscopie par frustration de photoassociation par effet Autler-Townes

a) Principe de l'expérience

Dans cette expérience, un laser L_1 est fixe, à résonance avec une raie de photoassociation (voir figure 3.17). On détecte les molécules produites par désexcitation radiative des molécules photoassociées. On balaye la longueur d'onde d'un second laser, noté L_2 , sur quelques dizaines de GHz, au voisinage de la résonance de photoassociation. Du fait de la présence du laser L_2 , il se produit un déplacement lumineux, qui est maximal lorsque le laser L_2 est en résonance avec une transition moléculaire entre le niveau photoassocié par L_1 et un niveau lié de l'état fondamental.

L'effet de déplacement lumineux moléculaire est analogue à l'effet de déplacement lumineux atomique. La principale différence réside dans le fait qu'il est moins facile de déduire la fréquence de Rabi de la transition à partir de l'intensité du laser : en effet, conformément à l'équation A.16, la fréquence de Rabi moléculaire dépend du recouvrement de Franck-Condon entre les deux niveaux moléculaires, et du dipôle électronique.

On peut cependant rendre compte aisément du phénomène en utilisant le formalisme de l'atome à deux niveaux habillé [66], et en considérant la fréquence de Rabi comme un paramètre ajustable que l'on déduit de l'expérience. Nous rappelons brièvement le modèle de l'atome habillé dans le paragraphe suivant.

b) L'effet Autler-Townes

i) **Modèle de l'atome habillé** La fréquence du laser L_2 est accordée au voisinage de la résonance de la transition entre le niveau $|1\rangle$ et le niveau $|2\rangle$. On considère le système $(|1\rangle, |2\rangle)$ habillé par les photons du laser L_2 . On passe du niveau $|2\rangle$ au niveau $|1\rangle$ par absorption d'un photon. Les vecteurs $|1, n\rangle$ et $|2, n+1\rangle$ (où $i = (1, 2)$ est le niveau électronique, et n est le nombre de photons) décrivent donc bien le système : $|1, n\rangle$ n'est couplé qu'avec $|2, n+1\rangle$. Le système $(|1, n\rangle, |2, n+1\rangle)$ est ainsi un système à deux niveaux couplés par interaction dipolaire. Le hamiltonien d'interaction peut s'écrire dans la base $(|1, n\rangle, |2, n+1\rangle)$:

$$H = \frac{\hbar}{2} \begin{pmatrix} -\delta & \Omega_{1,2} \\ \Omega_{1,2} & \delta \end{pmatrix}$$

où $\Omega_{1,2}$ est la fréquence de Rabi entre les niveaux $|1\rangle$ et $|2\rangle$: $\hbar\Omega_{1,2} = 2 \langle 1 | \vec{E}_2 \cdot \vec{d} | 2 \rangle$. Les états propres du hamiltonien sont alors des combinaisons linéaires des vecteurs $|1, n\rangle$ et $|2, n+1\rangle$, qui s'obtiennent en diagonalisant le hamiltonien d'interaction entre les niveaux $|1, n\rangle, |2, n+1\rangle$; ils s'écrivent :

$$\begin{aligned} |+\rangle &= \frac{\Omega_{1,2}}{\sqrt{\Omega_{1,2}^2 + \left(\delta - \sqrt{\delta^2 + \Omega_{1,2}^2}\right)^2}} |1, n\rangle - \frac{\delta - \sqrt{\delta^2 + \Omega_{1,2}^2}}{\sqrt{\Omega_{1,2}^2 + \left(\delta - \sqrt{\delta^2 + \Omega_{1,2}^2}\right)^2}} |2, n+1\rangle \\ |-\rangle &= \frac{-\Omega_{1,2}}{\sqrt{\Omega_{1,2}^2 + \left(\delta + \sqrt{\delta^2 + \Omega_{1,2}^2}\right)^2}} |1, n\rangle + \frac{\delta + \sqrt{\delta^2 + \Omega_{1,2}^2}}{\sqrt{\Omega_{1,2}^2 + \left(\delta + \sqrt{\delta^2 + \Omega_{1,2}^2}\right)^2}} |2, n+1\rangle \end{aligned}$$

On note :

$$\begin{aligned} |+\rangle &= a(\Omega_{1,2}, \delta) |1, n\rangle + b(\Omega_{1,2}, \delta) |2, n+1\rangle \\ |-\rangle &= c(\Omega_{1,2}, \delta) |1, n\rangle + d(\Omega_{1,2}, \delta) |2, n+1\rangle \end{aligned}$$

Les énergies propres sont alors :

$$E(\pm) = \mp \hbar \sqrt{\frac{\delta^2}{4} + \frac{\Omega_{1,2}^2}{4}} \quad (3.13)$$

Loin de la résonance (pour $\delta \gg \Omega_{1,2}$), les expressions de $|+\rangle$ et $|-\rangle$ se simplifient :

$$\begin{aligned} |+\rangle &\approx |1, n\rangle + \frac{\Omega_{1,2}}{2\delta} |2, n+1\rangle \\ |-\rangle &\approx -\frac{\Omega_{1,2}}{2\delta} |1, n\rangle + |2, n+1\rangle \end{aligned}$$

A résonance, les deux états propres sont séparés de $\hbar\Omega_{1,2}$, et les vecteurs propres sont $\frac{1}{\sqrt{2}}(|1, n\rangle \pm |2, n+1\rangle)$.

ii) Prise en compte de la géométrie du problème. Le déplacement lumineux dépend à la fois de la fréquence et de l'intensité du laser L_2 . Pour une représentation réaliste des expériences que nous allons décrire, il est nécessaire de prendre en compte la géométrie du problème. Comptent en particulier le profil d'intensité des faisceaux laser L_1 et L_2 au niveau du piège (il est gaussien : $I_i \propto \exp(-2\frac{x^2+y^2}{w_i^2})$ voir équation 1.19), et la forme du piège lui-même (gaussienne elle-aussi : $n(x, y, z) \propto \exp(-\frac{x^2+y^2+z^2}{2\sigma_n^2})$ voir équation 1.7).

Les fréquences de Rabi locales s'écrivent $\Omega_{1,2}^2 \exp(-\frac{4(x^2+y^2)}{w_{1,2}^2})$. Le taux de photoassociation du niveau $|2\rangle$ par le laser L_1 s'écrit, d'après l'équation B.10 :

$$\Gamma(\Delta) \propto \int dx dy dz I_{PA}(x, y, z) n^2(x, y, z) \frac{|a(\Omega_{1,2}, \delta)|^2 + |c(\Omega_{1,2}, \delta)|^2}{\gamma^2 + \left(\Delta \mp \sqrt{\delta^2 + \Omega_{1,2}^2 \exp(-\frac{2(x^2+y^2)}{w^2})} \right)^2} \quad (3.14)$$

où Δ est le décalage du laser L_1 à la résonance de photoassociation, et γ est la largeur naturelle du niveau excité (de l'ordre de 15 MHz). J'ai utilisé cette formule pour ajuster le paramètre $\Omega_{1,2}$, en utilisant les valeurs mesurées : $w_1 \approx w_2 \approx \sigma_n \approx 300 \mu m$. Les résultats de la simulation réalisée sont reproduits figure 3.20.

iii) Simulation de l'expérience L'expérience réalisée est symbolisée dans la partie supérieure de la figure 3.20. Sur cette figure, la fréquence du laser L_2 (en abscisse) est balayée sur 400 MHz au voisinage d'une résonance $|1\rangle \rightarrow |2\rangle$. Les énergies propres des niveaux $|+\rangle$ et $|-\rangle$ sont représentées. Le laser L_1 est symbolisé par le trait gris, dont l'épaisseur figure la largeur du laser. Celle-ci est exagérée sur le dessin pour plus de lisibilité. Le laser L_1 peuple par réaction de photoassociation la partie excitée des niveaux $|+\rangle$ et $|-\rangle$. La partie inférieure de la figure représente le taux de photoassociation déduit de l'équation 3.14 dans le piège magnéto-optique, en fonction de la fréquence du laser L_2 , pour différentes intensités de celui-ci. L'effet de suppression de la réaction de photoassociation est maximal quand le laser L_2 est exactement résonant avec la transition $|1\rangle \rightarrow |2\rangle$, ce qui permet en principe la spectroscopie de l'état moléculaire fondamental.

La suppression du signal de photoassociation est très importante dès que la fréquence de Rabi pour la résonance $|1\rangle \rightarrow |2\rangle$ est supérieure à 20 MHz. Pour une transition atomique $6s \rightarrow 6p$, l'intensité laser nécessaire pour obtenir une telle fréquence de Rabi est faible (de l'ordre du mW/cm²).

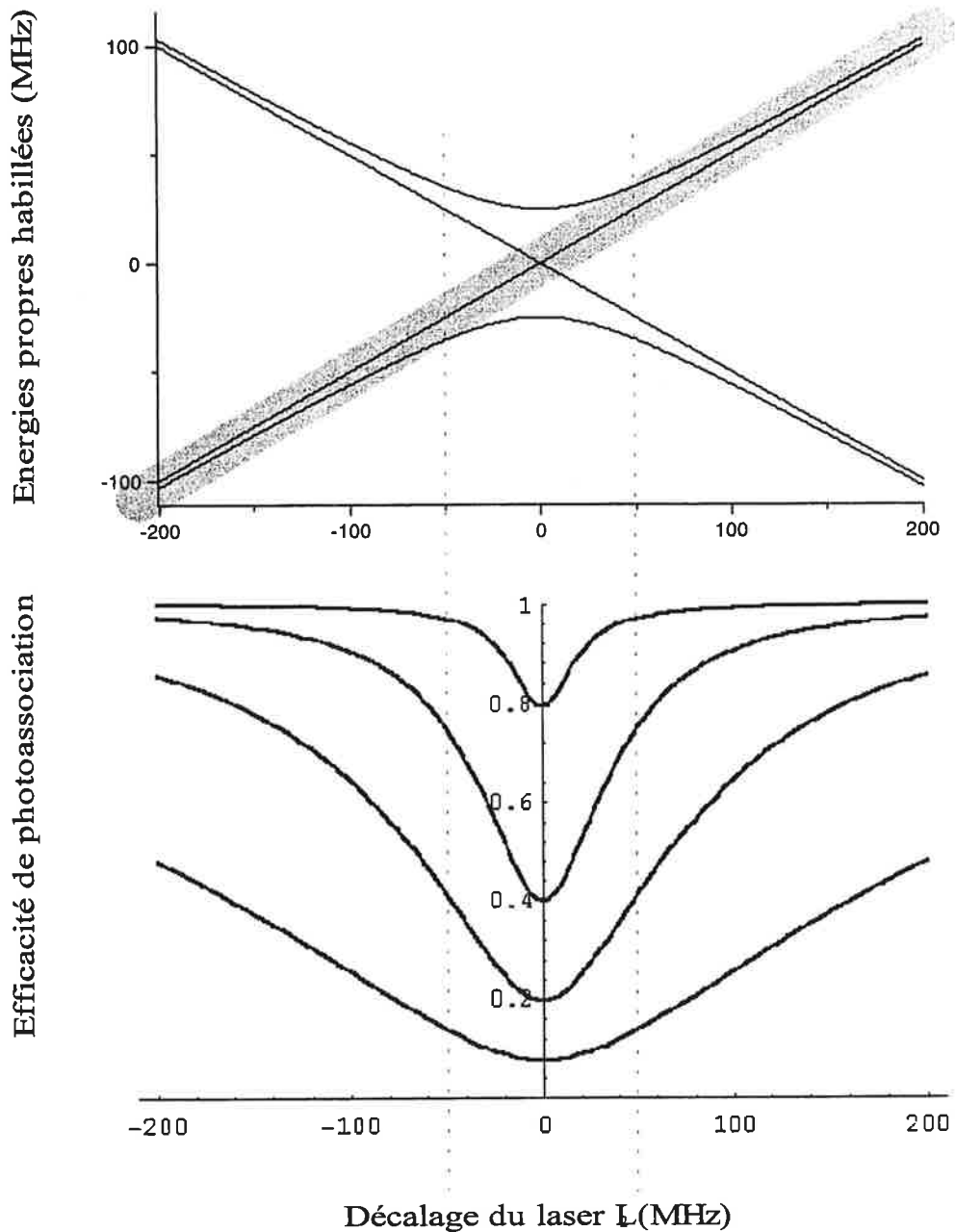


FIG. 3.20: Partie supérieure : effet Autler-Townes. Les niveaux habillés sont représentés pour une fréquence de Rabi associée à la transition $|1\rangle \rightarrow |2\rangle$ de 50 MHz. Le laser L_1 est symbolisé par le trait gris. L'énergie du système {molécule+laser L_2 } augmente quand la fréquence du laser L_2 augmente, si bien que lorsque l'expérience est réalisée on se déplace sur la courbe grisée, dont la largeur figure l'incertitude expérimentale (ici la largeur du laser). Le laser L_1 , par réaction de photoassociation, sonde la partie électroniquement excitée des niveaux habillés. Le taux de photoassociation calculé suppose une répartition gaussienne de la densité dans le piège et de l'intensité laser. Il est représenté dans la partie inférieure de la figure, en fonction de la fréquence du laser L_2 , pour quatre valeurs de la fréquence de Rabi $\Omega_{1,2}$: 20 MHz, 50 MHz, 85 MHz, et 150 MHz. Le taux de photoassociation est normalisé à 1 pour un décalage à résonance infini du laser L_2 .

Comme nous allons le voir cependant, du fait principalement du facteur de recouvrement de Franck-Condon intervenant dans l'efficacité de la transition dipolaire pour les molécules, une telle fréquence de Rabi nécessite dans notre cas des intensités bien plus fortes (de l'ordre de 50 W/cm^2). La spectroscopie développée ici est donc très particulière : dans notre cas, elle est facilitée par la forme en double-puits du potentiel de l'état 1_u corrélé à la limite de dissociation $6s + 6p_{3/2}$. Comme nous l'expliquerons plus loin, cette structure en double-puits augmente la probabilité de présence à courte distance interatomique des noyaux de la molécule produite par photoassociation. Ceci permet d'obtenir des fréquences de Rabi $\Omega_{1,2}$ fortes pour des intensités laser "raisonnables". Cependant, dès que les niveaux moléculaires du fondamental sont trop profondément liés, les molécules ont une extension spatiale bien plus faible que les molécules excitées, et la fréquence de Rabi des transitions devient extrêmement faible. Cela signifie que la spectroscopie présentée ici est particulièrement adaptée pour la spectroscopie des derniers niveaux liés de l'état fondamental. C'est ce qui en fait le principal intérêt.

c) Mise en oeuvre de l'expérience

On prépare, conformément à la procédure décrite en 1.1.5, les atomes dans $F=3$. Un laser Sa :Ti L_1 (décrit au paragraphe 1.3.3) est à résonance avec le niveau $|1\rangle$. Ce niveau est la composante relais décrite plus haut (ici $1_u, v = 1$; voir paragraphe 3.3.1). L'intensité du laser Sa :Ti est d'environ 500 W/cm^2 . On détecte les molécules qui se désexcitent, après photoassociation, dans le fondamental, avec un laser à colorant pulsé (processus REMPI, voir 1.3.5). Le nombre d'ions moléculaires détectés est de quelques centaines. On balaye la fréquence d'une diode laser L_2 (voir 1.3.3) aux alentours de la fréquence de résonance ($F = 3 + F = 3$) $\rightarrow 1$. L'intensité du laser L_2 est de 30 W/cm^2 . Le spectre obtenu est présenté en vue panoramique figure 3.21. On observe deux phénomènes, sur un fond constant de signal lié à la photoassociation par le laser L_1 . Premièrement, le signal moléculaire augmente lorsque le laser L_2 lui-même est à résonance avec une raie de photoassociation. Il s'agit de la réaction de photoassociation induite par le laser L_2 . Ce signal ne nous intéresse pas. Deuxièmement, le signal moléculaire décroît pour certaines valeurs de la fréquence du laser L_2 .

On peut répéter la même expérience en fixant le laser L_1 sur la résonance de photoassociation $1_u, v=0$ (on se place à nouveau sur la sous-structure isolée la plus rouge, notée $|0\rangle$, caractérisée par les mêmes symétries que le niveau $|1\rangle$). A nouveau, lorsque le laser L_2 est à résonance avec des raies 1_u , le signal augmente. Et, de même, pour certaines valeurs de la fréquence de L_2 , le signal moléculaire décroît. On peut observer que les valeurs de la fréquence du laser L_2 pour lesquelles le signal décroît lorsque le laser L_1 est à résonance avec $|0\rangle$ sont décalées d'une valeur $\Delta\omega$ fixe par rapport à la situation où L_1 est en résonance avec 1. On vérifie que $\hbar\Delta\omega$ correspond exactement à la différence d'énergie entre $|0\rangle$ et $|1\rangle$: les positions des signaux résonants qui correspondent à une décroissance du nombre de molécules détectées ne dépendent que de la différence de fréquence entre les laser L_1 et L_2 .

Ceci prouve que le signal de décroissance observé est lié à la résonance du laser L_2 entre le

niveau relai $|i\rangle$ ($=|0\rangle, |1\rangle$) et certains niveaux du fondamental, et exclut tout effet de transitions vers des états doublement excités (sous la limite $6p_{3/2} + 6p_{3/2}$). On interprète la décroissance du signal de photoassociation par l'effet Autler-Townes, comme annoncé plus haut.

d) Spectres obtenus

Deux spectres ont été obtenus, correspondant aux niveaux relais $|1\rangle$ et $|0\rangle$. Ces deux spectres sont montrés figure 3.21. 18 résonances ont été observées, correspondant aux derniers niveaux des progressions ro-vibrationnelles convergeant vers les limites de dissociation 3+3, 3+4 et 4+4. Une structure rotationnelle est observée pour la plupart des niveaux. Cette structure comprend presque toujours $l=0, 2$, et 4, et parfois, peut-être $l=6$, comme prévu (voir paragraphe 3.3.1).

Le spectre obtenu présente un fond de bruit important. Cela est dû à la photoassociation par le Sa :Ti du niveau $|1\rangle$ et aux fluctuations de fréquence du laser Sa :Ti (la résonance de photoassociation est très étroite, de l'ordre de 15 MHz). Plusieurs spectres ont donc été effectués pour les mêmes plages de fréquence, de manière à s'assurer de la reproductibilité des raies pointées.

Les données obtenues sont récapitulées dans le tableau ci-dessous. Les énergies sont données en cm^{-1} ; l'origine est située à la limite de dissociation $F=3+F=3$; la précision relative de ces données est de 10^{-3} cm^{-1} ; la précision absolue, limitée par le spectre de référence 1_u utilisé pour déterminer la limite de dissociation 3-3, est de l'ordre de $5 \cdot 10^{-3} \text{ cm}^{-1}$.

La largeur des raies observées varie entre 60 et 150 MHz à mi-hauteur. Pour les raies les plus intenses, le signal de photoassociation est presque complètement supprimé. Comme le montre la figure 3.20, cela signifie que la fréquence de Rabi entre le niveau excité et les niveaux du fondamental varie, selon les raies, entre 20 MHz et 150 MHz. Pour des fréquences de Rabi plus faibles que 20 MHz, la décroissance du signal de photoassociation est trop faible pour être observée. Des fréquences de Rabi supérieures à 150 MHz correspondraient à des résonances plus larges que celles effectivement observées. Rappelons ici que l'intensité du laser L_2 est de 30 W/cm^2 .

Une structure rotationnelle typique est mise en évidence sur la figure 3.22. On peut ainsi réaliser un fit pour déterminer la constante de rotation pour chaque raie vibrationnelle.

L'analyse des structures rotationnelles permet d'évaluer le rayon moyen des molécules sondées dans le fondamental (noté $R_{ext}(a_0)$ dans le tableau). La taille des molécules dans les derniers niveaux sous la limite de dissociation varie entre 25 et $55 a_0$. La valeur de $55 a_0$ correspond probablement à l'avant-dernier niveau. Pour le dernier niveau, la structure rotationnelle, très étroite, n'est pas résolue. Tous les niveaux observés ici sont situés dans les deux derniers cm^{-1} sous la limite de dissociation 4+4; leur taille les situe dans la région "hyperfine", c'est-à-dire qu'on ne peut pas négliger le couplage dû à la structure hyperfine. Une méthode d'étude analogue à celle développée dans la référence [36] est en cours de mise en oeuvre au laboratoire. Il s'agit à nouveau, comme pour le cas de l'analyse des données mettant en évidence une résonance de Feshbach (voir plus haut), de combiner l'analyse asymptotique et le formalisme des équations couplées.

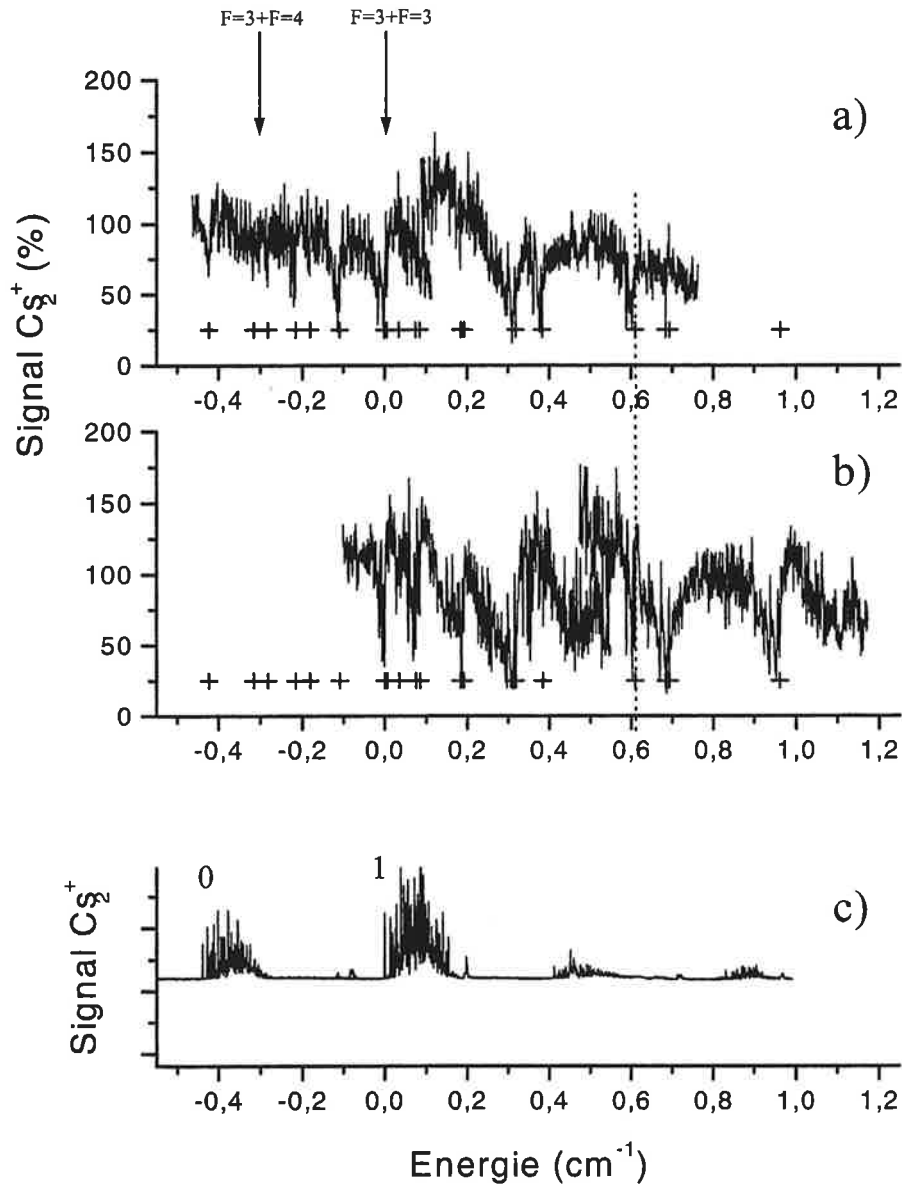


FIG. 3.21: Vue panoramique des deux spectres obtenus par la méthode de frustration de la réaction de photoassociation par effet Autler-Townes. La limite de dissociation $F=3+F=3$ est située en 0. En a) est présenté le spectre obtenu alors que le laser L_1 est résonant avec $|1\rangle$; en b) est présenté le spectre obtenu alors que le laser L_1 est résonant avec $|0\rangle$. Le spectre a) est décalé de la différence de fréquence entre $|0\rangle$ et $|1\rangle$, de façon à montrer que les mêmes niveaux du fondamental sont observés, quel que soit l'état relais ($|0\rangle$ ou $|1\rangle$). Ceci est souligné par le trait pointillé qui montre la coïncidence pour une raie donnée dans les deux spectres. En c) est présenté le spectre obtenu sans laser $Sa :Ti$. Il s'agit donc d'un spectre de photoassociation "classique", et les structures observées sont les structures 1_u habituelles. Ces mêmes structures apparaissent sur le spectre b), ce qui gêne la visibilité des raies de type "Autler-Townes". La limite de dissociation 3-3 (origine des abscisse) est déterminée par l'énergie du niveau $|1\rangle$.

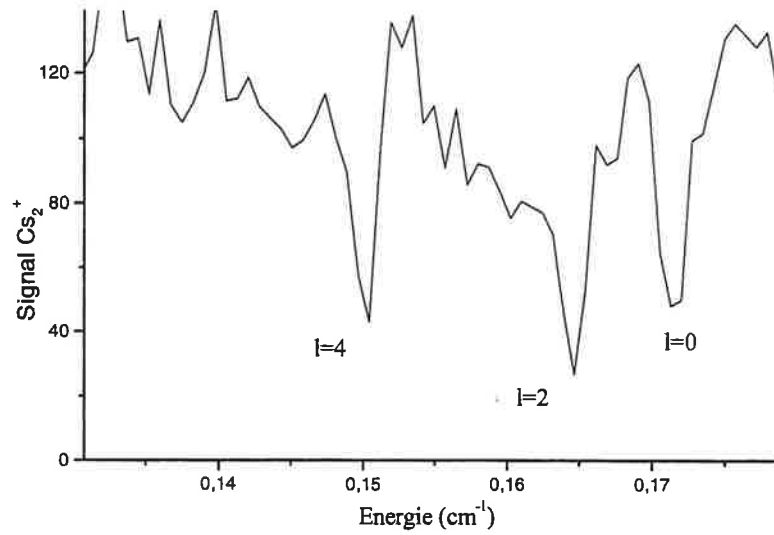


FIG. 3.22: Structure rotationnelle d'une molécule du fondamental. Les énergies de rotation de la molécule s'expriment sous la forme $l(l+1) \left\langle \frac{\hbar^2}{2\mu R^2} \right\rangle$. Ceci permet d'évaluer l'extension moyenne de la molécule : dans le cas présent, $\langle R \rangle \sim 28 a_0$.

	$l=0$ (cm ⁻¹)	$l=2$ (cm ⁻¹)	$l=4$ (cm ⁻¹)	$l=6$ (cm ⁻¹)	R_{ext} (a ₀)
i	-0,4232				
j	-0,3168				
k	-0,2817	-0,2838	-0,2874		54,6
l	-0,2157	-0,2199	-0,2265	-0,2353	39,6
m	-0,1815	-0,1853	-0,1921		40,1
n	-0,1087	-0,1136	-0,1227	-0,1338	35,0
a	-0,0005	-0,0061	-0,0137	-0,0245	35,8
o	0,005	-0,0023	-0,0165		28,3
b	0,0338	0,0281			
c	0,0746	0,0697	0,0573		32,0
d	0,0852	0,0818	0,0769		45,1
p	0,1834	0,1735	0,1578		25,7
e=p	0,192	0,1858			
u	0,3188	0,3098	0,2976		28,2
q=u	0,3188	0,3106			
r	0,38245	0,3765	0,3616	0,3493	29,2
s=f	0,6096	0,6027	0,5885	0,5714	28,6
f	0,6097	0,6029	0,5884		28,6
t=g	0,6845				
g	0,6938	0,6861	0,6696	0,6417	26,8
h	0,9611	0,9526	0,9363	0,9018	26,3

3.3.3 Analyse des données ; comparaison avec les données Feshbach.

Le traitement théorique des données spectroscopiques montrées ici fait intervenir les équations couplées. Pour le niveau excité ($|0\rangle$ ou $|1\rangle$), on a $F_t=7$. Ceci implique que, par couplage dipolaire et effet Autler-Townes, seuls les états tels que $F_t=6, 7$ ou 8 sont détectables. Dans la région qui nous intéresse, l'énergie de liaison est du même ordre de grandeur que la structure hyperfine. Les composantes triplet et singulet sont donc fortement couplées. Ni S, ni I ne sont de bons nombres quantiques, pas plus que le nombre quantique atomique F_i . Pour les molécules du fondamental, le moment angulaire total de la molécule $F_t=F_1+F_2$ est bon nombre quantique. l est lui aussi un bon nombre quantique, découplé de F_t . La molécule de F_t total fixe oscille sans suivre adiabatement les potentiels, et emprunte une voie couplée.

On peut se reporter au paragraphe A.7 pour une présentation succincte du formalisme des équations couplées. Parler plus précisément des études théoriques menées à ce sujet au laboratoire sort cependant du cadre de ce mémoire. Des études approfondies sont aujourd'hui en cours au laboratoire pour l'interprétation des données montrées dans cette partie.

Les données que nous avons acquises grâce aux expériences décrites dans cette partie donnent des renseignements sur des niveaux moléculaires dont le moment angulaire total F_t vaut 6, 7 ou 8, et dont le moment de rotation l vaut 0, 2, 4 ou 6. Ces niveaux sont situés entre 0 et 2 cm^{-1} sous la limite de dissociation $F=4+F=4$. Parmi eux devrait donc se trouver le niveau responsable de la résonance de Feshbach décrite dans la partie précédente (paragraphe 3.2.3), qui, comme nous l'avons montré plus haut, est situé environ $0,61 \text{ cm}^{-1}$ (deux fois l'écart de structure hyperfine) sous la limite de dissociation 4-4, et a pour moments $F_t = 6$ et $l = 0$.

Nous pouvons donc ici relier les données "Autler-Townes" exposées ici et celles que nous avons résumées dans le paragraphe 3.2.3 dédié à l'étude d'une résonance de Feshbach. Pour ce faire, il est nécessaire de préciser comment agit un champ magnétique sur une molécule lorsque celle-ci est dans la zone asymptotique. On peut alors considérer, son extension spatiale étant typiquement de $30 a_0$ et plus, qu'on a affaire à deux atomes indépendants, dans un état hyperfin donné. Pour des atomes polarisés dans l'état $F=3$, $m_F = +3$ (voir paragraphe 3.2.3), on a $M_{F_i}=6$. Lors de la collision, M_{F_i} est conservé. On peut alors évaluer, pour une molécule liées aux différentes asymptotes, avec $F_t=6$, $m_{F_i}=6$ fixés, quel est l'effet Zeeman, en considérant que l'effet principal du champ magnétique s'exerce sur les atomes à grande distance, presque indépendants - pour l'effet Zeeman atomique, on se reportera à la figure 1.1. Dans le tableau suivant sont calculés les effets Zeeman obtenus pour une molécule de $m_{F_i} = 6$, en fonction de l'asymptote considérée, et de la projection de F_t pour chaque atome (m_1 et m_2).

Asymptote	$F=4+F=4$	$F=4+F=3$	$F=3+F=3$
$m_{F_i}=6 (=m_1 + m_2)$	3;3 4;2 2;4	3;3 4;2	3;3
Effet Zeeman (MHz/Gauss)	2,1 2,1 2,1	-0,003 0,698	-2,106
Effet Zeeman à 30 Gauss (MHz)	63 63 63	0,09 20,94	-63,18

Pour qu'une résonance de Feshbach ait lieu à 30 Gauss, conformément aux observations du paragraphe 3.2.3, il est donc nécessaire qu'il existe un niveau asymptotiquement relié à $F=3+F=4$ situé 84 MHz ($=20,94+63,18$) ou 63 MHz ($=0,09+63,18$) sous la limite de dissociation, ou bien un niveau asymptotiquement relié à $F=4+F=4$ situé à 126 MHz ($=63+63,18$) sous la limite de dissociation. Par ailleurs, il doit s'agir d'un niveau tel que $l=0$ (car dans l'expérience de résonance de Feshbach les atomes sont polarisés et les collisions sont toutes en onde s).

Il semble en effet qu'il existe un niveau lié situé environ 150 MHz sous la limite de dissociation 3-3. La structure rotationnelle de ce niveau n'est pas bien résolue. Notons de plus que l'incertitude sur la limite de dissociation est de l'ordre de 150 MHz. D'autres expériences devront être menées pour confirmer ces données et affiner leur précision absolue.

3.4 Conclusion

J'ai présenté dans ce chapitre de nombreuses données de spectroscopie de photoassociation. Ces données, qui concernent tant l'asymptote $6s+6p_{1/2}$ que l'asymptote $6s+6p_{3/2}$ sont d'une très grande précision, la largeur du continuum de collision dans un piège magnéto-optique ($\sim 2,5$ MHz) étant inférieure à la largeur naturelle des niveaux considérés. L'application fondamentale et originale d'une telle spectroscopie est qu'elle permet de sonder les derniers niveaux liés des puits de potentiel considérés. L'analyse spectroscopique de certains états moléculaires découplés se fait par un traitement semi-classique de type LeRoy-Bernstein, ce qui permet par exemple le calcul des durées de vie et du dipole atomique. Cependant, on ne peut pas toujours appliquer un tel traitement au cas de potentiels couplés. Comme nous le verrons au chapitre suivant, le cas de la photoassociation de l'état 0_u^+ sous $p_{1/2}$, la série vibrationnelle observée en pertes de piège est marquée par une perturbation liée à un couplage radial. Ce couplage conduit à un taux de formation de molécules froides important lors de la désexcitation de la molécule photoassociée [59]. Ce n'est pas d'ailleurs la première fois que la spectroscopie de photoassociation permet la mise en évidence de couplage radial, comme le montre le cas des raies dites géantes dans la spectroscopie de 0_g^- [51]. Par ailleurs, dans le cas de 0_g^- , la spectroscopie de photoassociation a permis la reconstruction du puits de potentiel externe. Dans le cas de l'état purement longue distance 1_u , il a été possible de reproduire de manière spectaculaire un spectre de photoassociation. La puissance de l'analyse théorique réside ici dans le fait que les molécules photoassociées sont de très grande étendue spatiale, si bien que l'énergie d'échange est négligeable. Le calcul se ramène donc à un calcul ne dépendant que de constantes atomiques.

Pour toutes ces raisons, la spectroscopie est un outil d'une grande puissance, qui permet une compréhension précise des systèmes physiques moléculaires. Cependant, c'est un autre aspect de l'intérêt de la spectroscopie de photoassociation que j'ai voulu souligner dans ce chapitre : j'ai voulu montrer qu'une telle spectroscopie est un outil très puissant pour la détermination des paramètres collisionnels atomiques, comme les longueurs de diffusion. Cette détermination est un enjeu majeur en physique atomique des très basses températures. Trois jeux de données sont

exposés ici. L'un porte sur l'analyse des minima d'intensité d'un spectre de photoassociation, et a permis la détermination de la longueur de diffusion de l'état triplet. Le second est l'analyse, par une méthode équivalente, des paramètres de collision d'atomes dans l'état $F=3$, $m_F=3$, et la mise en évidence d'une résonance de Feshbach induite par un champ magnétique de 30 Gauss. Les données présentées ici doivent permettre la détermination, de la longueur de diffusion pour $F=3$, $m_F=+3$, en fonction du champ magnétique. Un dernier jeu de donnée est fourni par la spectroscopie des derniers niveaux liés des états fondamentaux moléculaires. L'analyse de ces données doit permettre la détermination des paramètres de collision de l'atome de césium, et la vérification des données déjà accumulées. Une telle vérification s'avère nécessaire au vu du débat qui oppose nos résultats à ceux, contradictoires, développés dans les références [38][37], eux-même en accord avec les résultats théoriques de [42]. Ce débat souligne la difficulté de la détermination des longueurs de diffusion, en particulier lorsque celles-ci sont grandes. De prochaines expériences seront bientôt réalisées au Laboratoire Aimé Cotton : il s'agit de la spectroscopie par frustration de photoassociation par effet Autler-Townes, en utilisant cette fois comme état relais des niveaux ro-vibrationnels de l'état 0_g^- asymptotiquement corrélé à $6s+6p_{3/2}$. Ceci pourrait permettre la spectroscopie de l'ensemble du puits de potentiel triplet, et par conséquent une détermination très précise de la longueur de diffusion de l'état triplet, et du paramètre asymptotique C_6 .

La détermination des paramètres collisionnels reste un enjeu important pour le césium, qui est aujourd'hui l'élément de base en métrologie, et pour lequel la condensation de Bose-Einstein n'a pas encore été réalisée. Les éléments expérimentaux présentés dans ce chapitre doivent à terme mettre fin au débat sur le signe et la valeur des longueurs de diffusion. Ils sont aussi très encourageants, car ils montrent de manière très claire la possibilité de jouer sur la longueur de diffusion de l'état $F=3$, $m_F=+3$ au voisinage de la longueur de diffusion nulle. Ceci devrait être d'une grande aide dans le cadre du refroidissement évaporatif prévu au Laboratoire Aimé Cotton dans la perspective de la réalisation d'un condensat de césium. Notons cependant qu'au voisinage de la résonance de Feshbach que nous avons observée, la fonction d'onde des atomes en collision est toujours très perturbée par le niveau lié. La longueur de diffusion seule ne peut pas alors complètement caractériser les collisions. L'existence d'un tel niveau me semble être un facteur défavorable à l'efficacité du refroidissement évaporatif, et un facteur favorable à l'existence de collisions à trois corps. Dans le cas d'une situation où les voies de collision sont très couplées, symptomatique d'une résonance de Feshbach, la longueur de diffusion échoue à décrire tous les phénomènes de collision. Cette question devra être analysée plus profondément, en vue du refroidissement évaporatif pour l'atome de césium. De même, lorsque la longueur de diffusion est très grande, des phénomènes à N corps devraient se produire.

Dans le chapitre suivant, je vais décrire un autre champ d'application ouvert par les expériences de photoassociation moléculaire. Il s'agit de la formation de molécules froides dimère de césium, dont la démonstration avait été faite avant mon arrivée au Laboratoire. Ces expériences ont ouvert la voie à un nouveau domaine physique, qui concerne la manipulation des degrés de liberté des molécules, ainsi que leur piégeage.

Chapitre 4

Formation et piégeage de molécules froides

Le refroidissement d'atomes dans des pièges magnéto-optiques nécessite une transition électronique fermée, comme je l'ai expliqué au premier chapitre. De ce fait, l'extension des techniques de refroidissement laser à des systèmes complexes comme les molécules apparaît comme compromise. C'est pourquoi, jusqu'à récemment, rien de comparable aux progrès réalisés dans le domaine de la manipulation d'atomes par laser (refroidissement, piégeage, optique atomique, interférométrie atomique) n'avait été obtenu pour des molécules.

En 1997, l'équipe du Laboratoire Aimé Cotton au sein de laquelle ma thèse s'est déroulée a réalisé la première mise en évidence de formation de molécules froides au sein d'un piège magnéto-optique [60]. Celles-ci sont produites en grand nombre (avec des taux allant jusqu'à quelques millions par seconde) par désexcitation radiative de molécules électroniquement excitées, produites par la réaction de photoassociation moléculaire. La température mesurée pour les molécules était comparable à celle des atomes dans le piège magnéto-optique. Ce travail a fait l'objet de deux thèses qui ont précédé la mienne : celle de Daniel Comparat [7] et celle de Cyril Drag [4]. Mon travail se situe dans la lignée de celles-ci.

La production de molécules froides dans un piège magnéto-optique *via* photoassociation contourne le problème du refroidissement des molécules, et permet d'espérer pouvoir réaliser avec des molécules nombre d'expériences réalisées avec des atomes froids. Il s'agit donc d'un résultat important. Deux problèmes subsistaient cependant pour réaliser de nouvelles expériences. D'une part les molécules froides étaient produites dans de nombreux ro-vibrationnel de l'état fondamental singulet ou triplet. Obtenir des molécules qui soient toutes dans le même état était un objectif attrayant, de façon par exemple à pouvoir réaliser des expériences de collisions entre molécules, ou bien d'interférométrie moléculaire. D'autre part, ces molécules n'étaient évidemment pas piégées dans le piège magnéto-optique, ce qui limitait leur étude à une durée d'environ 10 ms (correspondant à leur temps de chute hors du volume de détection). Les résultats expérimentaux présentés dans ce chapitre apportent une réponse à ces deux problèmes.

Dans un premier temps, je commencerai par rappeler comment est mise en évidence la forma-

tion de molécules froides dans nos expériences de photoassociation. Je présente en particulier une mesure de température moléculaire, réalisée après une séquence de mélasse optique, qui permet d'obtenir des molécules à $20 \mu K$ environ. Sont aussi rappelées les différentes situations qui sont favorables à la formation de molécules froides. Un nouveau mécanisme de formation de molécules froides est mis en évidence : les atomes sont excités dans l'état 0_u^+ corrélé à la limite de dissociation $6s+6p_{1/2}$. Du fait d'un couplage résonant en zone interne avec l'état 0_u^+ corrélé à la limite de dissociation $6s+6p_{3/2}$ la probabilité de présence à courte distance interatomique de la molécule excitée est grande, ce qui est très favorable à la formation de molécules froides. Celles-ci sont produites dans l'état singulet, fondamental, à un taux avoisinant le million par seconde.

Puis je retracerai les expériences de photoassociation Raman stimulée que nous avons réalisées. Ces expériences, qui consistent à stimuler la désexcitation radiative d'une molécule excitée (elle-même produite par photoassociation), permettent de produire des molécules froides qui sont toutes dans un seul niveau de rotation-vibration : elles sont froides suivant tous les degrés de liberté. Les molécules sont produites à un taux dépassant 10^5 s^{-1} ; elles sont détectées par photoionisation. Le taux de photoassociation Raman stimulée est bien reproduit par un modèle perturbatif que je présente en détail.

Enfin, dans une dernière partie, je présente une expérience de piégeage de molécules froides dans l'état triplet (métastable). Ces molécules présentent l'avantage d'avoir un moment magnétique. Le piège est un piège quadrupolaire magnétique. La durée de vie du piège obtenu est d'une seconde environ ; elle est essentiellement limitée par les collisions avec le gaz résiduel. Les expériences que je présente ici sont les toutes premières expériences de piégeage que nous ayons réalisées. C'est aussi la première réalisation d'un piège magnétique à molécules ultra-froides.

4.1 Formation de molécules froides.

Dans cette partie, je montre comment est mise en évidence la formation de molécules froides *via* photoassociation. J'explique comment sont réalisées les mesures de température moléculaires. Puis je passe en revue l'ensemble des mécanismes favorables à la formation de molécules froides.

4.1.1 Temps de vie des molécules détectées

A plusieurs reprises nous avons affirmé que la détection ionique utilisée permet la détection de molécules froides dans l'état fondamental. Nous apportons ici la preuve expérimentale de cette affirmation. L'expérience réalisée consiste à mesurer le temps de vie des molécules formées. Pour cela, on applique le laser de photoassociation pendant typiquement 15 ms. On ionise ensuite les molécules par le laser à colorant pulsé décrit paragraphe 1.3.5. Le laser de photoassociation est éteint à $t=0$. Les lasers du piège magnéto-optique restent allumés pendant toute la séquence. Si on retarde l'instant du tir du laser à colorant, on observe une décroissance du nombre de molécules collectées par le détecteur. Le temps de décroissance du signal observé est typiquement 10 ms,

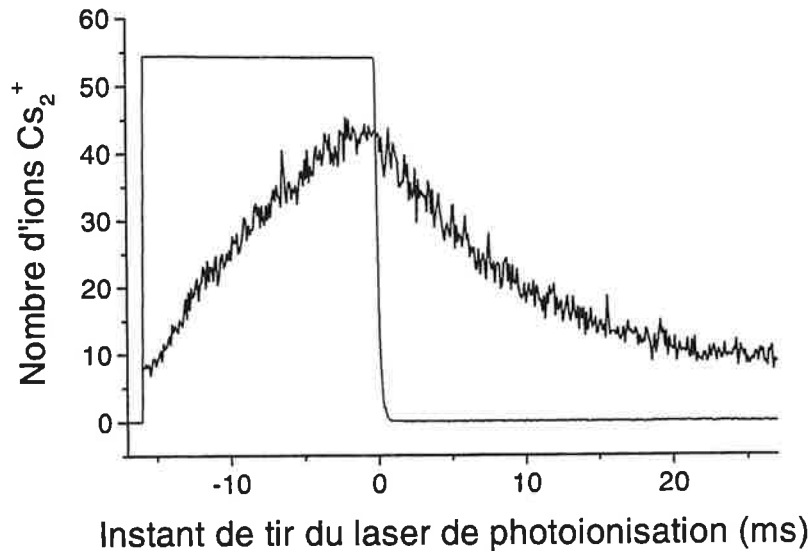


FIG. 4.1: *Décroissance du signal Cs_2^+ après photoassociation. Le laser de photoassociation est ici un pulse lumineux de 15 ms environ représenté par la porte temporelle rectangulaire. On observe des molécules plus de dix millisecondes après qu'elles aient été formées. Ceci démontre leur stabilité. Par ailleurs, pendant la durée de l'impulsion longue de photoassociation, on observe l'accumulation de molécules dans le piège magnéto-optique; on remarque enfin que le signal de molécules est non nul même en l'absence du laser de photoassociation. Ce signal est attribué à un effet des lasers du piège magnéto-optique eux-mêmes : ceux-ci photoassocient des atomes à très grande distance.*

ce qui est plus de cinq ordres de grandeur plus long que le temps de vie de molécules excitées photoassociées (30 ns). Ceci prouve que le laser à colorant n'ionise pas les molécules excitées. Les molécules qu'il ionise sont stables. Le temps de décroissance observé s'explique par la chute des molécules sous l'effet de la gravité, puisque les molécules formées ne sont pas piégées par le piège magnéto-optique.

La figure 4.1 montre le signal moléculaire Cs_2^+ observé en fonction du temps auquel le laser d'ionisation est appliqué. Le temps de décroissance du signal quand le laser de photoassociation est coupé (à $t > 0$) est de 10 ms. En 10 ms, les molécules parcourent du fait de la gravité une distance $\frac{1}{2}gt^2 = 500 \mu m$: le temps de décroissance s'explique bien par la chute des molécules hors du volume de détection. Ces molécules sont soit dans l'état singulet, fondamental, soit dans l'état triplet de plus basse énergie, métastable. On parle, de manière générique, de formation de molécules froides. La détection de molécules froides a été pour la première fois effectuée pour la molécule Cs_2 , avant mon arrivée au laboratoire Aimé Cotton [60].

Notons que le signal ionique obtenu (voir figure 4.1) est non nul même en absence du laser de photoassociation (voir par exemple la valeur non nulle à $t=0$, ou la valeur non nulle vers laquelle le signal tend asymptotiquement quand $t \rightarrow \infty$). Il s'agit de molécules froides, spontanément présentes

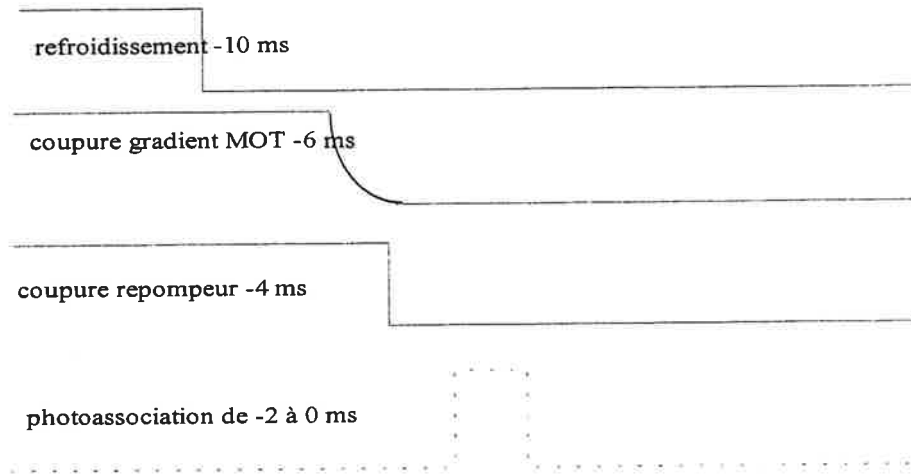


FIG. 4.2: Séquence temporelle utilisée pour le refroidissement et la mesure de température. Durant la phase de refroidissement, l'intensité des lasers pièges est réduite d'un facteur deux, et leur fréquence est décalée à -9Γ de la résonance. Le laser d'ionisation qui sert à la détection des molécules est déclenché après un délai variable, ce qui permet la détermination de la température moléculaire obtenue.

dans le piège, formées par désexcitation radiative de molécules photoassociées par les lasers pièges eux-mêmes.

Enfin, cette figure montre, pendant la durée de photoassociation, une accumulation de molécules dans le piège magnéto-optique. Celle-ci s'explique par une compétition entre le taux de formation de molécules froides Γ et leur disparition hors de la zone de détection, en un temps caractéristique $\tau = 10 \text{ ms}$, sous l'effet de leur chute dans la gravité :

$$\frac{\partial N}{\partial t} = \Gamma - \frac{1}{\tau} N$$

Le temps caractéristique d'accumulation des molécules est donc $\tau = 10 \text{ ms}$ et le nombre de molécules détectées tend asymptotiquement vers $\tau\Gamma$.

Les expériences décrites ci-dessus apportent donc la preuve expérimentale que les molécules détectées sont des molécules stables, dans l'état fondamental singulet ou dans l'état triplet de plus basse énergie. Nous avons d'autre part mesuré leur température, comme il est décrit ci-dessous.

4.1.2 Mesure de la température des molécules

Nous avons effectué des mesures précises de la température des molécules obtenues. Ces mesures sont réalisées en deux temps par analyse de l'expansion balistique des molécules après leur formation. Le laser d'ionisation est spatialement décalé sous le piège. Dans un premier temps, une mesure de temps de vol permet de déterminer la cote du laser¹. Dans un second temps, la posi-

¹Notons que cette première étape dans la détermination de la température des molécules est cruciale pour nous parce que la zone dans laquelle on peut détecter les molécules sous le piège est limitée à quelques millimètres, du

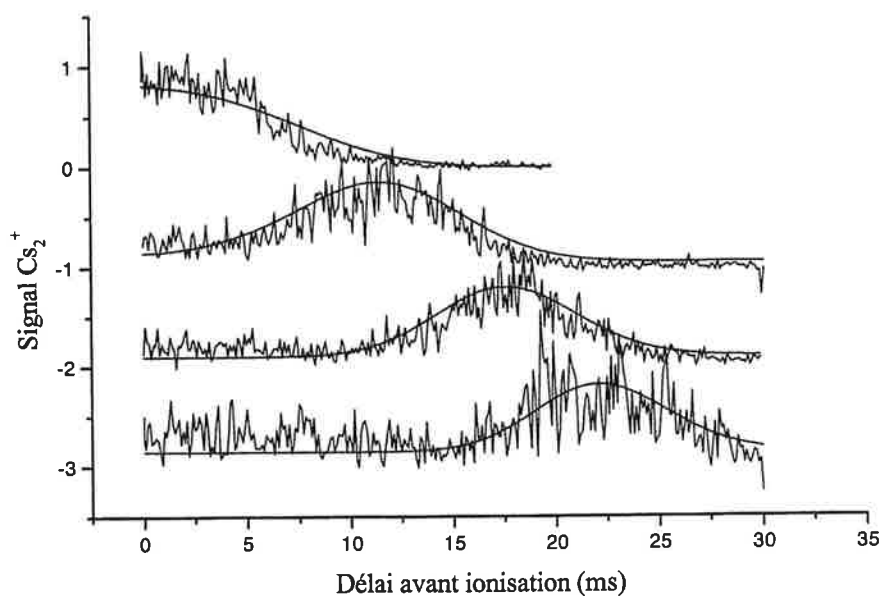


FIG. 4.3: *Expériences de temps de vol à différentes hauteurs; de haut en bas : dans le piège magnéto-optique, 0,95 mm en dessous, 1,9 mm en dessous, 2,85 mm en dessous. Ces hauteurs sont déduites de l'ajustement en trait plein, d'après l'équation 4.1 : ceci permet une estimation précise de la position du laser d'ionisation par rapport au piège magnéto-optique.*

tion latérale du laser de photoionisation est balayée à cote fixe, de manière à observer l'expansion balistique du nuage de molécules pour en déduire sa température.

La démarche suivie est donc la suivante. Le laser de photoionisation est spatialement décalé de quelques millimètres sous le piège magnéto-optique. Le laser de photoassociation est appliqué pendant deux millisecondes. L'instant auquel on ionise les molécules est progressivement retardé. On effectue ainsi une mesure de temps de vol des molécules formées. Celle-ci est représentée figure 4.3. Le temps de vol donne une estimation précise de la distance entre la région de formation des molécules et la région de leur ionisation. Il offre aussi une première estimation, assez grossière, de la température moléculaire ; en effet, le signal temporel sera d'autant plus étalé que la température est élevée.

Dans un deuxième temps, en conservant la même altitude pour le laser d'ionisation, on balaye latéralement celui-ci. L'instant auquel on ionise correspond au maximum du temps de vol précédemment effectué. La largeur du signal observé est la largeur du nuage moléculaire, qui dépend de la vitesse moyenne des molécules et de la taille du nuage initialement formé. Cette dernière est évaluée en ionisant les molécules à $t=0$ et en balayant latéralement la position du laser d'ionisation

fait de la taille des grilles utilisées pour accélérer les ions vers le détecteur. De ce fait, la connaissance de la position du laser de photoionisation doit être connue à une fraction de millimètre près pour que la mesure de la température soit précise.

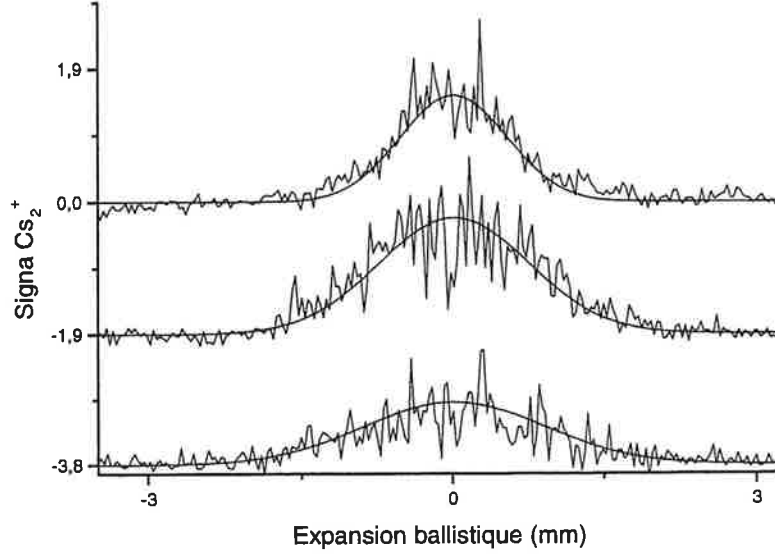


FIG. 4.4: *Expansion balistique des molécules sous le piège magnéto-optique. On balaye le laser d'ionisation : a) dans le piège ; b) 1,9 mm sous le piège ; c) 3,8 mm sous le piège. Les hauteurs sont déduites de temps de vol analogues à ceux de la figure 4.3. De la largeur du signal observé, on peut déduire la température des molécules : ici 20_{-5}^{+15} μK .*

à la cote du piège magnéto-optique. Par une procédure d'ajustement, on peut alors déterminer très précisément la température des molécules. La procédure est répétée pour différentes altitudes, pour confirmer la valeur trouvée. L'expansion balistique est représentée figure 4.4.

La procédure d'ajustement est effectuée en utilisant le logiciel Mathematica. Le calcul dépend de la taille du piège, convoluée aux tailles des faisceaux de photoassociation et d'ionisation. Ces trois profils sont supposés gaussiens, en accord avec nos observations. De ce fait, la convolution est analytique. Il faut aussi tenir compte de la distribution thermique, supposée Boltzmannienne. On intègre enfin sur la durée de photoassociation T .

La probabilité de détecter une molécule donnée à l'endroit $\vec{x}(t)$ est la probabilité que cette molécule ait à $t=0$ la vitesse \vec{v}_1 et soit en \vec{x}_1 , tels que $\vec{x} = \vec{x}_1 + \vec{v}_1 t - \frac{1}{2} g t^2 \vec{e}_z$. On a par conséquent, en utilisant le changement de variables $(\vec{x}_1, \vec{v}_1) \rightarrow (\vec{x}_1, \vec{x})$:

$$P(\vec{x}(t)) d^3 \vec{x} = P(\vec{v}_1, \vec{x}_1, t = 0) d^3 \vec{x}_1 d^3 \vec{v}_1 = n(\vec{x}_1) d^3 \vec{x}_1 \frac{d^3 \vec{x}}{t^3} \exp \left(-\frac{m}{2k_B T} \left| \frac{\vec{x} - \vec{x}_1 + \frac{1}{2} g t^2 \vec{e}_z}{t} \right|^2 \right)$$

m est ici la masse de la molécule. $n(\vec{x}_1)$ est la densité du gaz de molécules à l'instant initial $\exp(-\frac{x^2+y^2+z^2}{2\sigma^2})$. σ_r est la convolution de la taille du piège et du profil du faisceau de photoassociation. C'est à peu près la taille du nuage moléculaire à $t=0$, dans l'approximation où la durée de

photoassociation est faible devant le temps caractéristique de chute des molécules hors du piège magnéto-optique (10 ms). On en donne une première évaluation en balayant le laser d'ionisation horizontalement dans le piège. On ajuste le paramètre σ_r pour que la formule $A \exp(-\frac{y^2}{2\sigma_r^2})$ reproduise le signal observé, ce qui donne une première évaluation de ce paramètre. On suppose que l'extension du nuage selon z et x est identique. Si on suppose le laser d'ionisation, propageant le long de l'axe x , focalisé aux cotes (y_0, z_0) dans le piège, le nombre de molécules ionisées sera proportionnel à :

$$N_{ions}(y_0, z_0, t) \propto \int \frac{dx dy dz}{t^3} I(y - y_0, z - z_0) \int dx_1 dy_1 dz_1 n(x_1, y_1, z_1) \exp\left(-\frac{m}{2k_B T} \left| \frac{\vec{x} - \vec{x}_1 + \frac{1}{2}gt^2 \vec{e}_z}{t} \right|^2\right)$$

L'intensité du laser d'ionisation s'écrit $I(y, z) = I \exp(-2\frac{y^2 + z^2}{\omega^2})$, où ω est le waist du laser. L'intégrale est analytique (convolution de gaussiennes). On a, en intégrant sur la durée d de photoassociation :

$$N_{ions}(y_0, z_0, t) \propto \int_{-d}^0 d\tau \frac{\omega^2 \sigma_r^2 \left(\frac{k_B T}{m}\right)^{3/2}}{\omega^2 + 4\sigma_r^2 + 4\frac{k_B T}{m}(t - \tau)^2} \exp\left(-\frac{2(y_0^2 + (z_0 + \frac{1}{2}g(t - \tau))^2)^2}{\omega^2 + 4\sigma_r^2 + 4\frac{k_B T}{m}(t - \tau)^2}\right) \quad (4.1)$$

L'intégrale sur les temps s'effectue numériquement. On ajuste les paramètres T, σ_r pour que la formule 4.1 $N_{ions}(y_0, z_0, t)$ reproduise le signal observé à la cote z_0 , au temps t , obtenu en balayant le laser d'ionisation suivant y_0 : on ajuste principalement la valeur de la température T , (ainsi que, légèrement autour de la valeur initialement évaluée, σ_r). Ceci est réalisé pour plusieurs cotes, ce qui permet de déterminer précisément la température.

La méthode présentée ici a été appliquée dans deux situations. Dans une première situation, nous avons photoassocié l'état $1_u v=1$ avec une diode DBR (décrite paragraphe 1.3.3). Nous avons appliqué la séquence temporelle de refroidissement atomique présentée paragraphe 1.1.4 et représentée sur la figure 4.2. Nous appliquons le laser de photoassociation pendant 2 ms juste après cette phase. Nous avons alors mesuré une température comprise entre 15 et 35 μK [64]. Cette température est à ma connaissance la plus froide qui ait été observée pour des molécules.

Dans une deuxième situation, nous avons mesuré la température moléculaire dans un piège magnéto-optique, sans phase de refroidissement. Le niveau moléculaire excité était alors $v=6, J=2$ de l'état 0_g^- corrélé à la limite $6s+6p_{3/2}$, le laser de photoassociation était un Sa :Ti appliqué pendant 2,5 ms grâce à une cellule de Pockels. Lasers piège et gradient de champ magnétique sont coupés à la fin du pulse de photoassociation pour 35 ms. Nous avons alors mesuré une température de 130 μK , avec une précision de 10 μK . L'état excité étant de symétrie gerade, les molécules détectées sont de symétrie ungerade ; il s'agit par conséquent de molécules de l'état triplet.

Notons par ailleurs que la température moléculaire est identique à la température atomique qu'on peut déduire de la formule 1.6 : les mesures que nous avons réalisées sont effectuées dans un

piège magnéto-optique pour lequel l'intensité totale des lasers piège était assez faible ($\Omega_{tot}^2/\Gamma^2 \sim 2,4$). Pour un tel piège le nombre d'atome est de 5 millions environ. On s'attend alors à ce que la température du piège soit de l'ordre de $125 \mu K$, et que la température atomique en appliquant la séquence temporelle décrite figure 4.2 (qui consiste principalement à décaler la fréquence les faisceaux piège à -9Γ de la résonance) soit de l'ordre de $35 \mu K$.

4.1.3 Les différents mécanismes conduisant à la formation de molécules froides.

La mise en évidence de la production de molécules froides par émission spontanée après photoassociation moléculaire est récente puisqu'elle a été observée pour la première fois en 1997. Comme nous l'avons expliqué dans notre introduction théorique de la photoassociation, on peut considérer que la réaction de photoassociation se produit au point tournant externe de la molécule excitée. Comme la densité de paire d'atomes à une distance donnée se comporte en $4\pi R^2$, la réaction de photoassociation est a priori assez efficace à grandes distances. Les molécules excitées sont donc généralement des molécules de grande élongation. Il s'agit de niveaux ro-vibrationnels liés dans des puits de potentiel qui se comportent à longues distances en $\frac{C_3}{R^3}$, et qui sont généralement fortement répulsifs à courtes distances. Pour de telles molécules la probabilité pour les deux atomes d'être proches l'un de l'autre est très faible, comme le montre la partie supérieure de la figure 4.5. Les potentiels du fondamental sont, eux, en $\frac{C_6}{R^6}$, et donc à plus courte portée. L'extension spatiale des molécules de l'état fondamental est donc plus faible. La probabilité de désexcitation radiative de la molécule excitée $|1\rangle$ vers les niveaux ro-vibrationnels des potentiels moléculaires fondamental et métastable $|v(^1\Sigma_g, ^3\Sigma_u^+)\rangle$ est donc généralement très faible par rapport à la probabilité de désexcitation radiative accompagnée de la dissociation de la molécule. On définit le rapport de branchement (ou facteur de branchement) pour les transitions lié-lié par :

$$\sum_v |\langle 1 | v(^1\Sigma_g, ^3\Sigma_u^+) \rangle|^2 \quad (4.2)$$

Le facteur de branchement est la probabilité de désexcitation d'une molécule excitée notée $|1\rangle$ vers un niveau moléculaire lié du fondamental. Dans cette expression, on a négligé la dépendance de dipôle en fonction de la distance interatomique. Dans cette approximation le calcul du rapport de branchement se limite à des calculs d'intégrales de recouvrement. Le rapport de branchement est très faible si le recouvrement entre la fonction d'onde excitée et les fonctions d'onde liées du fondamental est faible, et donc si la fonction d'onde excitée est d'amplitude faible à courte distance.

Dans la pratique, les facteurs de branchement lié-lié sont généralement trop faibles pour permettre l'observation de molécules froides. Plusieurs exceptions ont cependant été mises en évidence, qui correspondent à différentes situations particulières des potentiels excités, qui toutes tendent à augmenter la partie courte distance de la fonction d'onde excitée. Ces situations sont

donc favorables à la désexcitation des molécules vers le fondamental, c'est-à-dire, à la production de molécules froides.

Dans ce paragraphe, nous passons en revue toutes les situations qui à notre connaissance ont permis la production de molécules froides par photoassociation.

a) Structure en double puits

La première observation de production de molécules froides dans une expérience de photoassociation a été réalisée au Laboratoire Aimé Cotton, dans le cas de la photoassociation des états 0_g^- et 1_u sous la limite de dissociation $6s+6p_{3/2}$ du césium [60]. Ces expériences ont eu un fort retentissement et font en particulier l'objet de la thèse de Daniel Comparat. Je ne rentrerai donc pas dans les détails du mécanisme qui favorise dans ce cas la formation de molécules froides. Il s'agit cependant à ce jour du mécanisme qui permet le meilleur taux de production de molécules froides, et il reste emblématique du mécanisme général favorisant un fort rapport de branchement vers les états liés lors de la désexcitation. Il est donc important d'en présenter les traits principaux.

Les états 1_u et 0_g^- liés à l'asymptote $6s+6p_{3/2}$ sont caractérisés par une structure en double puits. Cette structure s'explique par un croisement évité avec des états de même symétrie, reliés à l'asymptote de dissociation $6s+6p_{1/2}$ [30]. Cette structure en double-puits implique une barrière de potentiel répulsive douce - c'est-à-dire de pente faible - aux distances intermédiaires. La fonction d'onde d'un niveau moléculaire lié dans la partie externe du double-puits a une amplitude non négligeable au voisinage du point tournant interne, qui est situé à moyenne distance² (typiquement 17 à 23 a_0) ; la probabilité de désexcitation radiative vers des niveaux liés des états fondamentaux est alors non négligeable. Ce mécanisme est illustré par la partie b) de la figure 4.5.

La structure particulière en double-puits implique que le mouvement des atomes de telles molécules est donc toujours confiné dans les distances interatomiques grandes ou moyennes (entre 17 et 200 a_0). Ces molécules sont décrites par le concept de "molécules purement longue distance" [65]. De tels puits de potentiel sont présents pour tous les dimères alcalins. Ils sont situés à des distances de plus en plus grandes pour des alcalins de plus en plus légers. On s'attend donc à ce que la formation de molécules froides par désexcitation de molécules photoassociées dans les puits 1_u et 0_g^- soit plus probable pour les alcalins lourds que pour les alcalins légers. Et, en effet, jusqu'à présent la formation de molécules froides *via* photoassociation dans les états 1_u et 0_g^- n'a été observée que pour le césium [60], et plus récemment (pour l'état 0_g^- uniquement), pour le rubidium [63]. Comme on le voit, un tel mécanisme est très spécifique et n'est pas facilement généralisable à d'autres systèmes. Il permet cependant, dans le cas du césium, un taux de formation de molécules froides très important, jusqu'à plusieurs millions par seconde dans un piège magnéto-optique de 50 millions d'atomes. Ceci correspond à un taux de formation de l'ordre de la molécule par atome

²Pour se convaincre de ce point, il suffit de se reporter à l'expression de la fonction d'onde WKB (voir équation A.10) : $\Psi(R) = \sqrt{\frac{2\omega\mu}{\pi p(R)}} \cos(\frac{1}{\hbar} \int_{R_{int}}^R p(R') dR' - \frac{\pi}{4})$. Si la barrière répulsive est "douce", il existe au voisinage du point tournant interne de la molécule excitée, une région où $p(R)$ est faible. L'amplitude de la fonction d'onde dans cette région est alors grande.

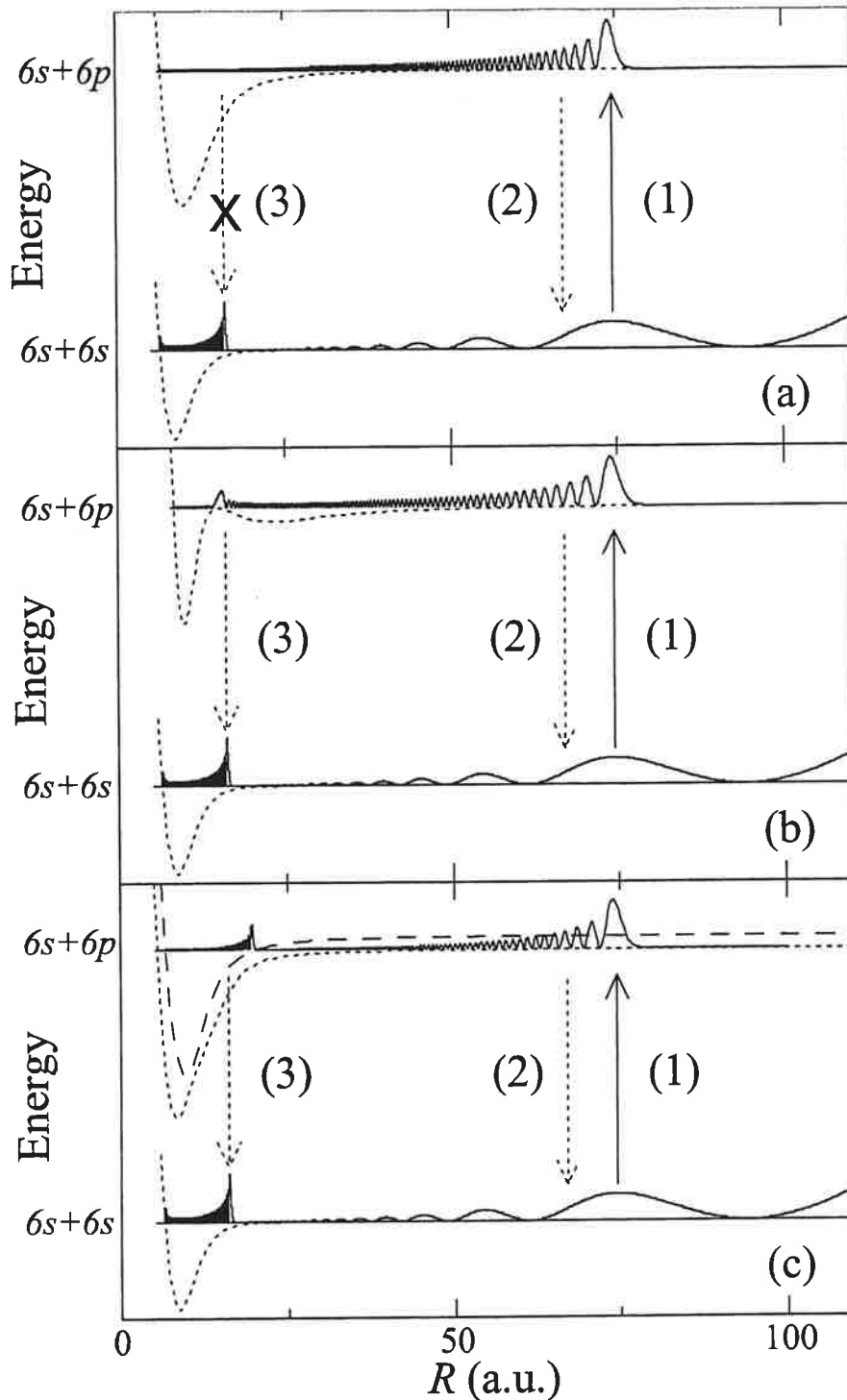


FIG. 4.5: Courbes de potentiel typiques d'une molécule diatomique homonucléaire. Trois cas sont représentés : en a), qui correspond à la situation la plus fréquente, la probabilité de présence à courte distance internucléaire de la molécule excitée est faible, ce qui n'est pas favorable à la production de molécules froides ; en b), du fait de la structure en double-puits, la désexcitation des molécules excitées vers des niveaux liés est favorisée (cas 1_u et 0_g^- sous $p_{3/2}$) ; en c), est représenté l'effet d'un couplage en zone interne sur la fonction d'onde excitée : ceci est favorable à la production de molécules froides (cas 0_u^+ sous $p_{1/2}$).

et par seconde, ce qui est à ce jour le plus fort taux de production de molécules froides observé.

Schématiquement, le raisonnement précédent revient à considérer que la désexcitation des molécules excitées vers des niveaux liés du fondamental se produit lorsque la molécule est au voisinage du point tournant classique interne. Pour l'état 0_g^- le point tournant interne est situé entre 22,75 a_0 (pour $v = 0$), et 16,5 a_0 (pour les niveaux vibrationnels $v > 130$) [32]. Pour l'état 1_u l'extension moléculaire est de l'ordre de 32 a_0 . Les points tournants internes des niveaux vibrationnels (de $v = 0$ à 14) s'échelonnent entre 32 et 27 a_0 environ.

Les molécules produites par désexcitation des molécules excitées dépendent de l'état moléculaire. Dans le cas de la photoassociation de l'état 0_g^- , la désexcitation se produit dans une région où la symétrie u/g est conservée, si bien que les molécules froides produites sont des molécules de symétrie ungerade. Les molécules sont par conséquent dans l'état triplet. Le point tournant externe des molécules froides produites doit être approximativement égal au point tournant interne des molécules excitées.

La figure 4.6 synthétise les résultats des calculs de Claude Dion au laboratoire Aimé Cotton. Il s'agit du calcul du taux de molécules froides pour chaque niveau de l'état 0_g^- dans lequel on photoassocie, et pour chaque niveau vibrationnel de l'état métastable triplet. Le calcul consiste à évaluer le taux de photoassociation (par les formules données au chapitre 1), puis à multiplier ce taux par le recouvrement entre le niveau vibrationnel 0_g^- et le niveau vibrationnel de l'état triplet. On estime ainsi, pour une intensité laser de 55 W/cm² et une densité atomique de 10¹¹ cm⁻³, le taux de formation de molécules froides dans chaque niveau de l'état triplet, en fonction du niveau vibrationnel de l'état 0_g^- dans lequel les atomes sont photoassociés.

Il est à noter qu'il existe trois cas singuliers : pour trois raies de photoassociation, un effet tunnel a été mis en évidence entre le niveau moléculaire photoassocié et un niveau lié dans le puits de potentiel interne [51]. Ces molécules présentent une grande probabilité de présence à courte distance (grâce à la structure rotationnelle du spectre, il est possible de montrer que la rayon internucléaire moyen de ces molécules est de l'ordre de 12 à 14 a_0). De ce fait, les niveaux moléculaires du fondamental peuplé sont très profonds (au voisinage de $v = 0$, puisque le minimum du puits de potentiel triplet est atteint pour une distance internucléaire de l'ordre de 12 a_0). L'effet tunnel n'a pas été pris en compte dans la figure 4.6.

Lorsque l'état photoassocié est l'état 1_u , la désexcitation radiative des molécules excitées se produit à 30 a_0 environ. Comme le montre la figure 1.16, la symétrie u/g est alors brisée par l'interaction hyperfine. De ce fait, les molécules sont produites dans des états de symétrie u/g mélangée [43]. Les niveaux moléculaires produits correspondent aux derniers niveaux sous la limite de dissociation.

b) Un nouveau schéma de formation de molécules froides : couplage radial

Nous avons récemment mis en évidence un autre mécanisme favorable à la formation de molécules froides, dans une situation qui semble moins spécifique. Il s'agit de la formation de molécules froides après photoassociation dans l'état 0_u^+ sous la limite de dissociation 6s+6p_{1/2} du césium,

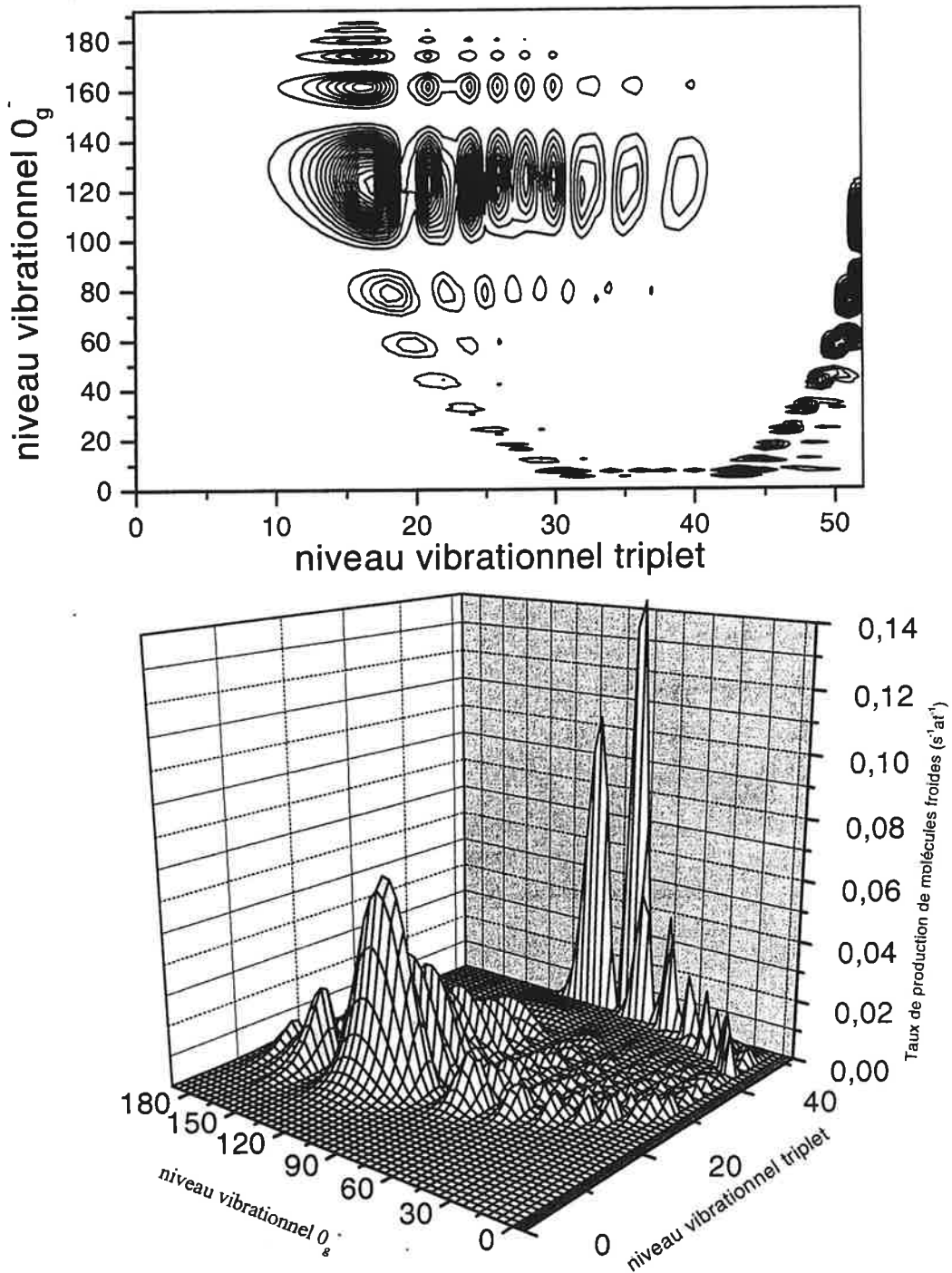


FIG. 4.6: Taux de formation de molécules froides pour chacun des niveaux de l'état triplet fondamental, en fonction du niveau vibrationnel de l'état 0_g^- dans lequel les atomes sont photoassociés. Le taux est donné en nombre de molécules par seconde et par atome, pour une intensité laser de 55 W/cm^2 et une densité atomique de 10^{11} cm^{-3} .

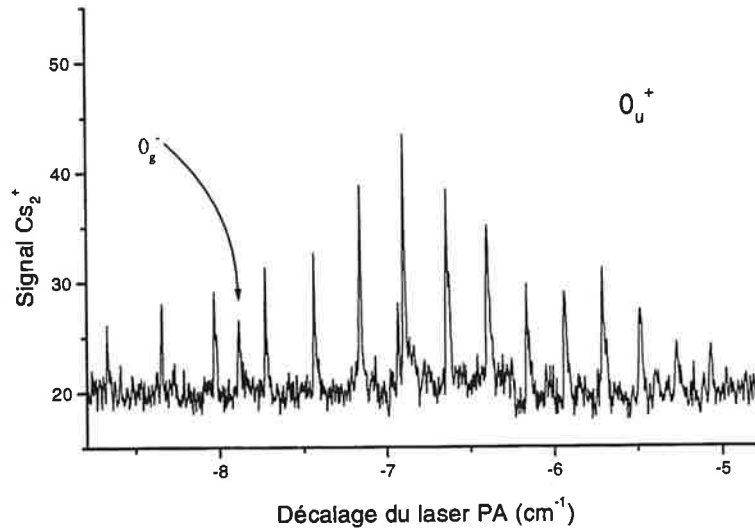


FIG. 4.7: Spectre ionique de photoassociation entre -5 et $-8,5 \text{ cm}^{-1}$ sous la limite de dissociation $6s+6p_{1/2}$. On observe une raie 0_g^- et 15 raies ioniques attribuées à l'état 0_u^+ . L'existence de ces dernières s'explique par un couplage radial pour cet état en zone interne, qui favorise la désexcitation vers des niveaux moléculaires du fondamental assez profondément liés. Le fond continu est dû à la photoassociation par les lasers piège, suivie de formation de molécules froides.

qui a fait l'objet de la publication [59].

i) Spectre 0_u^+ et formation de molécules froides Comme le montre la figure 3.2, on peut observer le spectre 0_u^+ en pertes de piège sur une plage de 13 cm^{-1} environ, mais sur la plus grande partie du spectre, on ne peut observer de formation de molécules froides. Par contre, entre -5 et -9 cm^{-1} environ, on peut détecter des molécules froides sous chaque raie 0_u^+ (voir figure 4.7). 15 raies ioniques sont observées.

Pour ce spectre, obtenu en balayant le laser de photoassociation sous la limite de dissociation $6p_{1/2}$, on a utilisé un laser Sa :Ti dont l'intensité au centre du piège vaut 200 W/cm^2 . Le piège magnéto-optique contient environ 50 millions d'atomes. La longueur d'onde du laser pulsé utilisé pour ioniser et détecter les molécules est de $14\,060 \text{ cm}^{-1}$. L'intensité du laser d'ionisation est de 1 mJ/pulse . Dans ces conditions, on observe environ 20 ions Cs_2^+ , sur un fond continu de 20 ions (voir figure 4.7), ce qui, compte tenu de l'efficacité de la détection, correspond à environ 1000 molécules présentes dans le piège. Ces molécules ne demeurant dans le volume de détection qu'au plus 10 ms, on en déduit un taux de formation de molécules froides de l'ordre de 10^5 s^{-1} .

Comme C. Drag l'a montré dans sa thèse [4], la série vibrationnelle du spectre en pertes de piège de l'état 0_u^+ sous $6p_{1/2}$ est fortement perturbée : dans une certaine plage en énergie, la série vibrationnelle observée ne correspond pas à une progression du type de celle prédite par LeRoy-Bernstein (voir paragraphe A.4.3). Par ailleurs, la plage de fréquence où le spectre ionique est

non nul, correspondant à la formation de molécules froides, coïncide avec la plage en énergie où la série vibrationnelle est la plus perturbée. Ces deux observations s'expliquent par l'existence d'un couplage résonant de niveaux de l'état 0_u^+ corrélé à la limite de dissociation $6s+6p_{1/2}$ avec un niveau vibrationnel de l'état de même symétrie 0_u^+ corrélé à la limite $6s+6p_{3/2}$.

Pour comprendre comment le couplage mis en évidence est favorable à un taux important de formation de molécules froides, des calculs ont été réalisés au Laboratoire Aimé Cotton par Claude Dion. On pourra trouver dans les références [59] et [4] une analyse complète de ces études. Cette analyse repose sur la méthode de calcul numérique développée dans sa thèse [90] par Viatcheslav Kokoouline, consistant à décrire la fonction d'onde des molécules en utilisant une grille à pas variable. En particulier, les perturbations du spectre de photoassociation 0_u^+ du fait du couplage sont décrites en détail dans la référence [89].

L'étude théorique menée pour expliquer les molécules froides produites *via* photoassociation d'atomes dans l'état 0_u^+ consiste à évaluer le taux de photoassociation, puis, en calculant le recouvrement entre la fonction d'onde excitée et les fonctions d'onde de l'état fondamental, à en déduire quels niveaux de l'état fondamental sont peuplés et avec quel taux. Les résultats de ce travail sont synthétisés sur la figure 4.8.

ii) Production de molécules dans les derniers niveaux liés du fondamental Le premier point intéressant, apparent sur la partie (a) de la figure 4.8 est le suivant. Les calculs prédisent un taux assez important de formation de molécules froides par désexcitation radiative des niveaux de l'état 0_u^+ situés dans les deux derniers cm^{-1} sous la limite de dissociation $6s+6p_{1/2}$. Or, aucune molécule n'est détectée dans cette partie du spectre : on n'observe pas de raies ioniques dans le spectre de photoassociation.

Des calculs montrent que dans le cas de la photoassociation d'atomes dans des niveaux vibrationnels élevés de l'état 0_u^+ , la désexcitation radiative des molécules conduit à la production de molécules froides dans les tous derniers niveaux liés de l'état fondamental. Notons qu'il n'est d'ailleurs probablement pas rare que des états moléculaires excités atteints par photoassociation se désexcitent en peuplant les tous derniers niveaux moléculaires liés du fondamental ; cependant, comme nous allons le montrer, notre schéma de détection ne permet pas de détecter ce type de molécules.

Lorsque l'extension spatiale des molécules excitées est trop grande, celles des molécules qui se désexcitent en produisant une molécule stable du fondamental, le font en peuplant les tous derniers niveaux rovibrationnels excités sous la limite de dissociation. Comme le montre la figure 4.21, la probabilité d'ionisation des molécules du fondamental tend vers 0 pour les derniers niveaux liés. Pour les derniers niveaux, en effet, la probabilité de présence à courte distance est très faible. La transition électronique du premier étage du processus REMPI de détection (voir paragraphe 1.3.5) est alors presque interdite (car proche de la transition électronique dipolaire interdite $6s \rightarrow 5d$). La transition est alors quadrupolaire.

Par exemple, pour le dernier niveau lié de l'état fondamental, la fonction d'onde radiale est

pratiquement entièrement située à plus de $50 a_0$. Cela signifie que les atomes ne s'approchent pratiquement jamais plus près de $50 a_0$. Les molécules des tous derniers niveaux de vibration de l'état fondamental sont très étranges, qui peuvent à peine être appelées molécules ; leurs propriétés collisionnelles sont probablement très différentes de celles des molécules "traditionnelles". Il serait probablement intéressant de détecter ces molécules particulières. Cependant, dans la suite de ce manuscrit, quand je parlerai de formation de molécules froides, il s'agira de molécules plus profondément liées, que l'on peut détecter par le schéma REMPI décrit paragraphe 1.3.5.

iii) Couplage et formation de molécules froides Nous allons maintenant montrer pourquoi le couplage des deux états de même symétrie 0_u^+ conduit à un taux important de formation de molécules froides ; l'idée de ce mécanisme est assez simple : du fait d'un couplage en zone interne, la molécule excitée oscille dans deux puits de potentiel à la fois (ce qui signifie que l'approximation de Born Oppenheimer cesse d'être valable) ; dans le cas présent, ceci augmente la probabilité de présence à courte distance de la molécule excitée. Ce mécanisme est symbolisé sur la partie c) de la figure 4.5

Des calculs montrent qu'il existe un niveau lié dans le potentiel 0_u^+ sous $6p_{3/2}$, situé environ 7 cm^{-1} sous la limite de dissociation $6p_{1/2}$; ce niveau vibrationnel est situé à courte distance interatomique. La proximité en énergie de ce niveau et des niveaux de l'état 0_u^+ sous $6p_{1/2}$ entraîne un couplage résonant, qui est formellement équivalent au couplage mis en évidence dans notre étude d'une résonance de Feshbach (voir paragraphe 3.2.3). Le formalisme des équations couplées (rappelé au paragraphe A.7) peut à nouveau être utilisé pour comprendre la situation dans le cas présent. Les fonctions d'ondes excitées peuvent alors être calculées en fonction des fonctions d'ondes liées à 0_u^+ sous $6p_{1/2}$ et à 0_u^+ sous $6p_{3/2}$. Plus précisément, l'équation A.21 nous donne :

$$\Phi(R) = \Phi_0(R) - \int_{R_{int}}^{R_{ext}} dR' \frac{\exp(ik(R - R'))}{4\pi(R - R')} V_{21}(R') \Phi_1(R') \quad (4.3)$$

où $\Phi_0(R)$ et $\Phi_1(R)$ sont les fonctions d'onde moléculaires vibrationnelles respectivement associées aux potentiels 0_u^+ sous $6p_{1/2}$ et 0_u^+ sous $6p_{3/2}$ sans couplage. V_{21} est le couplage. L'équation 4.3 montre que, du fait du couplage radial, la fonction d'onde couplée a une amplitude importante au voisinage du point tournant externe du niveau moléculaire de l'état 0_u^+ asymptotiquement relié à la limite de dissociation $6s+6p_{3/2}$. Celui-ci est situé approximativement à $20 a_0$. Nous avons expliqué plus haut, en analysant le mécanisme du "double-puits" pourquoi une probabilité de présence importante à courte distance internucléaire conduit à un taux de formation de molécules froides important.

Les calculs de Claude Dion montrent, plus précisément, que l'augmentation de la partie à courte distance de la fonction d'onde (voir figure 4.5), due au couplage radial, favorise le rapport de branchement des transitions vers les états liés du fondamental. Les niveaux liés du fondamental peuplés par émission spontanée sont alors assez profondément liés (de 1 à 50 cm^{-1}). Nous avons ainsi montré que la présence du couplage radial résonant avec un niveau moléculaire relié à 0_u^+

multiplie par deux environ le taux de molécules froides (voir la figure 4.8), si on tient compte de tous les niveaux liés du fondamental. Notons que si on ne tient pas compte des tous derniers niveaux du fondamental (dont nous avons dit qu'il s'agit de molécules assez spéciales qu'on ne peut détecter) l'augmentation du taux de formation de molécules froides est en réalité bien plus forte que ça : les molécules produites grâce au couplage sont des molécules assez profondément liées, tandis que les molécules produites en l'absence de couplage sont formées dans les derniers niveaux vibrationnels.

La raie pour laquelle le signal ionique est maximal est située à environ 7 cm^{-1} sous la limite $6s+6p_{1/2}$. Le point tournant externe de la molécule excitée est alors de $75 a_0^3$. Il est intéressant de noter, en se reportant par exemple à la figure 3.10 a), que cette distance correspond à un ventre de la fonction d'onde des atomes en collision dans l'état $F=4$, et que c'est donc ici la coïncidence d'un taux de photoassociation maximal, et d'un taux de désexcitation vers les états moléculaires liés maximal, qui est à l'origine de la possibilité d'obtenir une importante production de molécules froides (voir figure 4.8).

Le couplage résonant en zone interne dans le cas de 0_u^+ permet donc ici, dans la plage de fréquence de photoassociation -9 à -5 cm^{-1} , d'une part d'augmenter le facteur de branchement des molécules excitées vers des états liés du fondamental, et d'autre part de peupler des niveaux plus profonds, que l'on sait détecter. Il est par ailleurs intéressant de noter que la désexcitation des molécules se fait à relativement courte distance internucléaire ($20 a_0$), si bien que la symétrie u/g est une bonne symétrie pour le système (voir figure 1.16) ; de ce fait, les molécules produites sont des molécules produites dans l'état singulet, fondamental.

iv) Conclusion L'intérêt de ces études est donc double : d'une part elles permettent de montrer que dans de nombreux cas, la photoassociation est suivie de production de molécules froides dans les tous derniers niveaux du fondamental. Ces molécules sont des molécules de très grande élongation ; en particulier pour le dernier niveau, les atomes ne s'approchent pratiquement pas à moins de $50 a_0$. Ces molécules, que notre schéma de détection ne permet pas d'observer, ont probablement des propriétés de collision très différentes des molécules "habituelles". Il serait très intéressant de pouvoir les observer, notamment pour déterminer leur temps de vie. Le second résultat qui ressort de notre étude est que l'existence d'un couplage en zone interne pour l'état 0_u^+ , augmente fortement la probabilité de désexcitation des molécules excitées vers des niveaux assez profondément liés du fondamental. Ce nouveau schéma de formation de molécules froides, qui permet d'atteindre dans notre cas un taux de 10^5 molécules par seconde, est probablement généralisable à de nombreux autres systèmes. En effet, les couplages résonants sont phénomène courant en physique moléculaire. Le mécanisme mis en évidence pour 0_u^+ dans ce paragraphe dans le cas du césium est donc particulièrement intéressant car on s'attend à ce qu'il soit généralisable à de nombreux autres systèmes. Le travail théorique consiste alors à prédire comment trouver de

³Cette valeur est estimée en utilisant la valeur $C_3^{eff} = \frac{4}{3}C_3$ prévue pour l'état 0_u^+ relié à $6p_{3/2}$ en l'absence de couplage radial. On a pris ici $C_3=10,1$ u.a., déduite de la durée de vie de l'état excité [91].

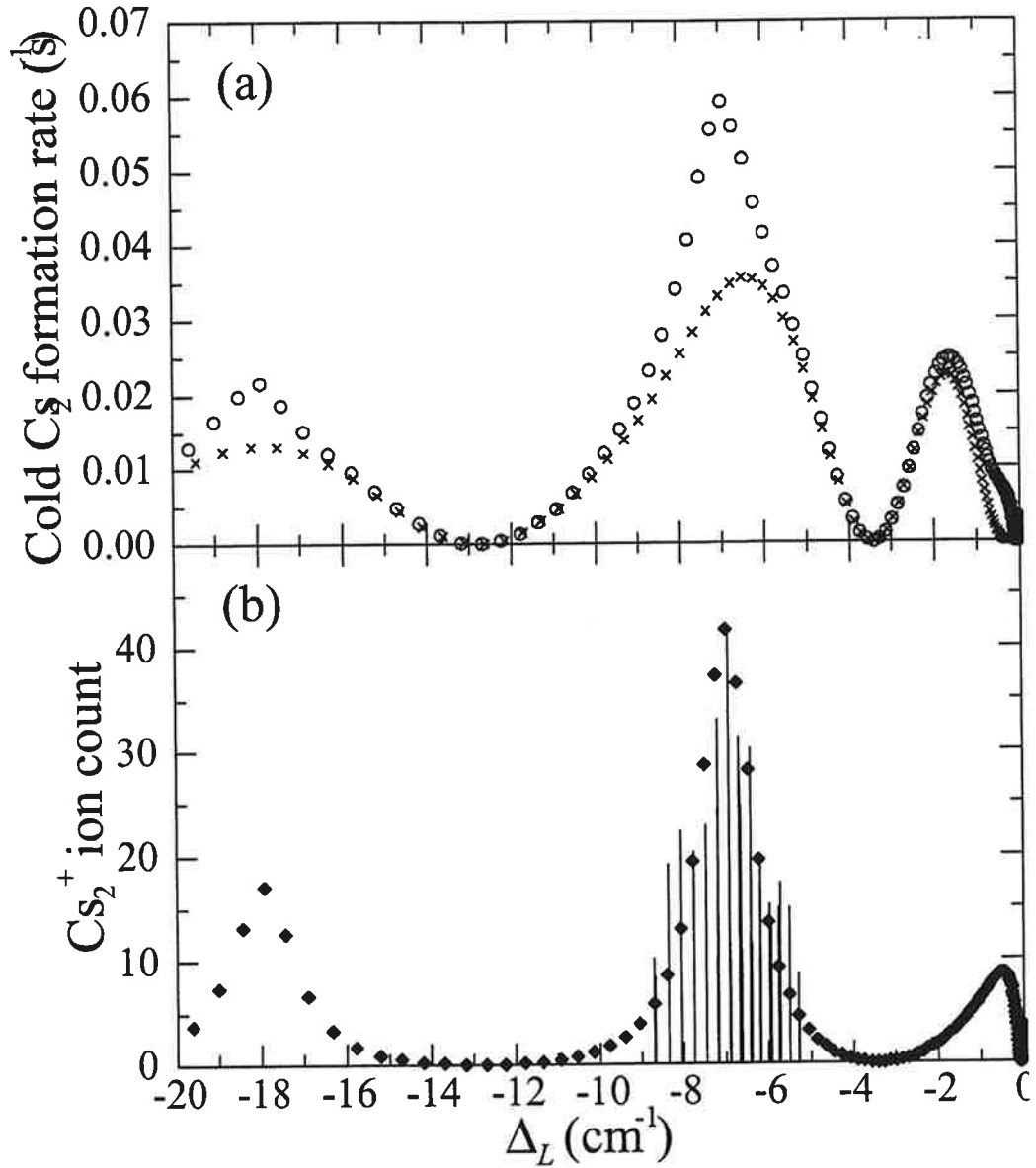


FIG. 4.8: Comparasion entre théorie et expérience pour le taux de formation et de détection de molécules froides via photoassociation de l'état 0_v^+ corrélé à $6s+6p_{1/2}$. Les croix représentent le taux de formation de molécules froides prédit par un calcul en l'absence de couplage résonant. Les cercles vides représentent le résultat du même calcul, mais cette fois en tenant compte du couplage radial en zone interne entre les deux états 0_v^+ . L'effet du couplage en zone interne explique bien l'observation de molécules froides pour des décalages laser entre -9 et -5 cm^{-1} . Par ailleurs, pour des décalages laser inférieurs à -2 cm^{-1} , la théorie prédit un taux important de formation de molécules froides. Ces molécules ne sont cependant pas détectées, car elles sont formées dans les tous derniers niveaux liés du fondamental.

tels couplages. De nombreuses voies pour la formation de molécules froides pourront ainsi être ouvertes.

c) Etats doublement excités

Un autre mécanisme de formation de molécule a été observé dans le cas de K_2 [61] à Storrs (Connecticut). L'équipe ayant réalisé cette expérience n'est pas celle dans laquelle je travaille. Je cite cependant leur travail, car il peut-être vu comme formellement analogue au mécanisme précédemment analysé dans le cas de 0_u^+ sous $6p_{1/2}$. L'expérience citée ici consiste, dans un piège magnéto-optique de potassium, à réaliser une expérience de photoassociation vers un niveau vibrationnel très excité de l'état $1^1\Pi_g$ corrélé à $4S+4P$. Un second laser continu induit des transitions entre l'état photoassocié et des niveaux des états $5^1\Pi_u$ et $6^1\Pi_u$; la seconde transition étant liée, elle peut être induite par un laser relativement peu intense (100mW), même si les facteurs de Franck-Condon sont faibles. Les états doublement excités se dés excitent par émission spontanée, en produisant des molécules du fondamental de K_2 . Le taux de formation de molécules est alors de l'ordre de 10^5 mol/s par niveau vibrationnel final dans l'état fondamental.

Comme on le voit, il s'agit ici d'un couplage résonant induit par laser, qui est donc formellement équivalent à celui mis en évidence pour 0_u^+ dans le cas de Cs_2 . Il s'agit cependant d'un processus probablement plus général, puisqu'on peut maintenant choisir le couplage, en fonction des niveaux vibrationnels visés dans le fondamental⁴.

d) Deux autres mécanismes

Les trois mécanismes de formation de molécules froides décrits plus haut sont clairement apparentés. Il s'agit d'un couplage augmentant l'amplitude à courte distance de la fonction d'onde. Il n'est cependant pas complètement exclu d'observer de la formation de molécules froides, en l'absence de tels mécanismes favorables, comme nous allons le voir dans les deux exemples qui suivent.

i) Potentiel excité en C_6/R^6 La formation de molécules froides a été observée *via* photoassociation de l'état 0_g^- sous la limite de dissociation $6s+6p_{1/2}$ du césium. Cet état a une structure particulière, différente de celle des autres états excités : le potentiel se comporte asymptotiquement en $\frac{C_6}{R^6}$. Ceci n'est pas favorable à la réaction de photoassociation elle-même, puisqu'il s'agit de photoassociation à plus courte portée que dans le cas d'un potentiel en $\frac{C_3}{R^3}$. Ainsi, dans le spectre présenté figure 3.2, on n'observe que 11 niveaux attribués à l'état 0_g^- dans la plage de fréquence $[-8; 0]$ cm^{-1} . L'extension spatiale de ces niveaux varie entre 38 et 53 a_0 : il s'agit donc de molécules

⁴Notons cependant que, dans la perspective (qui fait l'objet de la deuxième partie de ce chapitre) de la photoassociation Raman stimulée, qui consiste à stimuler la dés excitation des molécules produites par photoassociation, de façon à ne produire qu'un seul niveau ro-vibrationnel du fondamental, utiliser des états doublement excités constitue un désavantage : stimuler la dés excitation nécessiterait en effet l'utilisation d'un laser ultra-violet continu.

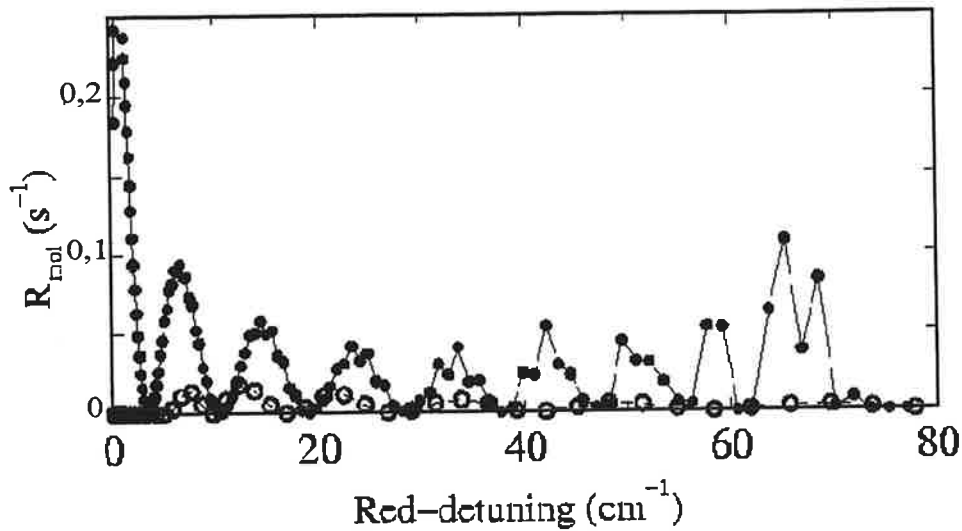


FIG. 4.9: *Calculs numériques du taux de production de molécules froides (R_{mol} en s^{-1}) via photoassociation dans les états 0_g^- corrélés aux limites de dissociation $6s+6p_{1/2,3/2}$.*

de relativement faible extension spatiale⁵. Pour les deux niveaux observés les plus profondément liés, le point tournant externe est de 37,4 et 38,2 a_0 . Ceci rend probable la désexcitation de ces molécules vers l'état moléculaire fondamental, et explique pourquoi on peut détecter des molécules froides après photoassociation d'atomes dans ces niveaux. On pourra se reporter à la figure 4.9 (extraite de la référence [10]), où sont donnés les résultats de calculs numériques réalisés au Laboratoire Aimé Cotton, évaluant le taux de formation de molécules froides, via photoassociation dans les états 0_g^- corrélés aux limites $6s+6p_{1/2,3/2}$. Bien que le taux de production de molécules froides soit très inférieur pour 0_g^- corrélé à $6s+6p_{1/2}$ par rapport à 0_g^- corrélé à $6s+6p_{3/2}$, on voit dans cette figure qu'il est cependant assez important.

Notons que l'intérêt d'un tel mécanisme n'est pas anecdotique. En effet, plusieurs expériences visent à réaliser la photoassociation de molécules hétéronucléaires. De telles molécules diffèrent des molécules homonucléaires en ce que les potentiels excités se comportent asymptotiquement en $\frac{C_6}{R^6}$. Ceci résulte du fait que les écarts en énergie $ns \rightarrow np$ des différents alcalins sont différents : l'interaction dipôle-dipôle induit n'est pas résonante. La possibilité de former des molécules froides en photoassociant des atomes dans l'état 0_g^- corrélé à la limite de dissociation $6s+6p_{1/2}$, dont le potentiel varie asymptotiquement en $\frac{C_6}{R^6}$ dans le cas du césium est donc un résultat encourageant. Notons cependant que le taux de formation de molécules froides est renforcé dans ce cas par le fait que le coefficient C_6 est ici très grand, ce qui permet une réaction de photoassociation à relativement plus grande distance, et donc augmente le taux de photoassociation. D'autre part, le fait que les longueurs de diffusion de l'atome de césium soient très grandes, comme démontré ci-dessus (paragraphe 3.2.2), augmente la probabilité de présence des atomes à courtes distances,

⁵A titre de comparaison pour une molécule excitée en C_3/R^3 avec $C_3 = 10$ u. a l'extension spatiale d'une molécule 20 cm^{-1} sous la limite de dissociation est de $50 a_0$.

ce qui est aussi favorable à la photoassociation à courte distance caractéristique des états en C_6 . Enfin, signalons que malgré ces facteurs favorables dans le cas du césium, le nombre de molécules détectées reste très faible (quelques ions Cs_2^+), bien que le nombre de molécules attendues soit assez important (voir figure 4.9). A nouveau, la production de molécules froides se fait vers les derniers états liés du fondamental, qui sont, comme nous l'avons déjà montré, difficile à ioniser par notre schéma de détection.

ii) **Un autre cas de production de molécules froides** Un autre cas de production de molécules froides a été observée avec K_2 [62]. Les molécules froides sont observées après photoassociation d'un niveau vibrationnel particulier. Le facteur de branchement vers les niveaux liés du fondamental est alors très faible ; la détection explicite des molécules formées est cependant réalisée. Le taux de production de molécules froides est très faible : environ 1000 par seconde.

4.1.4 Taux de formation.

Le taux de formation de molécules froides s'exprime en multipliant le taux de photoassociation par le facteur de branchement donné par l'équation 4.2. Par exemple, dans le cas de la photoassociation dans l'état 0_g^- , nous avons montré au paragraphe 1.3.4 que le taux de photoassociation est de l'ordre de 0,1 à 5 molécules par atome et par seconde. En multipliant ce taux par la probabilité de désexcitation vers les états liés du fondamental, on calcule que les taux de formation de molécules froides varient entre 0,05 et 0,2 molécules froides par atome et par seconde. Ramené au nombre d'atomes dans un piège magnéto-optique, le taux de production de molécules froides peut aller jusqu'à 10^7 molécules par seconde.

Il n'est pas immédiat de comparer les taux de formation obtenus aux résultats expérimentaux. En effet, l'efficacité de la détection est un paramètre mal contrôlé de notre expérience. Il faut prendre en compte l'efficacité de l'ionisation par le laser à colorant (mal connue), puis l'efficacité de collection des ions dans le détecteur (90%) et l'efficacité des galettes microcanaux (30%). L'efficacité de l'ionisation s'estime en calculant les facteurs de Franck-Condon pour les transitions entre le niveau fondamental et les niveaux relais. Elle est probablement inférieure à 10%. Le nombre d'ions collectés par le détecteur est estimé à environ 2,5 % du nombre de molécules effectivement présentes dans le piège magnéto-optique.

Nous donnons dans le tableau suivant un récapitulatif des différents processus conduisant à la formation de molécules froides et l'ordre de grandeur de l'efficacité de chaque mécanisme. Le mécanisme du "double-puits" reste à ce jour le moyen le plus aisé d'obtenir un grand nombre de molécules ultra-froides. Nous avons cependant mis en évidence que d'autres mécanismes, peut-être plus généralisables à d'autres systèmes que Cs_2 , pouvaient conduire à des taux de formation de molécules froides importants. Le schéma de couplage radial résonant mis en évidence ici devrait apparaître dans de nombreux autres systèmes, en particulier pour d'autres alcalins.

Mécanisme	Molécule	Taux estimé (s^{-1})	Référence
Double puits	Cs ₂	$\approx 10^7$	[60]
	Rb ₂	400	[63]
Couplage résonant	Cs ₂	$\sim 10^6$	[59]
Double excitation	K ₂	$\sim 10^6$	[61]
Etats en C_6/R^6	Cs ₂	$> 10^5$	
Facteur de recouvrement	K ₂	10^3	[62]

Le problème de la recherche des voies de production de molécules froides peut être résumé dans la recherche d'une solution au paradoxe apparent suivant : produire des molécules froides nécessite un taux de photoassociation important (ce qui implique la photoassociation dans des états moléculaires de grande élongation), *et* un facteur de branchement vers les états liés du fondamental important (ce qui nécessite la photoassociation dans des états moléculaires qui présentent une forte probabilité de présence à courte distance). La solution à ce paradoxe, offerte par les mécanismes du double puits, du couplage résonant, et des états doublement excités, est d'utiliser des niveaux moléculaires excités particuliers qui ont une fonction d'onde d'amplitude importante à la fois à longue distance et à courte distance. Notons ici qu'une autre solution à ce paradoxe peut être apportée par le schéma de la résonance de Feshbach. Comme le montre de façon claire la figure 3.14, une résonance de Feshbach, parce qu'elle augmente la probabilité de présence des atomes à courte distance ($R < 40a_0$), augmente le taux de photoassociation dans des niveaux moléculaires à relativement faible extension spatiale (ici $0_g^-, v < 30$). Ces niveaux étant ceux pour lesquels la probabilité de désexcitation dans des niveaux moléculaires liés est la plus grande, ce schéma augmente de façon sensible le taux de formation de molécules froides. L'utilisation d'une résonance de Feshbach est donc un outil adapté au contrôle du taux de formation de molécules froides.

4.2 Formation de molécules froides par photoassociation Raman stimulée

Dans les expériences que j'ai décrites jusqu'à présent, la désexcitation des molécules se produit par émission spontanée. Ceci conduit à un mélange statistique de niveaux ro-vibrationnels, le peuplement de ces différents niveaux dépendant des facteurs de Franck-Condon. On peut donc dire que, si les molécules obtenues sont translationnellement froides, elles ne sont pas froides en ce qui concerne les degrés de liberté de vibration et de rotation.

Pour contourner ce problème, nous montrons dans ce chapitre qu'on peut stimuler la désexcitation des molécules excitées produites par photoassociation : on parlera de photoassociation Raman stimulée (voir le schéma de principe 4.10). Dans un tel schéma, une paire d'atomes en collision subit une transition à deux photons et peuplent de façon résonante un niveau lié du fondamental. Ceci permet la production de molécules froides dans un niveau ro-vibrationnel unique. Une expérience de photoassociation Raman stimulée a déjà été réalisée par ailleurs, mais dans des

conditions très différentes que celles que nous décrivons dans ce chapitre : il s'agit de photoassociation Raman stimulée dans un condensat de rubidium [57]. Cependant, dans ces expériences, les molécules ne sont pas détectées. Si on peut bien affirmer que des molécules sont bien produites dans cette expérience, on ne peut affirmer qu'elles sont dans une phase condensée, ni même qu'elles restent dans le piège après leur formation. Elles peuvent en particulier être ré-excitées par les faisceaux lasers présents, ce qui peut conduire, après émission spontanée, à leur dissociation. Il est donc très intéressant de pouvoir détecter directement les molécules. Dans notre cas, produire des molécules froides dans un seul niveau et être capable de les détecter ouvrira la voie à de nombreuses expériences, concernant par exemple l'étude des collisions entre molécules, l'optique ou l'interférométrie moléculaire.

Je décris ici les expériences que nous avons réalisées, qui consistent en la production et la détection de molécules froides dans un seul niveau ro-vibrationnel, grâce au schéma de photoassociation Raman stimulée [58]. Les expériences sont réalisées dans un dispositif qui est de trois ordres de grandeur moins dense que celle précédemment citée [57] ; elles montrent donc la possibilité de produire un gaz de molécules froides dans un seul niveau ro-vibrationnel, à partir d'un dispositif expérimental relativement routinier, ce que n'est pas un condensat. Ces molécules sont ensuite ionisées et détectées. Le taux de formation de molécules froides obtenues dans notre expérience par photoassociation Raman stimulée est de l'ordre de 10^5 molécules par seconde, ce qui est comparable en ordre de grandeur au taux de formation de molécules froides dans les expériences de photoassociation "simples".

Dans un premier temps, je présenterai en détail un modèle perturbatif de la photoassociation Raman stimulée, qui utilise le formalisme de la matrice densité. Je présenterai ensuite les résultats expérimentaux obtenus. Ceux-ci permettent la production d'un gaz de molécules qui sont froides suivant tous les degrés de liberté (translationnel, vibrationnel, rotationnel). Des expériences de type Autler-Townes permettent une détermination expérimentale des fréquences de Rabi moléculaires entre le niveau excité et le niveau moléculaire fondamental. On peut alors comparer le nombre de molécules produites à la théorie que nous avons proposée. Théorie et expérience sont en bon accord.

4.2.1 Modèle perturbatif

Le modèle perturbatif de la photoassociation (voir annexe B ou la référence [8]) est en très bon accord avec les observations expérimentales. Le modèle pour la photoassociation Raman stimulée que je propose ici est une généralisation de ce modèle. Il en reprend le formalisme. Il s'agit d'un modèle perturbatif à l'ordre 2. Nous sommes en présence de deux lasers L_1 et L_2 de pulsation ω_S et ω_D . L'énergie du niveau $|1\rangle$ est repérée par rapport à la limite de dissociation $6s+6s$, par la pulsation ω_1 ; de même on repère le niveau $|2\rangle$ par la pulsation ω_2 , et les niveaux de continuum initial $|\alpha\rangle$ par la pulsation ω_α . On peut se référer pour les notations à la figure 4.10.

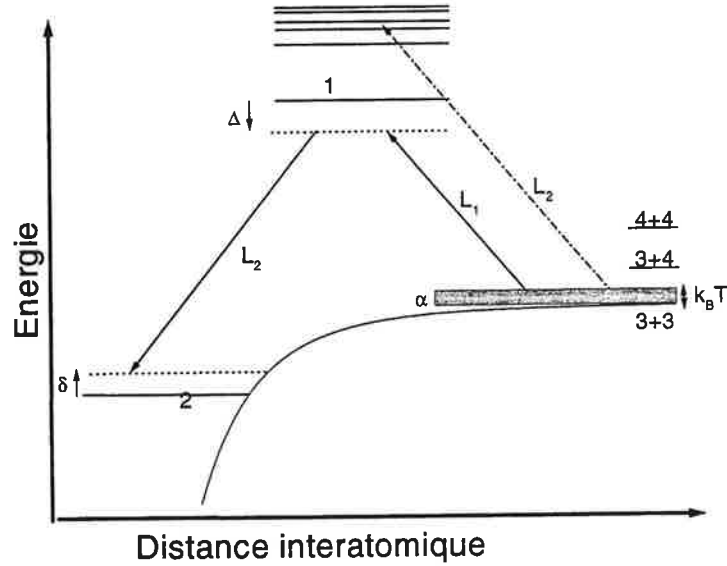


FIG. 4.10: Schéma de principe de la photoassociation Raman stimulée. Les notations employées dans le texte sont reprises sur ce schéma.

a) Evolution de la matrice densité

Si on note les opérateurs d'interaction dipolaire respectivement associés aux laser L_1 et L_2 , $W_1 = \vec{E}_1 \cdot \vec{d} \cos(\omega_{ST}t)$ et $W_2 = \vec{E}_2 \cdot \vec{d} \cos(\omega_{DT}t)$, l'équation d'évolution de la matrice densité s'écrit, en représentation interaction

$$i\hbar \frac{d}{dt} \sigma(t) = [\widetilde{W}_1(t) + \widetilde{W}_2(t), \sigma(t)] \quad (4.4)$$

où $\widetilde{W}_1 = \exp(iH_0t)W_1 \exp(-iH_0t)$. On notera : $\widetilde{W} = \widetilde{W}_1 + \widetilde{W}_2$.

Le calcul consiste à développer l'équation 4.4 à l'ordre 4. On a :

$$\begin{aligned} \sigma(t_f) = & \sigma(0) + \frac{1}{i\hbar} \int_0^{t_f} dt \left[\widetilde{W}(t), \sigma(0) + \frac{1}{i\hbar} \int_0^t d\tau \left[\widetilde{W}(\tau), \sigma(0) + \right. \right. \\ & \left. \left. \frac{1}{i\hbar} \int_0^\tau dT \left[\widetilde{W}(T), \sigma(0) + \frac{1}{i\hbar} \int_0^T dt' \left[\widetilde{W}(t'), \sigma(t') \right] \right] \right] \right] \end{aligned} \quad (4.5)$$

Le calcul perturbatif consiste à remplacer $\sigma(t')$ par $\sigma(0)$ dans le dernier commutateur. Nous cherchons à calculer $\langle 2 | \sigma(t_f) | 2 \rangle$. Pour ce faire, il convient d'introduire la relation de fermeture entre chaque paire d'opérateurs dans l'équation 4.5 :

$$\int |\alpha\rangle \langle \alpha| d\alpha + |1\rangle \langle 1| + |2\rangle \langle 2| = 1$$

En introduisant quatre fois la relation de fermeture, il apparaît que les seuls termes qui donnent des contributions non nulles sont les termes à 5 opérateurs (y compris la matrice densité $\sigma(0)$), dans lesquels $\sigma(0)$ est en position centrale. Il reste donc six termes, que nous écrivons sous la forme $(t, \tau, 0, T, t')$:

$$(t, \tau, 0, t', T) = \int_0^{t'} \int_0^t \int_0^\tau \int_0^T \int dtd\tau dT dt' d\alpha \\ \langle 2 | \widetilde{W}(t) | 1 \rangle \langle 1 | \widetilde{W}(\tau) | \alpha \rangle \langle \alpha | \sigma(0) | \alpha \rangle \langle \alpha | \widetilde{W}(t') | 1 \rangle \langle 1 | \widetilde{W}(T) | 2 \rangle$$

L'ordre d'intégration est fixé : t', T, τ , puis t . Seuls restent les termes :

$$(t, \tau, 0, t', T) \\ (T, t', 0, \tau, t) \\ (\tau, t', 0, T, t) \\ (t, T, 0, t', \tau) \\ (t, t', 0, T, \tau) \\ (\tau, T, 0, t', t)$$

Par ailleurs, par changement de variable ($t \leftrightarrow t'$) et ($\tau \leftrightarrow T$), et parce que $\langle 2 | \widetilde{W}(-t) | 1 \rangle = \langle 1 | \widetilde{W}(t) | 2 \rangle$ et $\langle 1 | \widetilde{W}(-t) | \alpha \rangle = \langle \alpha | \widetilde{W}(t) | 1 \rangle$, on a :

$$(t, \tau, 0, t', T) = (T, t', 0, \tau, t)^* \quad (4.6) \\ (t, T, 0, t', \tau) = (\tau, t', 0, T, t)^* \\ (t, t', 0, T, \tau) = (\tau, T, 0, t', t)^*$$

où le symbole * signifie complexe conjugué. Il suffit donc de calculer la somme de trois termes. Ce calcul est fait par intégration progressive depuis t' jusqu'à t . Il ne s'agit pas d'un calcul difficile ou astucieux. Il consiste essentiellement à écrire les termes en $\cos(\omega t)$ sous la forme $\frac{1}{2}(\exp(i\omega t) + \exp(-i\omega t))$. Les formules sont cependant lourdes. Deux approximations sont réalisées au cours de ce calcul. La première est l'approximation du champ tournant. C'est-à-dire qu'on se place dans des conditions proches de la résonance et qu'on néglige les termes anti-résonants. Cela revient par exemple à négliger le processus qui consisterait pour la paire d'atomes à émettre d'abord un photon à la fréquence ω_D avant d'absorber un photon à ω_S . La deuxième approximation consiste à négliger les termes en t et t^2 qui apparaissent hors des exponentielles, c'est-à-dire que ce calcul n'est valable qu'aux temps courts.

Le principe du calcul est synthétisé figure 4.11. Un tel diagramme permet le calcul exact, et tient compte systématiquement de l'approximation du champ tournant. Il simplifie grandement les calculs. Il est de plus généralisable de proche en proche à des phénomènes perturbatifs d'ordre

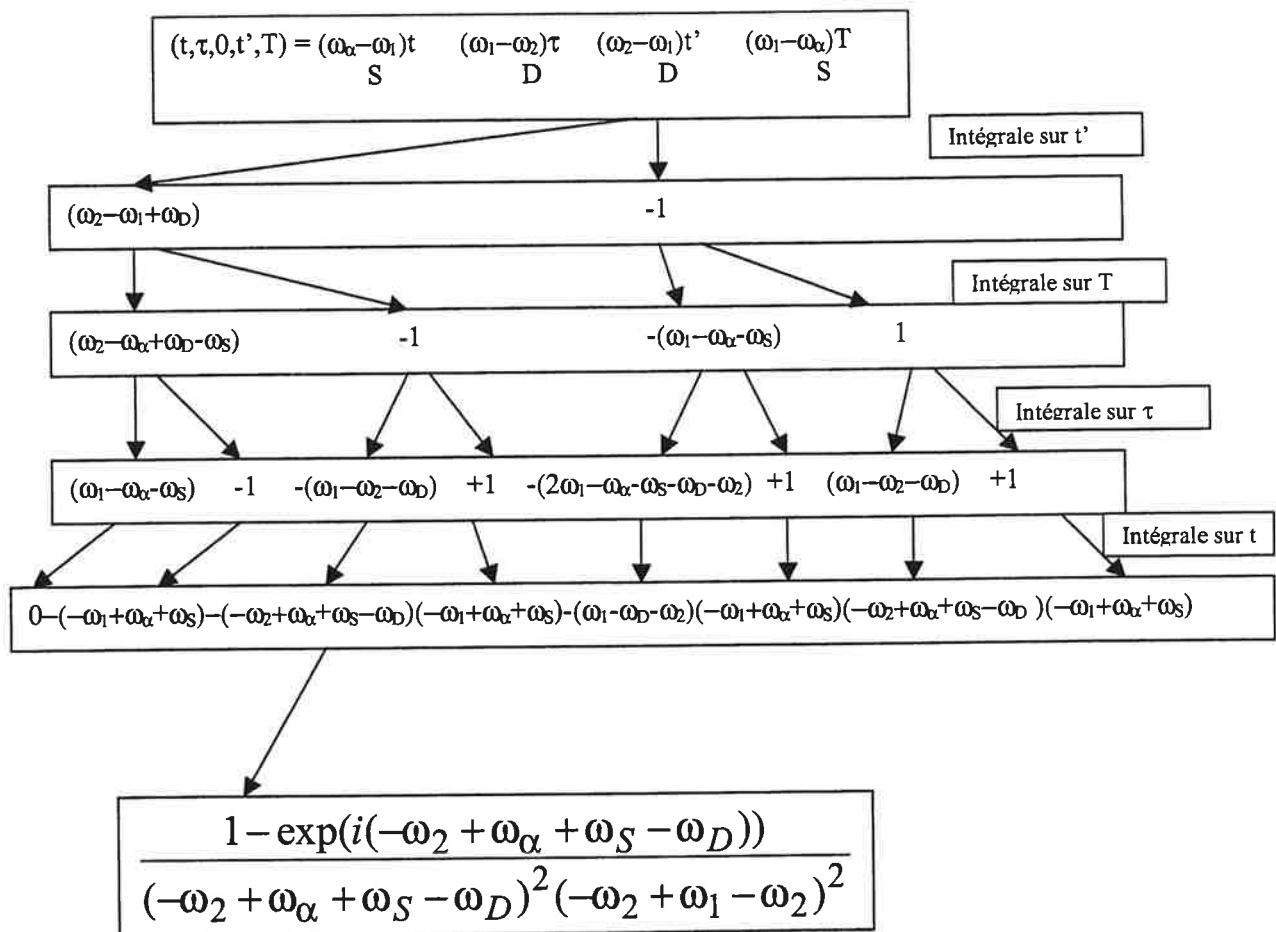


FIG. 4.11: Calcul à l'ordre 4 du développement de la matrice densité. Les intégrations se font dans le sens t' , T , τ , t . S symbolise l'interaction avec le laser $L_1 : \frac{1}{2} \exp(i\omega_S t) + \exp(-i\omega_S t)$, D avec le laser L_2 . On commence à intégrer le terme en t' jusqu'à T . Ici on a $\int_0^T \exp(i(\omega_2 - \omega_1)t') \exp(i\omega_D t') + \exp(-i\omega_D t') dt' = \frac{\exp(i(\omega_2 - \omega_1 + \omega_D)T) - 1}{2(\omega_2 - \omega_1 + \omega_D)}$; on note ce terme $(\omega_2 - \omega_1 + \omega_D)$ et -1 sur le diagramme. Puis on multiplie par le terme en T et on intègre jusqu'à τ (et ainsi de suite). Chaque flèche représente une intégration. On prendra garde à conserver le signe \mp devant la fréquence intégrée à chaque étape. On obtient (avant dernière ligne) 8 termes. Chaque terme correspond à $\exp(i\theta) - 1$. Il faut diviser cette valeur par le produit des fréquences θ qui sont intervenues dans la branche de l'arbre dont il est l'extrémité. En dernière ligne on explicite un des termes qui interviennent dans l'expression finale. On intègre ensuite suivant les états du continuum initial α .

supérieur. Par exemple, on peut calculer la succession de deux transitions Raman stimulées en partant du continuum.

Les termes calculés suite aux intégrations successives sont de trois sortes. Nous donnons ici le résultat pour la somme des trois termes de gauche dans les formules 4.6.

On note Δ et δ les décalages respectifs de ω_S et de $\omega_S - \omega_D$ par rapport aux résonances ω_1 et ω_2 . On peut se reporter à la figure 4.10 pour l'ensemble des notations. Le premier terme est :

$$\begin{aligned} & (\exp(i(-\Delta - \omega_\alpha)t) - 1) \left(\frac{-1}{(-\Delta - \omega_\alpha)^3(-2\Delta + \delta - \omega_\alpha)} \right. \\ & \left. + \frac{1}{(-\Delta - \omega_\alpha)^2(\delta + \omega_\alpha)(-2\Delta + \delta - \omega_\alpha)} \right) \\ & - (\exp(-i(-\Delta - \omega_\alpha)t) - 1) \frac{1}{(-\Delta - \omega_\alpha)^3(\delta + \omega_\alpha)} \end{aligned}$$

Ce premier terme est un terme résonant pour le premier laser : il s'agit du cas où le laser L_1 est en résonance avec le niveau moléculaire excité $|1\rangle$. Nous ne nous intéressons pas à ce terme : en effet, dans une telle situation, nous sortons du cadre perturbatif que nous nous sommes fixés. Le terme dominant est en effet donné par l'ordre 1 du calcul perturbatif, c'est-à-dire par la théorie de la photoassociation "simple" déjà décrite. Nous ne considérons donc que des cas où $\Delta \gg \omega_\alpha$.

Le deuxième terme est :

$$\begin{aligned} & (\exp(-i(-\Delta + \delta)t) - 1) \left(\frac{1}{(-\Delta - \omega_\alpha)^2(-2\Delta + \delta - \omega_\alpha)(-\Delta + \delta)} - \frac{1}{(-\Delta - \omega_\alpha)^2(-\Delta + \delta)^2} \right. \\ & \left. + \frac{2}{(\delta + \omega_\alpha)(-\Delta - \omega_\alpha)^2(-\Delta + \delta)} - \frac{2}{(-\Delta - \omega_\alpha)^2(-\Delta + \delta)^2} \right. \\ & \left. + \frac{1}{(\delta + \omega_\alpha)(\omega_\alpha + \Delta)(-\Delta + \delta)^2} - \frac{1}{(-2\Delta + \delta - \omega_\alpha)(\omega_\alpha + \Delta)(-\Delta + \delta)^2} \right) \end{aligned}$$

Ce terme est un terme non résonant ; il s'agit d'une oscillation très rapide et de faible amplitude. Dans le cas où $\Delta \gg (\delta, \omega_\alpha)$ il vaut :

$$(\exp(i\Delta t) - 1) \left(\frac{-1}{(\delta + \omega_\alpha)\Delta^3} \right)$$

Le troisième terme vaut :

$$(\exp(i(\delta + \omega_\alpha)t) - 1) \left(\frac{1}{(\delta + \omega_\alpha)^2(\omega_\alpha + \Delta)(-\Delta + \delta)} \right)$$

Le deuxième terme est donc très inférieur au troisième (d'un facteur δ/Δ , qui tend vers 0 à résonance). Nous le négligerons dans la suite.

Seul reste donc le troisième terme. La somme de celui-ci et de son complexe conjugué s'écrit :

$$\frac{2 - 2 \cos((\delta + \omega_\alpha)t)}{(\delta + \omega_\alpha)^2(-\Delta - \omega_\alpha)(-\Delta + \delta)} = \frac{4 \sin^2\left(\frac{(\delta + \omega_\alpha)t}{2}\right)}{(\delta + \omega_\alpha)^2(-\Delta - \omega_\alpha)(-\Delta + \delta)}$$

C'est ce terme qui correspond à la photoassociation Raman stimulée.

b) Taux de photoassociation Raman stimulée

On a, d'après les considérations précédentes :

$$\langle 2 | \sigma(t) | 2 \rangle = \int d\alpha \frac{\exp(-\hbar\omega_\alpha/k_B T)}{4 \text{tr}(Z)} |\Omega_{1,2}|^2 |\Omega_{1,\alpha}|^2 \frac{\sin^2\left(\frac{(\delta + \omega_\alpha)t}{2}\right)}{(\delta + \omega_\alpha)^2} \frac{1}{(\Delta + \omega_\alpha)(\Delta - \delta)}$$

$\Omega_{1,2}$ est la fréquence de Rabi associée à la transition moléculaire $|1\rangle \rightarrow |2\rangle$: $\Omega_{1,2} = \langle 1 | \vec{E}_2 \cdot \vec{d} | 2 \rangle$; $\Omega_{1,\alpha}$ est la fréquence de Rabi associée à la transition de photoassociation moléculaire $|\alpha\rangle \rightarrow |1\rangle$. $\frac{\sin^2\left(\frac{(\delta + \omega_\alpha)t}{2}\right)}{(\delta + \omega_\alpha)^2}$ se comporte aux temps longs comme un pic de Dirac $\frac{\pi t}{2} \delta((\delta + \omega_\alpha))$. On reconnaît alors la formule trouvée au chapitre I pour la théorie de la photoassociation traditionnelle. On a :

$$\Gamma_{Raman}(\delta, \Delta) \approx \frac{1}{4} \Gamma_{PA}(\delta) \frac{|\Omega_{1,2}|^2}{(\Delta - \delta)^2}$$

Ce terme n'est non nul que lorsque $|\hbar\delta|$ est de l'ordre de $k_B T$. Dans la situation où $\Delta \gg \delta$ (c'est-à-dire $\hbar\Delta \gg k_B T$), cette équation s'écrit :

$$\Gamma_{Raman}(\delta, \Delta) \approx \frac{1}{4} \Gamma_{PA}(\delta) \frac{|\Omega_{1,2}|^2}{\Delta^2} \quad (4.7)$$

c) Population dans l'état $|1\rangle$

Nous vérifions ici, dans le formalisme perturbatif développé ici, que la population dans l'état $|1\rangle$ est nulle. Pour le calcul de $\langle 1 | \sigma | 1 \rangle$, seuls interviennent les termes en :

$$(t, \tau, T, 0, t') = \int_0^{t_f} \int_0^t \int_0^\tau \int_0^T \int dt d\tau dT dt' d\alpha \\ \langle 1 | \widetilde{W}(t) | 2 \rangle \langle 2 | \widetilde{W}(\tau) | 1 \rangle \langle 1 | \widetilde{W}(T) | \alpha \rangle \langle \alpha | \sigma(0) | \alpha \rangle \langle \alpha | \widetilde{W}(t') | 1 \rangle$$

Il s'agit ici de calculer quatre termes :

$$\begin{aligned} & -(t, \tau, T, 0, t') \\ & -(t, \tau, t', 0, T) \\ & -(t, T, t', 0, \tau) \\ & -(\tau, T, t', 0, t) \end{aligned}$$

Il apparaît à nouveau des termes en $\exp(-i(\delta + \Delta)t)$ et en $\exp(-i(\omega_\alpha - \Delta)t)$, dont nous ne nous préoccupons pas pour les mêmes raisons que lors du calcul de $\langle 2 | \sigma | 2 \rangle$. Seul reste un terme, qui ajouté à son complexe conjugué vaut :

$$\frac{4 \sin^2\left(\frac{(\delta + \omega_\alpha)t}{2}\right)}{(\delta + \omega_\alpha) (\Delta + \omega_\alpha)^2 (\Delta + \delta)}$$

Ce terme, si on suppose $\Delta \gg (\omega_\alpha, \delta)$, s'écrit :

$$- \left(\frac{4 \sin^2\left(\frac{(\delta + \omega_\alpha)t}{2}\right)}{(\delta + \omega_\alpha)^2} \right) \frac{(\delta + \omega_\alpha)}{\Delta^3}$$

Lorsqu'on intègre sur le continuum d'état initial, le terme de gauche (entre parenthèses) se comporte comme un pic de Dirac aux temps longs : $\frac{\sin^2\left(\frac{(\delta + \omega_\alpha)t}{2}\right)}{(\delta + \omega_\alpha)^2} \rightarrow \frac{\pi t}{2} \delta((\delta + \omega_\alpha))$. On a évidemment $\int d\omega_\alpha (\delta + \omega_\alpha) \delta((\delta + \omega_\alpha)) = 0$.

Dans notre approximation, on a bien $\langle 1 | \sigma | 1 \rangle = 0$. Lorsque le laser L_1 est suffisamment décalé, on peut produire des molécules froides dans l'état fondamental, sans peupler l'état excité, c'est-à-dire qu'on est dans les conditions d'un transfert Raman. De ce fait, dans l'équation 4.7 déterminant le taux de photoassociation Raman stimulée, le taux de photoassociation $\Gamma_{PA}(\delta)$ correspond à un taux de photoassociation pris pour un temps d'interaction infini, c'est-à-dire ignorant l'émission spontanée, conformément à l'équation 1.13.

d) Réexcitation des molécules produites

Nous cherchons dans ce paragraphe à déterminer les conditions dans lesquelles on peut négliger l'excitation par les lasers en présence des molécules froides dans l'état fondamental produites par la transition Raman stimulée. Deux types de réexcitations peuvent être envisagées : le premier cas est la ré-excitation à un photon, suivi d'émission spontanée. La probabilité de ce processus peut être aisément évaluée en utilisant la formule 1.1. La ré-excitation à un photon peut être négligée tant que $\frac{\Omega_{1,2}^2}{4\Delta^2} \ll 1$.

La seconde ré-excitation envisagée est le processus inverse à la photoassociation Raman stimulée. Il s'agit en quelque sorte de "photodissociation Raman stimulée". Pour en avoir une estimation, nous cherchons à évaluer la probabilité pour des molécules formées par photoassociation Raman stimulée de subir une transition à deux photons vers le continuum initial. Il s'agit de calculer :

$$\Gamma_{abs} = \int_0^{t_f} \int_0^t \int_0^\tau \int_0^T \int dt d\tau dT dt' d\alpha \\ \langle \alpha | \widetilde{W}(t) | 1 \rangle \langle 1 | \widetilde{W}(\tau) | 2 \rangle \langle 2 | \sigma | 2 \rangle \langle 2 | \widetilde{W}(T) | 1 \rangle \langle 1 | \widetilde{W}(t') | \alpha \rangle$$

Par un calcul analogue aux calculs précédents, on montre que :

$$\begin{aligned}
N_{abs} &= \int d\alpha \frac{4 \sin^2\left(\frac{(\delta+\omega_\alpha)t}{2}\right)}{(\delta+\omega_\alpha)^2 (-\Delta-\omega_\alpha)(-\Delta+\delta)} |\Omega_{1,2}|^2 |\Omega_{1,\alpha}|^2 \langle 2|\sigma|2\rangle \\
&= \int d\alpha \pi t \delta(\delta+\omega_\alpha) \frac{|\Omega_{1,2}|^2 |\Omega_{1,\alpha}|^2 \langle 2|\sigma|2\rangle}{(-\Delta-\omega_\alpha)(-\Delta+\delta)} = \pi \frac{|\Omega_{1,2}|^2 |\Omega_{1,\delta}|^2}{(\Delta-\delta)^2} \langle 2|\sigma|2\rangle t
\end{aligned}$$

Si on se place dans la situation perturbative où $\langle 2|\sigma|2\rangle \ll \langle \alpha|\sigma(t=0)|\alpha\rangle$. Alors,

$$N_{abs} \ll \frac{1}{4} \Gamma_{PA}(\delta) \frac{|\Omega_{1,2}|^2}{(\Delta-\delta)^2} t \approx \Gamma_{Raman}(\delta, \Delta) t$$

La réexcitation des molécules est donc négligeable tant que le processus de photoassociation Raman stimulée lui-même peut être considéré comme un processus perturbatif, c'est-à-dire que :

$$\frac{1}{4} \Gamma_{PA}(\delta) \frac{|\Omega_{1,2}|^2}{(\Delta-\delta)^2} t \ll 1 \quad (4.8)$$

Le taux de photoassociation est typiquement de l'ordre de 1 s^{-1} . Il convient donc, pour que la ré-excitation des molécules soit négligeable, que le temps d'interaction soit court devant la seconde et que $\Delta > \Omega_{1,2}$. Dans notre cas, les temps de photoassociation sont de l'ordre de quelques millisecondes, si bien que la condition $\Delta > \Omega_{1,2}$ n'est pas cruciale.

e) Conditions de réalisation de la photoassociation Raman stimulée

D'après l'expression 4.7, le taux de photoassociation Raman stimulé peut atteindre des valeurs comparables à celles du taux de photoassociation habituel. Cela implique qu'on peut réaliser des expériences de photoassociation Raman stimulée dans des pièges magnéto-optiques usuels, c'est-à-dire dans des milieux très dilués. Le taux de photoassociation étant proportionnel à la densité atomique dans l'espace des phases (voir l'expression du taux B.8), la photoassociation Raman stimulée est bien plus efficace dans un condensat. Une telle expérience a récemment été réalisée dans un condensat, même si les molécules n'y sont pas explicitement détectées [57].

Comme nous l'avons vu plus haut, le laser L_1 doit être hors de résonance. Si ce n'est pas le cas (c'est-à-dire si $\Delta \sim \omega_\alpha$), d'une part l'expression donnée pour la photoassociation Raman stimulée n'est plus valable, et d'autre part, le processus dominant est la photoassociation simple. On ne peut plus alors négliger l'émission spontanée depuis les niveaux photoassociés, et l'échantillon de molécules qu'on obtient n'est pas nécessairement pur. Plusieurs niveaux moléculaires sont alors peuplés. Le taux d'émission spontanée dû à la désexcitation des molécules photoassociées par le laser L_1 est environ égale à $\Gamma_{PA}^r(\Delta)$, (voir équation B.10). Dans le cas d'une photoassociation Raman stimulée résonante, le nombre de molécules formées est $\frac{1}{4} \Gamma_{PA}(\delta) \frac{|\Omega_{1,2}|^2}{\Delta^2}$. Le nombre de molécules froides produites par émission spontanée est donc négligeable tant que

$$\frac{1}{4} \frac{\pi \hbar (\gamma^2 + \Delta^2)}{\kappa \gamma k_B T} \frac{|\Omega_{1,2}|^2}{\Delta^2} \frac{\Gamma_{PA}(\delta)}{\Gamma_{PA}(\frac{k_B T}{2})} \gg 1$$

c'est-à-dire, pour un décalage $\Delta \gg \gamma$:

$$\frac{\pi \hbar \Omega_{1,2}^2}{8 p \kappa \gamma k_B T} \gg 1 \quad (4.9)$$

où p est la probabilité pour une molécule photoassociée dans 1_u de se désexciter dans le fondamental (environ 0,9 pour $1_u, v=1$). La deuxième limitation du processus de photoassociation Raman stimulée est la ré-excitation des molécules du fondamental. Nous avons vu que celle-ci est négligeable tant que le temps d'interaction est faible devant la seconde et que $\Omega_{1,2} < \Delta$. De même la réexcitation à un photon est négligeable si $\Omega_{1,2}^2 \ll 4\Delta^2$

Enfin, l'approche perturbative est valable tant que la transition $|1\rangle \rightarrow |2\rangle$ n'est pas saturée par le laser L_2 . Pour que la production de molécules dans l'état excité par le laser L_1 , et donc la formation de molécules froides par émission spontanée, soient négligeables, le déplacement lumineux induit sur le système à deux niveaux ($|1\rangle, |2\rangle$) par L_2 doit être négligeable devant Δ . Ceci s'exprime, en fonction de la fréquence de Rabi de la transition, par :

$$\left| \frac{\Omega_{1,2}^2}{\Delta - \delta} \right| \ll \Delta, \text{ c'est-à-dire : } \Omega_{1,2}^2 \ll \Delta^2 \quad (4.10)$$

Si cette condition n'est pas réalisée, le processus dominant est la photoassociation du niveau excité habillé, suivi d'émission spontanée. Pour que le processus de photoassociation soit négligeable, il faut aussi que $\Delta \gg \omega_\alpha \sim k_B T$, ce qui est une condition automatiquement vérifiée dès que la condition 4.10 est elle-même vérifiée.

On voit donc qu'on peut réaliser la photoassociation Raman stimulée, à condition d'une part d'avoir une fréquence de Rabi $\Omega_{1,2}$ grande pour le laser L_2 , et d'autre part d'appliquer un grand décalage $\Delta \gg \Omega_{1,2}$ pour le laser L_1 . Si le paramètre Δ est un paramètre bien contrôlé de l'expérience, la fréquence de Rabi $\Omega_{1,2}$, elle, n'est pas connue. Nous décrivons au paragraphe suivant des expériences, mettant en évidence l'effet Autler-Townes engendré par L_2 , qui permettent de la déterminer.

f) Limites de validité du modèle perturbatif; largeur de raie

Le traitement perturbatif suppose, comme nous l'avons expliqué plus haut que le temps d'interaction est court devant le temps d'évolution du système, c'est-à-dire l'inverse du taux de photoassociation Raman stimulée. On considérera des temps courts devant la seconde.

D'autre part, nous avons supposé que le temps d'évolution du système est long, de sorte qu'on peut dans l'intégrale sur les énergies remplacer $\frac{4 \sin^2(\frac{(\delta + \omega_\alpha)t}{2})}{(\delta + \omega_\alpha)^2} = 2t\pi\delta_t(\delta + \omega_\alpha)$ par $2t\pi\delta(\delta + \omega_\alpha)$, il

faut que $\frac{1}{2\pi t}$ soit très petit devant la largeur du continuum. Ici, il convient que $1/t$ soit très inférieur à la largeur du continuum initialement peuplé, $\frac{k_B T}{h}$. C'est-à-dire que le temps d'interaction doit être supérieur à 300 ns. Pour les temps plus courts, le comportement doit être quadratique (début d'une oscillation de Rabi).

Dans la pratique, le laser de photoassociation est appliqué pendant quelques millisecondes. Contrairement au cas de la photoassociation simple, où le temps d'interaction est limité par le temps de vie du niveau excité (30 ns), ici rien a priori ne limite la durée de la photoassociation Raman stimulée. Ce modèle reste valable tant que le processus de réexcitation est négligeable, donc tant que le processus est perturbatif.

Rien donc, dans le cadre du processus perturbatif, ne fixe une largeur à la condition de résonance portant sur la différence de la fréquence des deux lasers, par rapport à la différence d'énergie entre le continuum au-dessus de la limite $6s+6s$ et le niveau final peuplé. Aucune émission spontanée n'est en effet possible depuis ce niveau final. La largeur provient donc uniquement de la largeur du continuum initialement peuplé, ainsi que de l'incertitude sur la différence de fréquence entre les deux lasers, c'est-à-dire, dans le cas général, la somme des largeurs spectrales des lasers.

La largeur d'une raie en photoassociation Raman stimulée n'est donc pas égale à la largeur d'une raie de photoassociation ; elle lui est dans le cas général inférieure.

g) Généralisation : transitions Raman à plusieurs photons.

Comme le montre par exemple la figure 4.6, il sera probablement difficile de peupler le niveau vibrationnel $v=0$, $J=0$ de l'état triplet avec une seule transition Raman stimulée. Nous explorons ici la possibilité de réaliser une transition Raman à plusieurs photons (voir figure 4.12). Notons cependant qu'à partir du moment où un seul niveau moléculaire est peuplé (par une transition Raman stimulée "simple"), il sera probablement plus efficace de transférer les molécules vers $v=0$ par un processus de type STIRAP, dont l'efficacité peut théoriquement être de 100%.

Le calcul pour des transitions Raman stimulées à plusieurs photons, en utilisant la matrice densité, est lourd. Il n'est cependant pas conceptuellement différent du calcul à l'ordre 2 exposé plus haut. Les notations employées dans ce paragraphe sont synthétisées figure 4.12. Le calcul consiste à développer l'équation 4.5 à l'ordre 8. C'est-à-dire qu'il s'agit d'un calcul perturbatif à l'ordre 4. Il s'agit d'effectuer des intégrations sur 8 temps t_i , en conservant un ordre entre les temps. Seuls les termes où $\sigma(0)$ est au centre ne s'annulent pas. Pour calculer les termes $(t_1, t_2, t_3, t_4, 0, t_5, t_6, t_7, t_8)$, on emploie un diagramme équivalent à celui exposé figure 4.11. Ce diagramme comporte de nombreux termes (2^8). La plupart ne sont pas résonants et ne nous intéressent pas. Seuls les termes quasi-résonants en $\delta_4 + \omega_\alpha$ correspondent à la réaction étudiée. Ces termes sont, plus explicitement, issus de la fréquence : $\omega_4 - \omega_\alpha - \omega_A + \omega_B - \omega_C + \omega_D$. En examinant le diagramme analogue à celui de la figure 4.11, on remarque qu'une telle fréquence ne peut provenir que d'un terme où les quatre termes de gauche en bloc ont été intégrés avant les quatre termes de droite en bloc, ou respectivement. C'est-à-dire que les seuls termes à calculer sont les termes $(t_1, t_2, t_3, t_4, 0, t_8, t_7, t_6, t_5)$ et $(t_5, t_6, t_7, t_8, 0, t_4, t_3, t_2, t_1)$, qui sont conjugués l'un de l'autre.

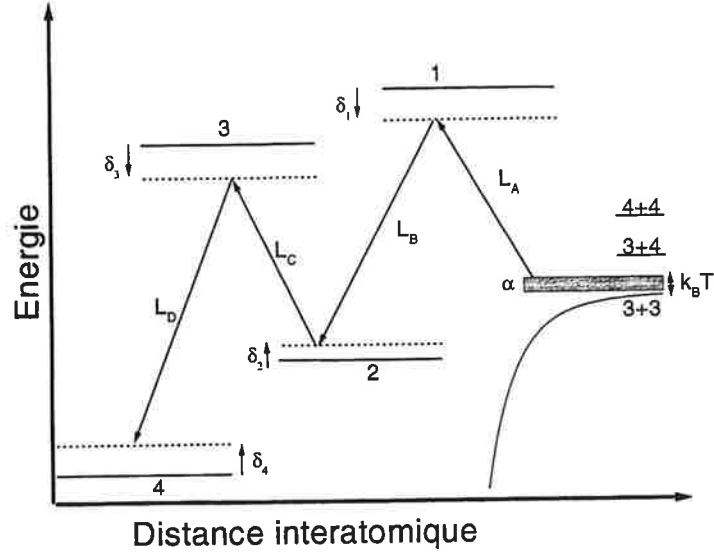


FIG. 4.12: Schéma de principe d'une transition Raman à plusieurs photons.

Les termes obtenus se rangent dans deux familles ; un terme, unique, s'écrit :

$$X = \frac{2 - 2 \cos((\delta_4 + \omega_\alpha)t)}{(\delta_4 + \omega_\alpha)^2 (\delta_3 + \omega_\alpha)^2 (\delta_2 + \omega_\alpha)^2 (\delta_1 + \omega_\alpha)^2}$$

Tous les autres termes s'écrivent de la façon suivante :

$$Y = \frac{-2 \cos((\delta_4 + \omega_\alpha)t) + 2}{(-\delta_4 - \omega_\alpha) \prod (\delta_i - \delta_j)}$$

où $\prod (\delta_i - \delta_j)$, qu'il n'est pas utile d'expliciter, représente un produit de différences entre les différents décalage à résonance, ou entre les décalages à résonance et ω_α . Le seul point important ici est que $(\delta_4 + \omega_\alpha)$ ne figure pas dans ce produit. Ces termes peuvent donc se réécrire sous la forme :

$$Y = \frac{(-2 \cos((\delta_4 + \omega_\alpha)t) + 2) (-\delta_4 - \omega_\alpha)}{(\delta_4 + \omega_\alpha)^2 \prod (\delta_i - \delta_j)}$$

On a donc :

$$\langle 4 | \sigma(t) | 4 \rangle = \int d\alpha \frac{\exp(-\hbar\omega_\alpha/k_B T)}{2^{8tr(Z)}} |\Omega_{1,2}|^2 |\Omega_{2,3}|^2 |\Omega_{3,4}|^2 |\Omega_{1,\alpha}|^2 \frac{4 \sin^2(\frac{(\delta_4 + \omega_\alpha)t}{2})}{(\delta_4 + \omega_\alpha)^2} (A + B + B' + B'' + \dots)$$

A et (B, B', B'', \dots) sont respectivement issus des termes X et Y ci-dessus. $\Omega_{k,k+1}$ sont les fréquences de Rabi pour la transition $k \rightarrow k + 1$. Si on se place aux temps longs (comme dans le cas de la photoassociation Raman stimulée déjà vue, l'émission spontanée du dernier niveau est interdite, si bien que le traitement reste valable tant qu'il reste perturbatif), le terme $\frac{4 \sin^2(\frac{(\delta_4 + \omega_\alpha)t}{2})}{(-\delta_4 - \omega_\alpha)^2}$ se comporte comme un pic de Dirac $2\pi t \delta(\delta_4 + \omega_\alpha)$. Les termes (B, B', B'', \dots) sont nuls pour $\omega_\alpha = -\delta_4$, si bien que seul compte le terme en A . On obtient un taux de photoassociation Raman stimulée à 4 photons. Celui-ci s'écrit :

$$\Gamma = \frac{\Gamma_{PA}(\delta_4)}{2^6} \frac{|\Omega_{1,2}|^2 |\Omega_{2,3}|^2 |\Omega_{3,4}|^2}{(\delta_3 - \delta_4)^2 (\delta_2 - \delta_4)^2 (\delta_1 - \delta_4)^2} \approx \frac{\Gamma_{PA}(\delta_4)}{2^6} \frac{|\Omega_{1,2}|^2 |\Omega_{2,3}|^2 |\Omega_{3,4}|^2}{\delta_3^2 \delta_2^2 \delta_1^2}$$

On a fait la supposition que δ_3 , δ_2 , et δ_1 sont grands devant $k_B T / \hbar$. Il faut par ailleurs que δ_1 et δ_3 soient grands devant la largeur naturelle des niveaux moléculaires excités, ainsi que par rapport à l'écartement par effet Autler-Townes des niveaux $|1\rangle$ et $|3\rangle$, de façon à pouvoir négliger toute émission spontanée. Pour que la photoassociation Raman stimulée "simple" (à deux photons) soit négligeable, il suffit δ_2 soit grand devant la largeur d'une raie de photoassociation Raman stimulée (donc devant ω_α).

Le résultat présenté ici est immédiatement généralisable : si on considère n transitions Raman, on a, à l'ordre $2n$ des perturbations, on a :

$$\Gamma_n = \Gamma_{PA}(\delta_n) \prod_{k=1}^{n-1} \frac{|\Omega_{k,k+1}|^2}{4(\delta_k - \delta_n)^2}$$

Nous n'entrerons pas plus en détail dans l'étude de transitions Raman stimulées à plusieurs photons. Notons que de telles transitions peuvent être relativement efficaces, mais que le processus sera d'autant moins performant, et d'autant plus difficile de mise en oeuvre, que le nombre de niveaux intermédiaires sera élevé. De telles transitions Raman successives sont cependant probablement possibles, car les fréquences de Rabi entre niveaux intermédiaires, qui sont des fréquences de Rabi entre niveaux liés, sont souvent élevées, même pour des intensités laser faibles. Il suffira probablement d'utiliser des diodes laser. On voit cependant ici qu'un processus STIRAP à partir d'un niveau vibrationnel excité (peuplé par une transition de photoassociation Raman stimulée) sera probablement une voie plus efficace pour produire des molécules dans $v=0$, $J=0$.

4.2.2 Formation de molécules froides par PA Raman stimulée.

Le schéma de principe de la photoassociation Raman stimulée est donné figure 4.10. Les atomes dans l'état initial sont dans l'état hyperfin $F=3$. On les prépare par la procédure décrite au paragraphe 1.1.5. Le laser L_1 est un laser $\text{Sa} : \text{Ti}$, et le laser L_2 est une diode de type DBR (décrits tous deux au paragraphe 1.3.3). L'intensité laser maximale dans la zone du piège des lasers L_1

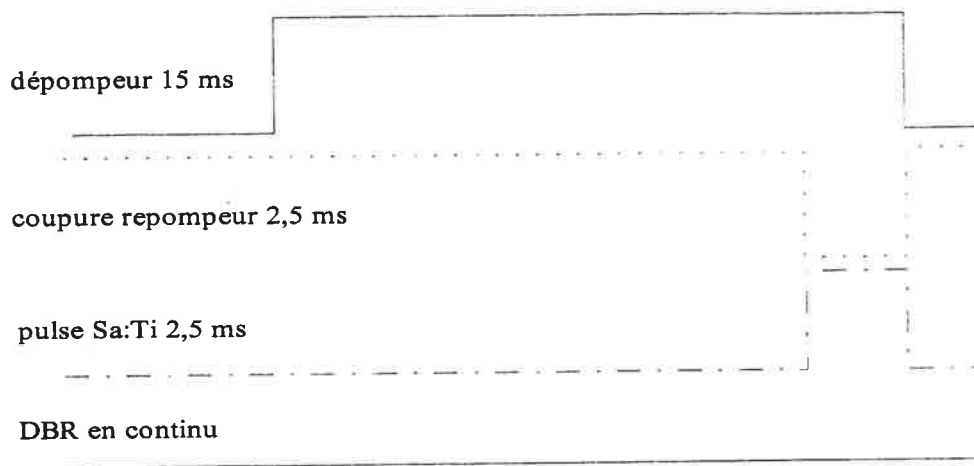


FIG. 4.13: Séquence temporelle mise en oeuvre lors des expériences à deux photons (Raman ou Autler-Townes)

et L_2 est respectivement 450 W/cm^2 et 50 W/cm^2 . Les molécules sont détectées par ionisation d'après le schéma expliqué au paragraphe 1.3.5.

La séquence temporelle employée, synthétisée figure 4.13, est la suivante : à $t=0$, nous coupons le repompeur pour transférer les atomes dans l'état hyperfin $F=3$. Du fait de l'efficacité seulement partielle de l'acousto-optique utilisé pour couper le repompeur, on utilise un faisceau dépompeur, allumé quelques millisecondes avant $t=0$. Celui-ci est résonant $6s$, $F=4 \rightarrow 6p_{3/2}$, $F=3$. Son intensité est de l'ordre de 1 mW/cm^2 . Le laser L_2 est appliqué continuellement. Le laser L_1 est appliqué entre $t=0$ et $t=2,5 \text{ ms}$.

a) Transition à deux photons

La figure 4.14 montre le fait expérimental nouveau de cette section. Il s'agit de spectre ioniques (correspondant à la formation de molécules froides) obtenus en balayant la longueur d'onde du laser L_2 . Le spectre (a) est un spectre de photoassociation classique ; il s'agit du processus symbolisé par la flèche pointillée de la figure 4.10, suivi d'émission spontanée. Les molécules froides, produites par photoassociation suivie d'émission spontanée sont détectées. Le laser L_2 a une intensité de 30 W/cm^2 . Ce spectre, étudié au paragraphe 3.3.1, permet la caractérisation d'une raie de photoassociation bien isolée. Cette résonance correspond à l'excitation d'une molécule dans l'état 1_u ; il s'agit d'un sous-niveau de moment total $F_t=7$ appartenant à la raie vibrationnelle $v=1$ de l'état 1_u . On note $|1\rangle$ ce niveau.

Le même balayage est répété en présence du laser L_1 . Celui-ci a une intensité de 450 W/cm^2 ; sa fréquence est fixe, située 20 MHz sous la résonance de photoassociation $|1\rangle$. Aucune autre condition expérimentale n'est modifiée. Deux différences apparaissent entre les spectres a) et b). Premièrement, on observe une diminution du signal ionique dû à la photoassociation de l'état 1_u par le laser L_2 . Cette diminution ne fait pas l'objet de notre étude⁶. Deuxièmement, on observe

⁶La diminution du signal s'explique probablement par une deuxième excitation des molécules photoassociées ;

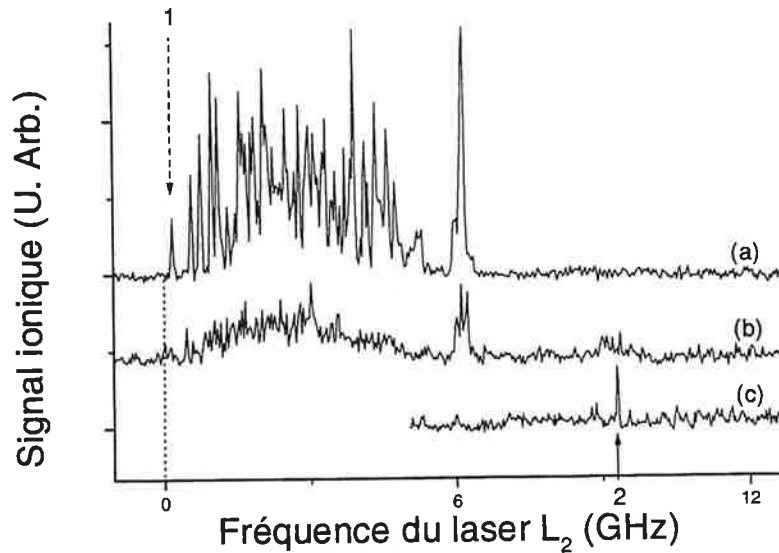


FIG. 4.14: Spectre ionique obtenu par balayage de la longueur d'onde du laser L_2 : a) $I(L_2) = 30 \text{ W/cm}^2$; b) *idem* en présence du laser L_1 décalé de 20 MHz vers le rouge de la résonance |1> ; c) *idem* $I(L_2) = 2 \text{ W/cm}^2$.

une nouvelle structure, signalée sur la figure 4.14 par une flèche, située à environ 9,3 GHz sous la limite de dissociation $F=3+F=3$. Il s'agit d'une structure large ($\lesssim 1 \text{ GHz}$). Celle-ci est notée |2>.

Le spectre c) est obtenu dans les mêmes conditions expérimentales que le spectre b), la seule différence étant l'intensité du laser L_2 . Celle-ci est réduite à 2 W/cm^2 . On n'observe plus dans ces conditions de photoassociation par le laser L_2 seul. La structure |2>, elle, demeure. Sa largeur est très fortement réduite.

b) Transition Raman stimulée

Notre étude s'est focalisée sur la structure notée 2. La première expérience réalisée consiste à tester la dépendance de ce signal en fonction du laser L_1 . La figure 4.15 décrit les tests que nous avons faits pour mettre en évidence le caractère Raman de la transition. Le spectre a) est obtenu lorsque le laser L_1 est décalé de 40 MHz vers le rouge de la résonance de photoassociation |1>. Pour le spectre b), L_1 est décalé de 40 MHz vers le bleu de cette résonance. Deux points sont remarquables. Premièrement la résonance |2> se déplace de telle façon que la différence des fréquences de laser L_2 et L_1 soit constante. Ceci signifie qu'il s'agit d'un processus à deux photons, un photon absorbé et un photon émis par émission stimulée. Cela exclut l'hypothèse d'une excitation à deux photons vers des niveaux doublement excités. Comme par ailleurs $\omega_2 > \omega_1$, il

celles-ci peuvent absorber un photon avant de se désexciter, ce qui peut inhiber la formation de molécules froides. Une autre possibilité est que les molécules produites soient réexcitées par un des lasers en présence (laser piège par exemple).

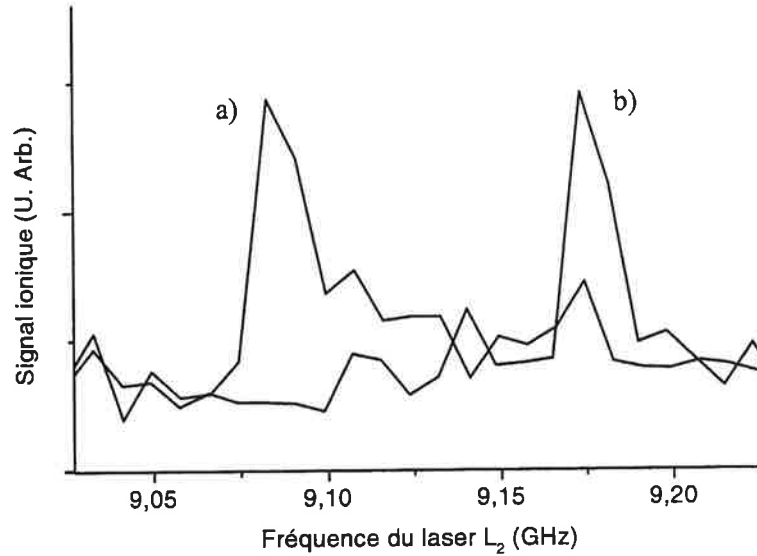


FIG. 4.15: Spectre obtenu en balayant la fréquence du laser L_2 au voisinage de la résonance $|2\rangle$; pour le spectre a), le laser L_1 est décalé de 40 MHz vers le rouge de la résonance de photoassociation $|1\rangle$; pour le spectre b), le laser L_1 est décalé de 40 MHz vers le bleu de la résonance de photoassociation $|1\rangle$

s'agit d'une transition vers un niveau lié de l'état fondamental de Cs_2 . Le second fait important est que les deux pics ne se recouvrent pas. Ceci implique que les molécules ne sont pas produites par émission spontanée d'un photon par une molécule excitée. Le calcul perturbatif de la théorie Raman stimulée décrite plus haut s'applique donc. Il s'agit d'un transfert à deux photons depuis la paire d'atomes en collision jusque la molécule froide, sans peupler le niveau excité. On parle d'un transfert Raman stimulé.

Nous avons par ailleurs analysé la largeur du signal obtenu. Pour une intensité du laser L_2 donnée, celle-ci décroît quand le désaccord à résonance $|\Delta|$ du laser L_2 croît. Comme nous l'avons noté plus haut, la largeur du signal décroît aussi quand l'intensité de la DBR décroît. On observe ainsi la saturation de la transition $|1\rangle \rightarrow |2\rangle$ au dessus d'une certaine intensité. Il est intéressant de noter que cette saturation se produit bien que l'énergie de laser L_2 est assez faible. On voit ici à nouveau un effet de la structure en double-puits de l'état excité, qui permet un bon recouvrement des fonctions d'onde moléculaire excitée et fondamentale. Le spectre obtenu lorsque le laser L_1 est décalé de 50 MHz par rapport à la résonance et que l'intensité du laser L_2 est de 2 W/cm^2 , est donné figure 4.16. On observe trois résonances attribuées à la structure rotationnelle du niveau rovibrationnel atteint. La largeur du signal observé pour la résonance $J=2$ est dans ces conditions inférieure à 10 MHz ; elle est donc inférieure à la largeur de la résonance de photoassociation du niveau moléculaire $|1\rangle$. Ceci est un autre élément prouvant le caractère Raman du processus. Par ailleurs, ceci indique que le schéma de photoassociation Raman stimulée apparaît *aussi* comme un

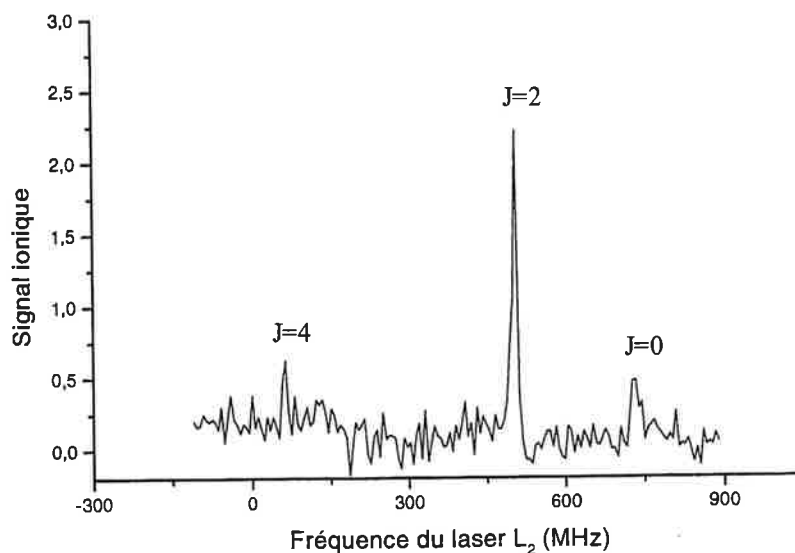


FIG. 4.16: Spectre obtenu en balayant le laser L_2 . Trois résonances sont observées, attribuées à une structure rotationnelle $l=0,2,4$. On déduit de cette structure la point tournant externe de la molécule formé, de l'ordre de $27 a_0$.

outil de spectroscopie très précis. On note aussi que l'élargissement observé figure 4.14 apparaît donc comme le résultat de l'élargissement de chacune des composantes rotationnelles.

Enfin, notons que la structure rotationnelle observée (et mise en évidence figure 4.16) permet un évaluation de l'extension spatiale de la molécule obtenue. En effet, les raies peuvent être attribuées au moment de rotation des noyaux. En effet, aux grandes distance, l est une constante de mouvement, découplée des autres moments, qui sont quant à eux couplés en un F_t total. L'énergie centrifuge de rotation s'écrivant sous la forme $\frac{l(l+1)\hbar^2}{2\mu R^2}$, on peut déduire de la figure 4.16 que l'extension moyenne de la molécule est de l'ordre de $28 a_0$. Ceci semble indiquer que cette molécule appartient au potentiel corrélé à la limite de dissociation $F=4+F=4$. En effet, si on concerne un potentiel asymptotique en C_6/R^6 (avec $C_6 = 6510$ u.a.), le point tournant externe d'un niveau moléculaire situé 9,3 GHz sous la limite de dissociation $F=3+F=3$ est d'environ $41 a_0$, $36,5 a_0$ et $34 a_0$ selon qu'on considère que ce niveau est corrélé à la limite de dissociation 3-3, 4-3, et 4-4.

c) Comparaison théorie-expérience

i) **Modèle de la molécule habillée** Pour préciser les conditions dans lesquelles sont réalisées les expériences décrites ci-dessus, nous avons procédé à des expériences où nous mettons en évidence l'effet Autler-Townes engendré par le laser L_2 . On sonde par le laser L_1 le niveau $|1\rangle$, alors que le laser L_2 est mis à résonance avec la transition $|1\rangle \leftrightarrow |2\rangle$. On observe donc, en balayant le laser L_1 , le système $(|1\rangle, |2\rangle)$ habillé par les photons du laser L_2 . Le système $(|1\rangle, |2\rangle)$ est un système à deux

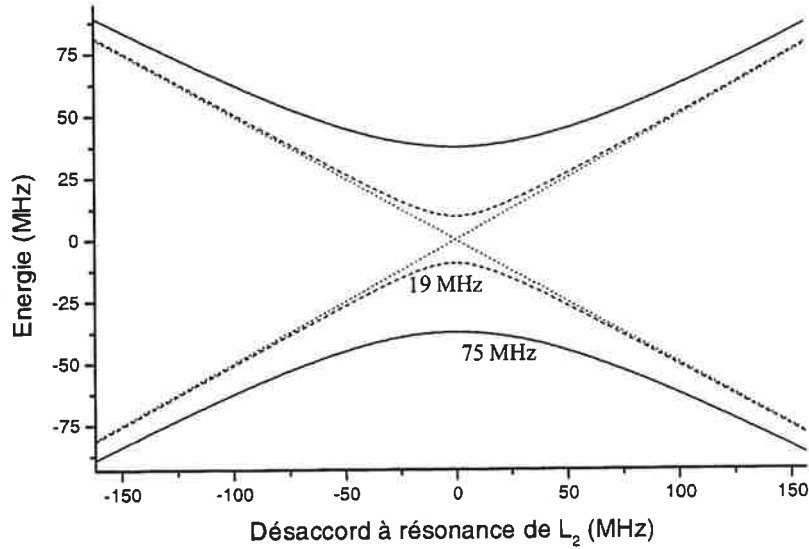


FIG. 4.17: *Energies propres du système $(|1\rangle, |2\rangle)$ habillé par les photons du laser L_2 . Les niveaux propres non couplés sont représentés en pointillé. Les niveaux propres couplés sont représentés pour une fréquence de Rabi de 19 MHz (pointillés longs) et 75 MHz (trait plein).*

niveaux couplés par interaction dipolaire. On peut donc lui appliquer le formalisme d'un système à deux niveaux habillé [66], que nous avons rappelé paragraphe 3.3.2. On rappelle (voir équation 3.13) les énergies propres du système habillé : $E(\pm) = \mp \hbar \sqrt{\frac{\delta^2}{4} + \frac{\Omega_{1,2}^2}{4}}$. Elles sont représentées figure 4.17 pour deux valeurs de $\Omega_{1,2}$. Cette formule peut être utilisée pour déterminer la fréquence de Rabi⁷ de la transition $|1\rangle \rightarrow |2\rangle$, pour une intensité donnée du laser L_2 .

ii) Détermination expérimentale de la fréquence de Rabi moléculaire Pour déterminer la fréquence de Rabi de la transition $|1\rangle \rightarrow |2\rangle$, nous avons balayé le laser de photoassociation L_1 au voisinage de la résonance $|1\rangle$. Le laser de photoassociation excite la partie électriquement excitée ($|1\rangle$) du système habillé. On obtient alors, en présence du laser L_2 , deux pics de photoassociation, dont les intensités sont proportionnelles à $|\langle - | 1 \rangle|^2$ et $|\langle + | 1 \rangle|^2$. Les résultats obtenus sont présentés figure 4.18.

Le spectre a) est obtenu en balayant la longueur d'onde du laser L_1 en l'absence du laser L_2 . Il s'agit de la raie de photoassociation $|1\rangle$. Le spectre b) est obtenu dans les mêmes conditions, le laser L_2 étant maintenu en résonance avec la transition $|1\rangle \rightarrow |2\rangle$. On observe un dédoublement mal résolu du pic de photoassociation. Les spectres c) et d) sont obtenus dans la situation où

⁷Il est en réalité impropre de parler d'une fréquence de Rabi unique : le moment des niveaux moléculaires considérés est non nul, et, comme le montre la formule A.15, la force d'oscillateur dépend de la projection des moments dans le référentiel du laboratoire. Comme il a été étudié dans la référence [100] dans le cas de l'ionisation de N_2 (par processus REMPI), on peut de ce fait observer un élargissement et une distorsion des raies Autler-Townes, phénomène qui dépend de la polarisation du laser. Ceci n'a pas été pris en compte dans notre cas.

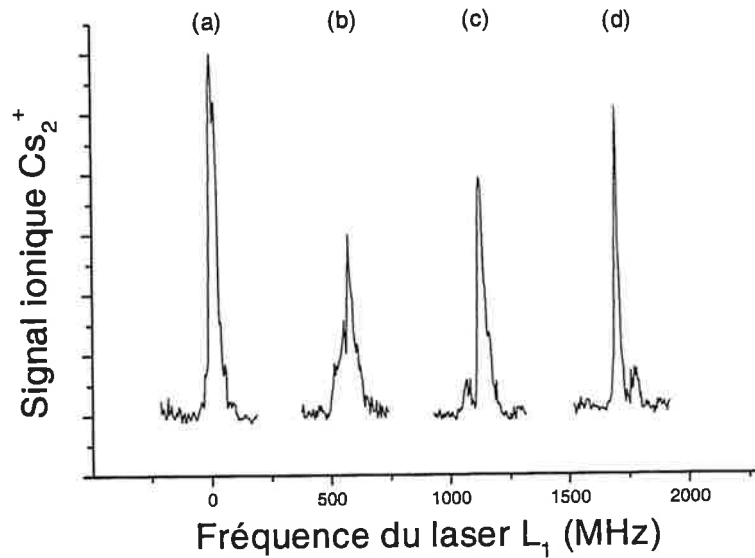


FIG. 4.18: Spectre obtenu en balayant la fréquence du laser L_1 au voisinage de la résonance $|1\rangle$; a) en l'absence du laser L_2 ; b) L_2 est résonant entre $|1\rangle$ et $|2\rangle$; c) L_2 décalé vers le rouge de la transition $|1\rangle \rightarrow |2\rangle$; d) L_2 décalé vers le bleu.

le laser L_2 est maintenu quelques dizaines de MHz hors de résonance de la transition $|1\rangle \rightarrow |2\rangle$, respectivement vers le rouge et vers le bleu. Pour les spectres b), c), et d), l'intensité du laser L_2 est constante et vaut 30 W/cm^2 .

Dans les spectres c) et d), on observe deux pics bien résolus. Ces deux pics sont séparés de 80 MHz. Le décalage à résonance du laser L_2 vaut environ 30 MHz. Dans la formule 3.13 on ajuste la valeur de $\Omega_{1,2}$ de manière à reproduire un dédoublement de 80 MHz pour un décalage de 30 MHz. Ceci est obtenu pour $\Omega_{1,2} = 75 \text{ MHz}$. La fréquence de Rabi de la transition $|1\rangle \leftrightarrow |2\rangle$ est de 75 MHz pour une intensité de 30 W/cm^2 . On en déduit que pour une intensité de 2 W/cm^2 du laser L_2 , la fréquence de Rabi de la transition est de $19 \text{ MHz} (= 75/\sqrt{30/2})$.

iii) Prise en compte de la géométrie du problème. Pour connaître de manière plus précise la fréquence de Rabi de la transition, il est nécessaire de prendre en compte la géométrie du problème, comme nous l'avons déjà montré au paragraphe 3.3.2. Si on écrit la fréquence de Rabi locale sous la forme $\Omega_{1,2}^2 \exp(-\frac{4(x^2+y^2)}{w^2})$, la formule 3.14 peut être utilisée pour ajuster le paramètre $\Omega_{1,2}$.

Le logiciel utilisé est Mathematica. Le résultat du calcul est représenté figures 4.19 et 4.20.

On déduit de ces deux figures que les signaux Autler-Townes observés sont bien reproduits en supposant un décalage à résonance du laser L_2 de 45 MHz, et une fréquence de Rabi de 90 MHz. La géométrie du piège et des lasers L_1 et L_2 joue un rôle non négligeable pour l'interprétation des spectres "Autler-Townes". En effet, si le laser L_2 est très focalisé (si par exemple sa taille est

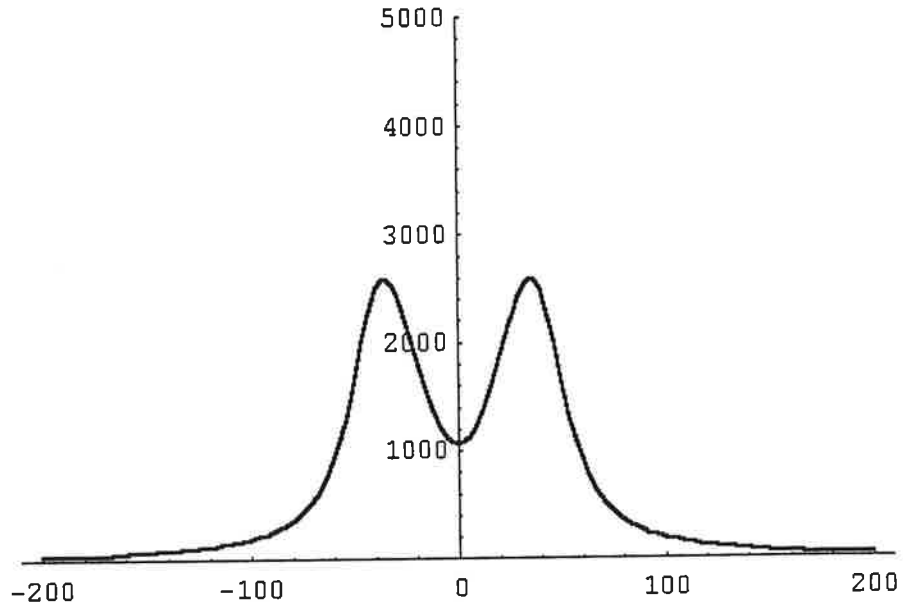


FIG. 4.19: Simulation de l'effet Autler-Townes, lorsque le laser L_2 est à résonance.

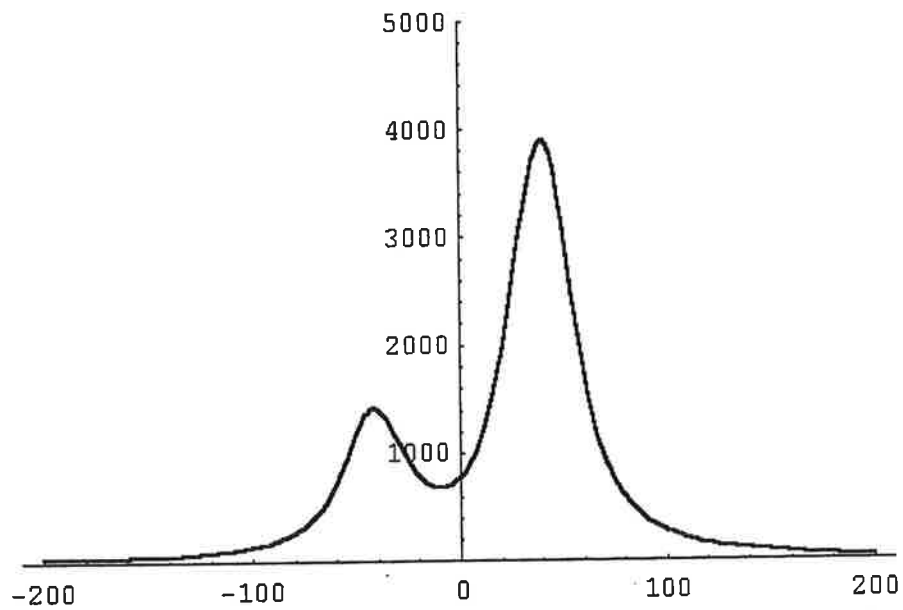


FIG. 4.20: Simulation de l'effet Autler-Townes. Les valeurs qui reproduisent le mieux les résultats de la figure 4.18 sont 90 MHz pour la fréquence de Rabi, et 45 MHz pour le décalage à résonance du laser L_2 .

dix fois plus petite que le piège magnéto-optique), de nombreux atomes sont dans des régions où l'intensité laser est faible. Il est alors difficile d'observer des structures telles que celles présentées figure 4.18. Dans notre cas, les tailles des deux faisceaux laser sont approximativement identiques, et légèrement inférieures à la taille du piège magnéto-optique (voir la figure 1.20).

Notons par ailleurs que pour des signaux très faibles, le signal ne peut pas être distingué du signal de fond, dû aux molécules photoassociées en continu par les faisceaux piège. Dans une simulation comme celle représentée figure 4.20, on peut considérer que tous les points dont la cote est inférieure à 1000 (l'unité est arbitraire) ne peuvent pas être distingués du bruit de fond.

Dans ces conditions, l'accord entre les simulations et l'expérience présentée ici est très satisfaisant. Nous pouvons donc conclure que la fréquence de Rabi est de l'ordre de 90 MHz. On en déduit que la fréquence de Rabi est de l'ordre de 25 MHz pour une intensité laser de 2 W/cm^2 .

iv) Comparaison théorie-expérience Dans nos conditions expérimentales, pour la réalisation de la photoassociation Raman stimulée, l'intensité du laser L_2 est de 2 W/cm^2 c'est-à-dire que $\Omega_{1,2}=25 \text{ MHz}$. La condition de l'équation 4.9 est alors réalisée. Le nombre de molécules produites par photoassociation Raman stimulée est environ 7 fois plus important que celui produit par photoassociation suivie d'émission spontanée. L'échantillon de molécules obtenu est donc à plus de 85 % constitué de molécules qui sont toutes dans le même état ro-vibrationnel. Ceci est conforme aux observations, puisque le signal observé est de l'ordre de 10 fois le bruit en l'absence de L_2 . Ceci correspond à l'observation d'environ 50 ions Cs_2^+ . Ceci indique que le modèle perturbatif décrit dans ce chapitre donne une bonne estimation du taux de formation de molécules froides par photoassociation Raman stimulée.

Si on estime qu'environ la moitié de molécules produites sont ionisées (ce qu'indiquent les saturations usuellement observées dans les spectres d'ionisation des molécules) et si on prend en considération l'efficacité du détecteur (environ 30 %, voir le paragraphe 1.3.5) l'observation de 50 ions, accumulés en 2,5 ms de photoassociation Raman stimulée, correspond à un taux de photoassociation Raman stimulée de l'ordre de $1,5 \cdot 10^5$ molécules par seconde.

Par ailleurs, la condition 4.8 est remplie ; en effet le temps de photoassociation Raman stimulée est de 2,5 ms, et Δ vaut 50 MHz. Dans ces conditions on peut négliger la réexcitation des molécules formées. En outre, le décalage Δ est alors de 50 MHz, si bien que la condition 4.10 est remplie : on peut donc décrire le processus par un modèle complètement perturbatif. Pour des valeurs plus grandes de $\Omega_{1,2}$ un élargissement des raies à deux photons est observé, conformément à ce que prédit le modèle introduit au paragraphe 3.3.2.

Nous avons par ailleurs cherché à détecter d'autres niveaux produits par photoassociation Raman stimulée, en exploitant les spectres décrits au paragraphe 3.3 du chapitre 3, sans succès. Les niveaux que nous avons testés étaient tous plus proches de la limite de dissociation que le niveau étudié plus haut. Il semble que la "fenêtre" de niveaux vibrationnels qu'on puisse produire par photoassociation Raman stimulée et détecter par notre schéma d'ionisation est assez étroite, comme le montre la figure 4.21. D'une part, les facteurs de Franck-Condon correspondant à la

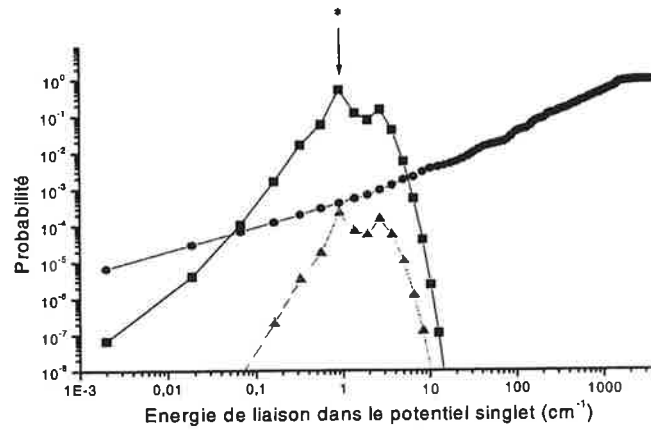


FIG. 4.21: On a représenté sur cette figure la valeur du facteur de Franck-Condon pour la désexcitation de $1u$, $v=1$, vers les différents niveaux vibrationnels du potentiel singulet, repérés par leur énergie en cm^{-1} (carrés). On a aussi tracé (ronds), pour chaque niveau du fondamental, la probabilité d'ionisation : il s'agit de la somme des facteurs de Franck-Condon entre $v(1^1\Sigma_g)$ et les différents niveaux vibrationnels de l'état $1^1\Pi_u(6s+5D)$. Les triangles sont le produit des deux autres courbes. L'étoile représente le niveau effectivement détecté.

désexcitation du niveau $v=1$ de 1_u deviennent très faibles pour les niveaux proches de la limite de dissociation, ou pour des niveaux profonds. D'autre part la probabilité d'ionisation des molécules devient presque nulle pour les niveaux proches de la limite de dissociation (voir paragraphe 4.1.3).

Comme nous l'avons montré plus haut en étudiant la structure rotationnelle du niveau observé par photoassociation Raman stimulée, celui-ci semble être corrélé à la limite de dissociation $F=4+F=4$. Il est donc situé environ $0,92 \text{ cm}^{-1}$ sous la limite de dissociation, et il est signalé par l'étoile sur la figure 4.21. Il semble donc être un des niveaux pour lequel la formation et la détection des molécules sont les plus favorables⁸. Ceci souligne que la mise en oeuvre des expériences que j'ai présentées ici est délicate. Elles seraient bien entendu bien plus aisées dans un condensat, où la densité atomique est mille fois plus élevée que dans notre piège magnéto-optique. Elles sont cependant, dans le cas du césium, rendues possibles par la structure en double puits de l'état moléculaire excité, qui permet d'obtenir des fréquences de Rabi $\Omega_{1,2}$ grandes pour des intensités laser assez faibles. Les expériences que nous avons réalisées utilisent le double-puits 1_u . D'autres expériences (que nous n'avons pu jusqu'à présent réaliser par faute de laser disponible) pourront exploiter des niveaux relais parmi les niveaux ro-vibrationnels de l'état 0_g^- corrélé à l'asymptote $6s+6p_{3/2}$. Elles devraient permettre d'utiliser des transitions Raman stimulées pour produire des molécules dans d'autres niveaux ro-vibrationnels de l'état moléculaire fondamental, plus profonds.

⁸A ce jour, nous n'avons pu produire les molécules dans les niveaux moins profondément lié par photoassociation raman stimulée ; nous n'avons pas encore tenté de les produire dans des niveaux plus profondément liés.

4.2.3 Bilan et perspectives

Nous avons donc mis en évidence la formation de molécules froides par photoassociation Raman stimulée dans un piège magnéto-optique. Le nombre de molécules obtenues est comparable à celui obtenu par le schéma "classique" de formation de molécules froides : photoassociation suivie d'émission spontanée. Nous avons détecté environ 50 ions moléculaires correspondant à taux de photoassociation Raman stimulée supérieur à 10^5 s^{-1} . Un tel processus peut être décrit par un modèle perturbatif ; son efficacité suit la loi prédite par la théorie des perturbations au deuxième ordre dans le cas d'une transition à deux photons entre deux niveaux liés, en passant par un niveau virtuel décalé de Δ par rapport à un niveau existant.

Les résultats obtenus ici sont d'une grande importance. D'une part parce qu'une telle expérience ouvre la voie à de nombreuses autres expériences. Obtenir un gaz de molécules froides qui sont toutes dans le même état permettra d'analyser les phénomènes de collisions entre molécules ou entre molécules et atomes. Ces collisions sont jusqu'à présent mal connues. En particulier, il devrait être possible d'observer des relaxations vibrationnelles dues à des collisions. Les molécules formées dans le cas présent sont des molécules de très grande extension spatiale. La taille typique des derniers niveaux vibrationnels dans le potentiel triplet est de plusieurs dizaines d'unités atomiques. La section efficace de collision de ces molécules doit donc être très grande et leur stabilité lors de collisions est une question ouverte. Notons cependant que de telles études nécessitent une détection qui soit spécifique : on doit pouvoir distinguer deux niveaux vibrationnels consécutifs. Notre détection ionique est potentiellement sélective (la largeur du laser d'ionisation $\sim 0,3 \text{ cm}^{-1}$ est inférieure à la séparation entre deux niveaux vibrationnels adjacents). L'analyse des signaux d'ionisation, en balayant la longueur d'onde du laser de photoionisation permettra de la rendre explicitement sélective.

Un des intérêts de l'expérience décrite dans ce paragraphe est que nous avons montré que la photoassociation Raman stimulée dans un piège magnéto-optique est possible. De telles expériences, si elles sont techniquement compliquées, sont donc envisageables dans un dispositif relativement routinier.

Produire des molécules dans un seul niveau ro-vibrationnel est par ailleurs un premier pas vers la réalisation d'un gaz dense et pur de molécules. Une ou plusieurs transitions Raman stimulées doivent permettre d'atteindre le niveau $v=0$. Ceci n'a pas été tenté au cours de ma thèse, par manque de lasers disponibles. Cependant, comme je l'ai montré au paragraphe 4.2.1, un tel mécanisme peut être assez efficace. Piéger des molécules produites par ce mécanisme pourrait représenter les tout premiers pas vers un condensat de Bose-Einstein moléculaire. Nous verrons au prochain paragraphe que nous avons aussi réalisé le piégeage de molécules froides dans un piège magnétique.

Les expériences décrites ne sont donc qu'un premier pas. D'autres étapes sont envisagées. Nous envisageons de réaliser des expériences dans lesquelles nous balayeront la fréquence du laser pulsé qui ionise les molécules produites. L'analyse de tels spectres devrait permettre la mise en oeuvre d'une détection explicitement sélective. On pourra par la suite étudier les phénomènes de collisions

évoqués ci-dessus.

Nous prévoyons d'autre part d'asservir en phase les deux lasers L_1 (photoassociation) et L_2 (émission stimulée), de façon à réduire la largeur des raies obtenues. Ceci doit permettre une spectroscopie des derniers niveaux liés du fondamental plus précise que celle étudiée au chapitre 3. Une telle perspective est par ailleurs extrêmement intéressante puisqu'un dispositif visant à la réalisation d'un condensat atomique de césium est en construction au laboratoire. La photoassociation Raman stimulée au sein d'un condensat en utilisant des lasers corrélés en phase permettra la réalisation d'un laser à molécules.

Enfin, comme nous l'expliquons au paragraphe suivant, un piège magnétique à atomes froids est en cours d'optimisation. Au sein d'un tel piège la densité atomique sera plus élevée. Les processus de photoassociation, et donc de photoassociation Raman stimulée seront donc plus efficaces. On pourra alors obtenir un gaz de molécules pur et relativement dense.

4.3 Réalisation d'un piège magnétique de molécules froides.

Les techniques de piégeage magnétique d'atomes neutres ont connu de grands progrès ces dernières années, sous l'impulsion de la recherche de condensats de Bose-Einstein en partant de pièges magnéto-optiques. Le premier piège magnétique à atomes a été obtenu en 1985 [72]. Les atomes de sodium étaient d'abord refroidis par laser, puis chargés dans un piège magnétique quadrupolaire. Depuis, les techniques se sont améliorées. Les pièges magnétiques sont chargés à partir de pièges magnéto-optiques. De nouveaux types de pièges (de type TOP [74] ou Ioffé-Pritchard [73]) ont été mis au point pour éviter la dépolarisation des atomes lorsqu'ils passent dans la région de champ nul d'un piège quadrupolaire. Les pièges magnétiques ont été réalisés dans des enceintes où la pression est inférieure à 10^{-10} mbar. Toutes ces améliorations ont permis les expériences de refroidissement évaporatif, grâce auxquelles la condensation de Bose-Einstein a été réalisée.

Piéger des atomes neutres a ainsi été rendu possible grâce aux techniques de refroidissement d'atomes par laser. Ces techniques, qui reposent comme on l'a déjà vu sur l'existence d'une transition électronique fermée, n'ont jusqu'à présent pu être généralisées qu'à un petit nombre d'atomes non alcalins, et à aucune molécule. Le piégeage de molécules n'a de fait pu être réalisé que très récemment, dans trois expériences très différentes. La première (en 1998) [70] consiste en un piège magnétique, qui est chargé de molécules de CaH. Celles-ci sont refroidies par collisions avec un gaz tampon de ^3He à 300 mK dans une enceinte cryogénique. L'intérêt principal de cette technique est qu'elle est généralisable à de nombreux autres systèmes. La seconde expérience (en 1998 elle aussi) [69] a été le piégeage de molécules froides de Cs_2 dans un piège optique quasi-électrostatique à CO_2 . Les auteurs piègent les molécules qui sont spontanément produites dans un piège magnéto-optique. Le nombre de molécules piégées est alors très faible (6 en moyenne). Plus récemment, le chargement de molécules polaires (ND_3) a été effectué dans un piège électrostatique après ralentissement des molécules par des champs électriques inhomogènes dépendant du temps [71].

Dans le cas de la molécules de Cs_2 , qui n'est pas polaire, cette dernière technique ne peut être employée. Deux solutions peuvent être envisagées pour piéger les molécules de Cs_2 : le piégeage optique, par piège dipolaire, et le piégeage magnétique. Nous avons testé les deux méthodes. Le piégeage de molécule de Cs_2 par un piège dipolaire utilisant un laser YAG continu n'a pas été couronné de succès (voir [4]). Je décrirai ici le piégeage de molécules froides de Cs_2 dans un piège magnétique quadrupolaire. Ce piégeage est rendu possible par la température très basse des molécules obtenues par photoassociation ; le taux de production de molécules froides est important, ce qui ouvre la voie à l'obtention d'un gaz de molécules froides relativement dense.

4.3.1 Règles de sélection et force de piégeage

Nous présentons ici un calcul simple de l'effet Zeeman sur des molécules représentées dans le cas (a) de Hund. Ces calculs ne prennent en compte que les éléments diagonaux du Hamiltonien. En réalité, des éléments non-diagonaux ont un effet important ; le calcul ici n'est utile que parce qu'il fixe un ordre de grandeur pour les champs nécessaires au piégeage des molécules.

a) Effet Zeeman moléculaire

On s'intéresse ici à la possibilité de piéger magnétiquement des molécules du fondamental. Ces molécules sont bien décrites par le cas a) de Hund. Λ est le projection sur l'axe moléculaire de \vec{L} , Σ , de \vec{S} , et on note $\Omega = \Sigma + \Lambda$. Dans la limite non relativiste, le hamiltonien Zeeman électronique d'une molécule s'écrit de la manière usuelle :

$$H_Z^e = -\mu_B \vec{B} \cdot (\vec{L} + 2\vec{S})$$

$\mu_B = -\frac{eh}{2m_e}$ est le magnéton de Bohr, négatif. De même, l'hamiltonien des noyaux s'écrit :

$$H_Z^N = -\mu_N g_I \vec{B} \cdot (\vec{I}_1 + \vec{I}_2) - g_r \mu_N \vec{B} \cdot \vec{R}$$

$H_Z^N \ll H_Z^e$ car $\left| \frac{\mu_N}{\mu_B} \right| = \frac{m_e}{m_N} \ll 1$. Nous négligerons dans notre calcul l'effet Zeeman nucléaire. On note $\vec{B} = B \vec{e}_Z$, où \vec{e}_Z est un vecteur fixe dans le référentiel du laboratoire. Le calcul consiste à évaluer :

$$\langle J, M_J, m_J, \alpha | (\vec{L} + 2\vec{S}) \vec{e}_Z | J, M_J, m_J, \alpha \rangle$$

M_J et $m_J (= \Omega)$ sont les projections de \vec{J} respectivement sur l'axe \vec{e}_Z et sur l'axe moléculaire \vec{e}_z ; α représente les variables purement électroniques (ne pas confondre avec les notations déjà employées pour décrire le continuum d'états de la photoassociation). Nous rappelons ici la formule A.15, concernant l'interaction d'une molécule avec un champ externe. Celle-ci s'écrit :

$$\langle J', M_{J'}, m_{J'}, \alpha' | f_q^k | J, M_J, m_J, \alpha \rangle = i^{J-J'} (-1)^{m_{J'}-M_{J'}} \sqrt{(2J+1)(2J'+1)} \quad (4.11)$$

$$\sum_{q'} \begin{pmatrix} J & k & J' \\ m_J & q' & -m_{J'} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} J & k & J' \\ M_J & q & -M_{J'} \end{pmatrix} \langle \alpha | f_{q'}^k | \alpha \rangle$$

Dans ce cas, f_q^k est l'opérateur de rang 1 $(\vec{L} + 2\vec{S}) \cdot \vec{e}_z$. L'équation 4.11 s'écrit ici :

$$\langle J, M_J, m_J, \alpha | (\vec{L} + 2\vec{S}) \cdot \vec{e}_z | J, M_J, m_J, \alpha \rangle = (-1)^{m_J-M_J} (2J+1) \frac{M_J m_J}{J(J+1)(2J+1)}$$

$$(-1)^{2J-M_J-m_J} \langle \alpha | (\vec{L} + 2\vec{S}) \cdot \vec{e}_z | \alpha \rangle$$

$\langle \alpha | (\vec{L} + 2\vec{S}) \cdot \vec{e}_z | \alpha \rangle$ est l'effet dans le repère moléculaire sur les variables électroniques, qui est $\Lambda + 2\Sigma$. On trouve ainsi le résultat final⁹ :

$$\Delta E(J, M_J, \Lambda, \Sigma, \Omega) = -\frac{(\Lambda + 2\Sigma)\Omega}{J(J+1)} M_J \mu_B B \quad (4.12)$$

b) Piégeage de molécules

Dans le cas où $J=0$, la molécule n'a pas de moment permanent, et ne ressent pas d'effet Zeeman. Dans le cas où $J \neq 0$, la formule 4.12 s'applique. On considérera des molécules du fondamental. Pour celles-ci, asymptotiquement liées à la limite $6s+6s$, on a $\Lambda = 0$. Pour le potentiel singulet, on a $\Sigma = 0$, si bien qu'aucun effet Zeeman n'est attendu pour les molécules du fondamental dans l'état singulet. Par contre, pour l'état triplet ($S=1$), si on a $\Sigma = \Omega = 1$, alors :

$$\Delta E = -\frac{2}{J(J+1)} M_J \mu_B B$$

Dans le cas où $M_J = J$, on a

⁹Notons que ce résultat s'obtient également par le raisonnement plus intuitif suivant. D'après le théorème de projection[66], conséquence du théorème de Wigner-Eckart dans le sous-espace déterminé par les $2J+1$ vecteurs $\{|J, M_J\rangle, M_J = J, J-1, \dots, -J\}$, les vecteurs \vec{L} ou \vec{S} (notés génériquement \vec{V}) sont proportionnels à \vec{J} .

$$\vec{V} = \frac{\langle \vec{V} \cdot \vec{J} \rangle_{J, M_J \Omega}}{\langle \vec{J}^2 \rangle_{J, M_J \Omega}} \vec{J}, \text{ avec } \vec{V} \cdot \vec{J} = \frac{1}{2} (V_+ J_- + V_- J_+) + V_z J_z$$

où V_z, J_z sont les projections de \vec{V} et \vec{J} sur l'axe moléculaire. On a donc :

$$\langle J, M_J, \Omega | (\vec{L} + 2\vec{S}) \cdot \vec{e}_z | J, M_J, \Omega \rangle = \frac{\langle J | L_z J_z + 2S_z J_z | J \rangle}{J(J+1)} \langle J | \vec{J} \cdot \vec{e}_z | J \rangle = \frac{(\Lambda + 2\Sigma)\Omega}{J(J+1)} M_J$$

$$\Delta E = -\frac{2}{(J+1)}\mu_B B$$

Si B dépend de la position \vec{x} , il se crée un potentiel qui dépend de \vec{x} ; on peut utiliser un tel potentiel pour piéger des molécules. Nous décrirons au paragraphe 4.3.2 la configurations de champs choisie dans notre cas. Notons cependant dès à présent qu'il s'agit principalement de compenser la gravité. Pour ce faire, il convient d'obtenir un gradient de champ magnétique tel que :

$$\frac{2}{(J+1)}\mu_B B' z = m_{C_{s_2}} g z \quad (4.13)$$

Piéger des molécules est donc d'autant plus facile que J est faible. Notons dès à présent que ce résultat ne correspond pas aux premières observations que nous avons réalisées. Nos observations montrent en effet qu'on piège les molécules dans l'état triplet, indépendamment de la valeur de J . Des calculs, réalisés après la rédaction de ce chapitre, montrent que pour piéger les molécules que nous produisons dans l'état triplet, le gradient de champ magnétique nécessaire est le gradient de champ magnétique nécessaire au piégeage d'atomes dans l'état $F=4$, $m_F = 4$. C'est-à-dire que tout se passe comme si les deux atomes de la molécules réagissaient indépendamment l'un de l'autre au champ magnétique. Ceci s'explique probablement par le fait que les molécules sont des molécules d'assez grande élongation internucléaire, si bien que l'effet Zeeman sur les deux atomes s'ajoute simplement.

C'est cependant d'après les prédictions de l'équation 4.13 que nous avons construit le piège magnétique que je décris ici. D'après l'équation 4.13, le gradient de champ magnétique nécessaire pour piéger des molécules de $J = M_J = 1$ est de 45 Gauss/cm. Il est réalisé le long de l'axe z , comme il sera expliqué au paragraphe 4.3.2, par une paire de bobines en position anti-Helmholtz, qui assure aussi un gradient (deux fois moindre) le long des axes x et y . Le piège est donc un piège quadrupolaire.

Dans cette situation on peut piéger les molécules pour lesquelles $M_J = J = 1$. Leur moment de rotation est alors aligné sur l'axe du champ magnétique. Cet axe étant variable suivant la position, et les molécules ayant un certain mouvement, elles ne peuvent être piégées dans le piège quadrupolaire que si leur axe de rotation suit adiabatiquement le champ magnétique. Les molécules précessent autour du champ magnétique à la fréquence de Larmor, $\omega_L = \frac{2\mu_B B}{(J+1)\hbar} = \frac{\mu_B B' z}{\hbar}$, dans le cas où $J = 1$. La condition pour que le moment des molécules suive adiabatiquement les lignes de champ est que la fréquence de Larmor doit être beaucoup plus grande que la fréquence instantanée du mouvement moléculaire dans le piège ω_P . Cette fréquence est l'inverse du temps caractéristique pendant lequel la molécule, au voisinage de l'origine O , voit le champ magnétique tourner de π . Si la molécule est à une distance d de l'origine, $\omega_P \sim d/v$, où v est la vitesse de la molécule.

La fréquence de Larmor dépend de la position dans le piège. La fréquence de Larmor est supérieure à ω_P tant que

$$d_{\max} > \left(\frac{\hbar v}{\mu_B B'} \right)$$

Ceci correspond, dans le cas d'un gradient de 22,5 Gauss/cm, et pour $v \simeq 10 \text{ cm/s}$ à un rayon de $2 \mu\text{m}$. A l'intérieur de ce rayon, les molécules peuvent se dépolariser et être expulsées du piège. Le taux de perte dans le piège à cause de ce processus (transitions de Majorana) est, par molécule, $\frac{1}{l^3} v \pi d_{\max}^2 \simeq 1,6 \cdot 10^{-3}$ (où l^3 est le volume de piégeage des molécules) ce qui correspond à un temps de vie pour le piège ainsi formé de 630 s. Ce temps est très long, si bien que les transitions de Majorana seront complètement négligeable pour les pièges que nous décrivons plus bas. Ce temps est particulièrement élevé dans notre cas car le volume de piégeage est très grand.

Pour éviter cette source de pertes dans un piège magnétique quadrupolaire, plusieurs solutions ont été utilisées dans le cas de pièges magnétiques à atomes. Les plus classiques sont le TOP ([74]) et le piège de Ioffé-Pritchard ([73]). Nous avons pour notre part choisi de ne pas nous préoccuper pour l'instant de ce problème qui apparaît à des échelles de temps qui avoisinent la minute; ces échelles de temps dépassent largement les temps de vie attendus à cause des collisions avec le gaz résiduel. Le piège que nous décrivons dans cette section est donc un piège quadrupolaire simple.

c) Règles de sélection

Comme on l'a expliqué plus haut on cherche à piéger des molécules telles que $J'=1, M_{J'} = 1$, dans l'état triplet du fondamental. Ces molécules sont formées par désexcitation radiative de molécules photoassociées. Les molécules piégées étant de caractère u (puisqu'appartenant à l'état $^3\Sigma_u^+$), il convient de photoassocier un état g. Il faut d'autre part choisir le niveau photoassocié de façon à ce que la désexcitation radiative produise des molécules assez profondément liées dans l'état fondamental, qui soient bien décrites dans le cas a) de Hund en négligeant la structure hyperfine. Pour les expériences décrites ici, il a été choisi de photoassocier les atomes dans l'état 0_g^- sous $p_{3/2}$ et le niveau vibrationnel $v=6$. Ce niveau est choisi pour son bon rapport de branchement vers les niveaux liés du fondamental. Nous avons par ailleurs choisi de photoassocier la raie rotationnelle $J=0$.

Une molécule photoassociée dans $0_g^-, J = 0, M_J = 0$ se désexcite dans le $^3\Sigma_u^+$. Les règles de sélection à la désexcitation s'expriment grâce à la formule 4.11, avec l'opérateur $\vec{\mu} \cdot \vec{\epsilon}$. Il faut intégrer le résultat sur toutes les directions possiblee $\vec{\epsilon}$ pour l'émission spontanée.

$$\begin{aligned} \langle J', M_{J'}, m_{J'}, \alpha' | \vec{\mu} \cdot \vec{\epsilon} | J, M_J, m_J, \alpha \rangle &= \langle J', M_{J'}, m_{J'}, \alpha' | \sum_q (-1)^q \mu_q \epsilon_{-q} | J, M_J, m_J, \alpha \rangle \\ &= i^{J-J'} (-1)^{m_{J'}-M_{J'}} \sqrt{(2J+1)(2J'+1)} \sum_{qq'} \langle \alpha | \mu_{q'} | \alpha \rangle (-1)^q \epsilon_{-q} \\ &\quad \begin{pmatrix} J & k & J' \\ m_J & q' & -m_{J'} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} J & k & J' \\ M_J & q & -M_{J'} \end{pmatrix} \end{aligned} \quad (4.14)$$

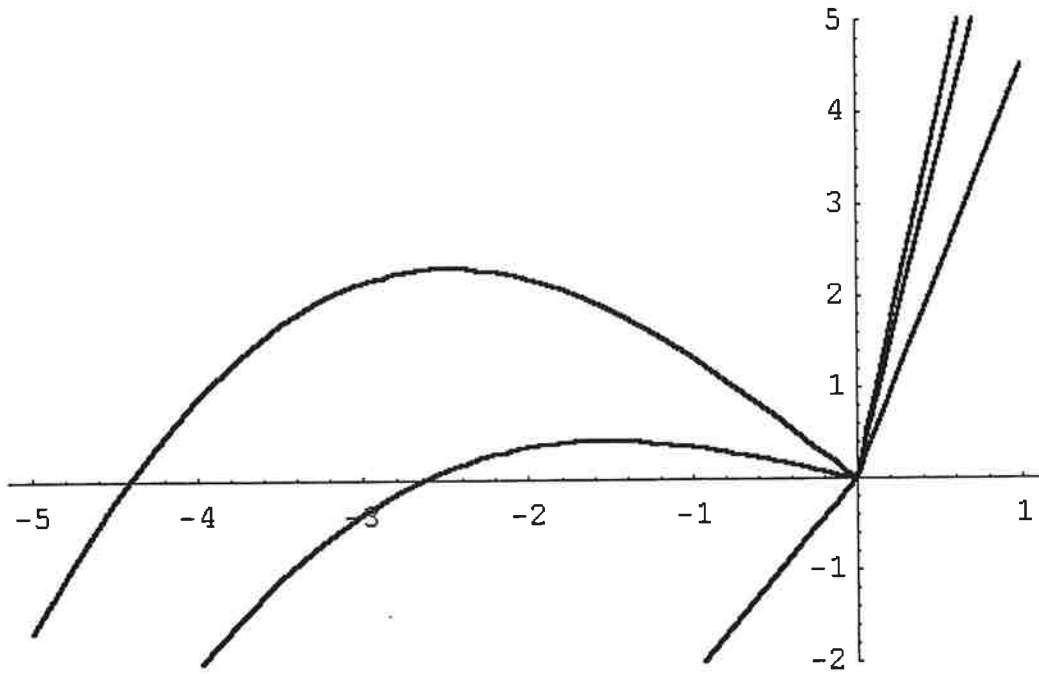


FIG. 4.23: Potentiel de piégeage des molécules, tenant compte du champ magnétique et de la gravité; la configuration de bobines employée est décrite dans le texte. Les courants utilisés ici sont respectivement 6A, 19 A et 24 A. Les énergies sont données en mK, et les distances en cm.

$$P = \frac{\frac{1}{3}(\mu_1^2 + \mu_{-1}^2)}{(\mu_1^2 + \mu_{-1}^2 + \mu_0^2)} = \frac{1}{9}$$

A courte distance, cependant, le moment dipolaire μ_0 tend vers 0 et les moments $\mu_{\pm 1}$ sont égaux, si bien que la probabilité de se désexciter dans des états que l'on peut piéger vaut :

$$P = \frac{1}{3}$$

Au total, dans un piège magnétique compensant la gravité pour les molécules de $J=1$, $M_J = +1$, on s'attend, après photoassociation du niveau rovibrationnel $v=6$, $J=0$ de l'état 0_g^- , à piéger entre 1/9 et 1/3 des molécules froides formées.

4.3.2 Mise en oeuvre du dispositif

a) Simulations de champs magnétiques

Dans une première approximation, les calculs analytiques, qui donnent pour une bobine le champ magnétique sur l'axe en fonction du courant et du nombre de spires suffisent à évaluer quel dispositif est nécessaire pour le piégeage des molécules, c'est-à-dire principalement pour compenser

la gravité. C'est un résultat très classique d'électromagnétisme classique qu'une bobine de N tours de rayon R , parcourue par un courant I , produit un champ magnétique le long de son axe (Oz), qui vaut,

$$B(z) = \frac{\mu_0 N I}{2R} \frac{1}{\left(1 + \frac{z^2}{R^2}\right)^{3/2}}$$

Il se crée un gradient au centre de symétrie du système lorsque deux bobines identiques sont montées en configuration anti-Helmholtz (distance entre les bobines égale au rayon des bobines). Ce gradient est maximal suivant (Oz), et deux fois moindre suivant les deux axes horizontaux x et y .

On obtient alors pour des bobines de 156 tours de rayon moyen 8 cm placées en configuration anti-Helmholtz, pour $I=19A$ (c'est-à-dire $NI=3000$), un gradient de champ magnétique de plus de 50 Gauss par centimètre, suffisant pour piéger des molécules de Cs_2 $J' = 1, M_{J'} = 1$. J'ai conçu et construit ces bobines au cours de ma thèse, et elles ont remplacé les anciennes bobines jusque-là utilisées pour créer le gradient de champ magnétique du piège magnéto-optique.

Pour évaluer la profondeur du puits de potentiel créé, ainsi que sa forme suivant les trois axes au voisinage de 0, des calculs ont été effectués grâce au logiciel Mathematica, en utilisant les formules de la référence [68]. Celles-ci permettent le calcul des composantes du champ magnétique pour les trois directions de l'espace, en utilisant des intégrales elliptiques. La figure 4.23 donne le potentiel vu par une molécule dans l'état triplet, $J=1, M_J=1$. Le potentiel est créé par deux bobines en configuration anti-Helmholtz, de 156 spires et de rayon 8 cm, espacées d'une distance de 8 cm. Il est donc dans ce cas possible de créer un potentiel profond de plusieurs centaines de microKelvins, en utilisant un courant de l'ordre de 20 A. Une telle figure permet par ailleurs d'évaluer la taille du piège magnétique obtenu. Pour 19 A, une température moléculaire de $100 \mu K$ correspond à une extension spatiale selon (Oz) dans le piège de 3mm. Pour 24 A, une température de $100 \mu K$ correspond à une taille verticale du piège de 1mm. On peut par ailleurs évaluer la taille du piège selon les axes horizontaux : un gradient latéral de 25 Gauss/cm correspond à une extension spatiale de $600 \mu m$.

b) Cahier des charges et mise en oeuvre du dispositif

Le travail de construction des nouvelles bobines de champ magnétique en vue de la réalisation d'un piège magnétique a constitué une partie importante de la partie "développement technique" de ma thèse. L'objectif était de produire un gradient de plus de 50 Gauss par centimètre au centre de l'enceinte. Comme nous l'avons vu au paragraphe précédent, 50 Gauss par centimètre correspond à $NI \simeq 3000$.

Les paramètres à prendre en compte sont les suivants :

i) **Géométrie de l'enceinte.** Pour des raisons d'encombrement spatial, le rayon des bobines doit être strictement compris entre 6 et 9,75 cm. Le rayon des bobines est donc un paramètre fixé,

autour de $R_0 = 8$ cm. Par ailleurs, la distance entre les bobines doit être comprise entre 7 et 9 cm, à nouveau à cause de l'encombrement.

ii) Nombre de tours nécessaires Comme nous l'avons au paragraphe 4.3.2, 50 Gauss par centimètre correspond dans ces conditions à $NI \simeq 3000$. Le nombre de tours est donc un paramètre qui dépend de l'alimentation en courant à notre disposition.

iii) Alimentation en courant Nous disposons d'une alimentation de puissance, 32V, 160 A. Comme on voit, nous sommes limités en tension plus qu'en courant. La résistance d'une bobine composée d'un fil de cuivre de longueur l et de section S , vaut :

$$R = \rho \frac{l}{S}$$

où ρ est la résistivité du cuivre ($1,7 \cdot 10^{-8}$ SI à 300 K). Dans ces conditions, le NI_{\max} maximal qu'on peut atteindre avec cette alimentation (limitée en tension par U) est :

$$NI_{\max} = N \frac{U}{R} = N \frac{SU}{\rho 2\pi R_0 N} = \frac{\phi^2}{8\rho R_0}$$

On voit donc que le champ maximal atteint est entièrement déterminé par ϕ , qui est le diamètre du fil de cuivre utilisé. $NI=3000$ correspond à $\phi = 1$ mm. Nous avons choisi d'utiliser $\phi = 1,5$ mm, pour pouvoir obtenir un piège magnétique comprimé.

iv) Nombre de tours Le nombre de spires de chaque bobine est limité par l'encombrement spatial. On a intérêt à obtenir dans un volume donné le plus grand nombre de spires possible, de manière à employer le courant le plus faible possible. L'électronique nécessaire à la coupure de courant très élevés est en effet plus contraignante que celle destinée à contrôler des courants de quelques dizaines d'ampères. Le nombre de tours effectivement effectués dans chaque bobine est dans notre cas de 156. La résistance de chaque bobine est de l'ordre de $0,75 \Omega$.

v) Refroidissement des bobines Le courant utile à l'obtention du piège magnétique est alors de 20 A environ. La puissance dissipée par effet Joule dans chaque bobine est de 300 W. Il est donc nécessaire de refroidir les bobines. Pour cela, les spires sont réalisées à l'intérieur d'une carcasse en laiton de 1,5 mm d'épaisseur, et enduites de graisse thermique. Le laiton a été choisi pour sa bonne capacité calorifique, et son coût avantageux comparé au cuivre. La carcasse de cuivre est refroidie par contact avec des tuyaux en cuivre où coule de l'eau (environ 1 litre par minute). L'épaisseur de 1,5 mm permet une bonne conduction thermique. Des tests préliminaires ont montré, conformément aux attentes, que si la carcasse du laiton a une épaisseur trop faible, le refroidissement n'est pas efficace.

L'échauffement des bobines est testé par mesure de la résistance effective en fonction du courant appliqué. Aucun échauffement n'est observé jusqu'à $I=20$ A.

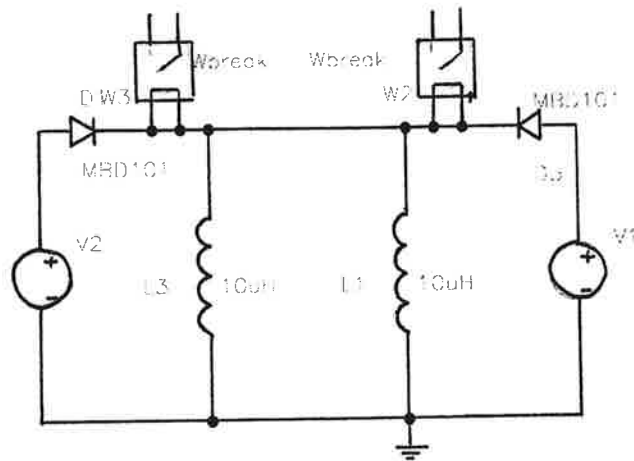


FIG. 4.24: Dispositif utilisé pour la coupure de courant ou l'augmentation de courant dans les bobines réalisant le gradient du piège magnétique. L'intérêt principal de ce montage est sa simplicité et sa robustesse. Son inconvénient est qu'il ne permet pas d'optimiser les temps de coupure des champs magnétiques. Dans la figure, $L_{1,3}$ représentent les deux bobines, $V_{1,2}$ deux alimentations, $D_{1,3}$ deux diodes, et $W_{1,2}$ deux relais statiques.

vi) **Dispositif électronique** Le dispositif électronique réalisé est symbolisé sur la figure 4.24. Les bobines sont mises en parallèle de manière à diminuer leur résistance globale. Un autre avantage de ce montage en parallèle est qu'il compense toute erreur dans le dénombrement des spires de chaque bobine, puisque le paramètre NI pour chaque bobine est nécessairement le même d'après la loi d'Ohm. Les diodes sont des doubles diodes visant à protéger les deux alimentations en courant de toute surtension et de tout courant inverse. Il a été choisi de couper (ou brancher) les courants avec des relais statiques (CRYDOM) de manière à éviter tout problème de masse, qui apparaîtrait avec l'utilisation de transistors. Chaque relais statique est par ailleurs protégé par une varistance pour le protéger des surtensions Ldi/dt .

Un soin tout particulier a été apporté dans le choix des composants de ce dispositif. Nous avons en particulier cherché à limiter les chutes en tension que chaque composant entraîne de manière à maximiser le courant maximal possible.

4.3.3 Piège magnétique de molécules froides

a) Effet de piégeage

En utilisant le matériel décrit plus haut, nous avons au cours de ma thèse réalisé le piégeage magnétique de molécules dans l'état fondamental triplet. L'expérience, dont la séquence temporelle est symbolisée sur la figure 4.25, consiste à photoassocier pendant 21 ms les atomes du piège magnéto-optique dans l'état 0_g^- ($v = 6, J = 0$), tout en comprimant le champ magnétique. Puis

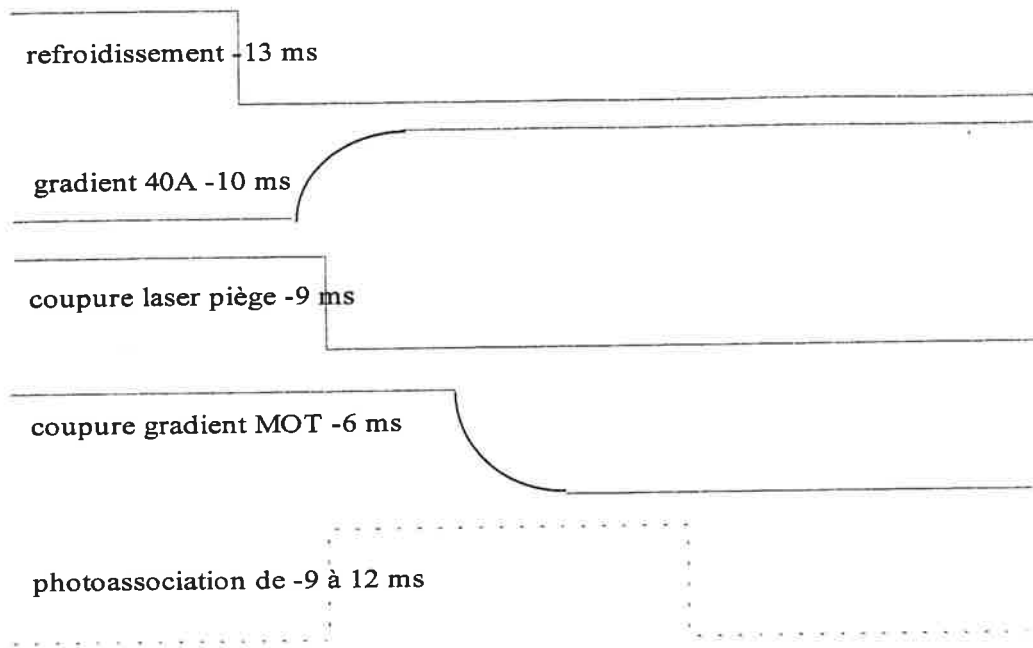


FIG. 4.25: Exemple de séquence temporelle utilisée pour réaliser le piégeage magnétique des molécules. La cadence de l'expérience est de 1 Hz. Les molécules sont détectées par photoionisation : on applique le laser d'ionisation un délai variable après la fin du pulse de photoassociation. On peut ainsi détecter des molécules pendant nettement plus de 100 ms.

on ionise les molécules après un délai qu'on fait varier entre 0 et 100 ms. La figure 4.26 montre les premiers résultats obtenus. Le graphe a) est réalisé en coupant le champ magnétique après photoassociation. Le graphe b) est réalisé en appliquant un gradient de 45 Gauss/cm. La flèche "coupure laser PA" montre que quand le laser de photoassociation n'est pas appliqué, aucune molécule n'est détectée au niveau du piège pour des temps supérieurs à 90 ms. Cela prouve que les molécules détectées sont des molécules dues au laser de photoassociation. Elles sont alors piégées par le gradient de champ magnétique.

b) Temps de vie du piège à molécules

Une analyse précise de la dépendance temporelle du signal ionique, analysant la courbe de décroissance du signal Cs_2^+ en échelle logarithmique sur plusieurs centaines de millisecondes, fait apparaître qu'après une première décroissance du signal rapide, le nombre de molécules détectées décroît avec un temps caractéristique de 1 seconde. La première décroissance rapide est attribuée à l'expulsion des molécules dans l'état $M_{J'} = -1$ et à la chute des molécules dans l'état $M_{J'} = 0$, et/ou $\Omega = 0$, et la dernière étape correspond au piégeage des molécules dans l'état de rotation $J' = 1, M_{J'} = +1$.

Le temps de vie du piège magnétique à molécules que nous avons réalisé est de l'ordre de la seconde ; nous pensons que la durée de vie τ du piège est principalement limitée par les collisions des molécules piégées avec les atomes de césium (froids ou à température ambiante). Si on note

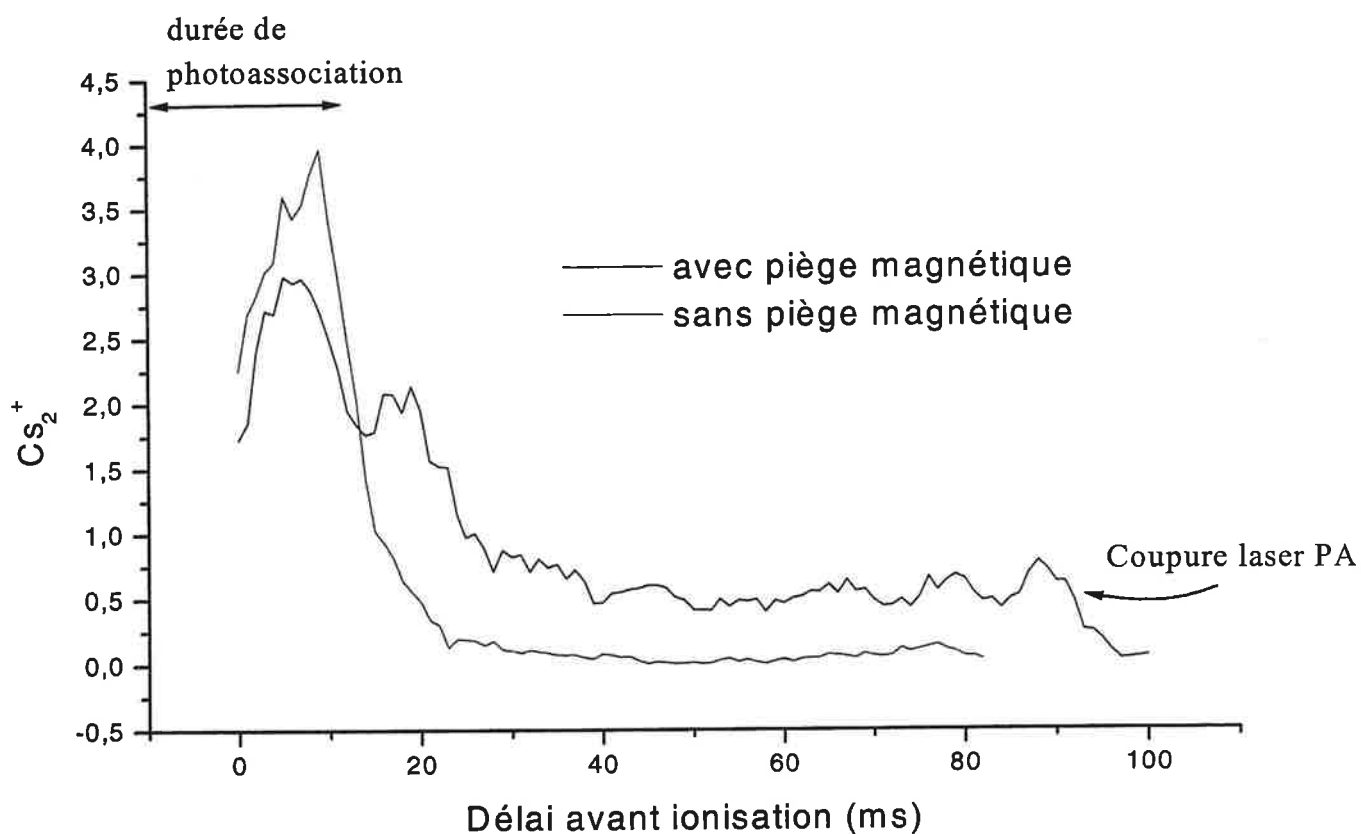


FIG. 4.26: Nombre de molécules détectées en fonction du délai entre leur formation et leur détection. Cette figure montre le piégeage magnétique de molécules froides de Cs_2 . La durée de vie mesurée du piège obtenu est de l'ordre de la seconde. La séquence temporelle utilisée est montrée figure 4.25 (l'origine des temps est identique pour les deux figures). Ainsi, le laser de photoassociation n'est présent que jusqu'à $t=12$ ms. La flèche "coupure laser PA" montre que quand le laser de photoassociation n'est pas appliqué, aucune molécule n'est détectée : le signal après $t=92$ ms représente donc le zéro du signal.

σ_{Cs-Cs_2} la section efficace de collision atome-molécule, le temps de vie du piège magnétique doit être de l'ordre de :

$$\tau = \frac{1}{\sigma_{Cs-Cs_2} \sqrt{\frac{k_B T}{m_{Cs}}} n_{Cs}}$$

On estime que la densité n_{Cs} d'atomes du gaz résiduel vaut entre $5 \cdot 10^7$ et 10^8 cm^{-3} (voir paragraphe 1.1.2). Ces atomes sont à 300 K. La densité d'atomes froids à $100 \mu K$ présents dans le piège magnétique est probablement assez faible : le piège magnétique à molécules ne piège que les atomes qui sont dans les sous-niveaux hyperfins $m_F = 4$ ou 3 . On estime que la densité atomique dans le piège ainsi réalisé est de l'ordre de 10^{10} cm^{-3} . Dans ces conditions, du fait de la faible vitesse des atomes froids, les collisions avec les atomes de césium froids sont environ dix fois plus rares que celles avec les atomes du gaz résiduel, si bien que le temps de vie du piège est probablement limité par les collisions avec les atomes du gaz résiduel. Le temps de vie du piège magnétique à molécules que nous avons obtenu donne par conséquent des renseignements sur la section efficace de collision atome-molécule ; on obtient :

$$\sigma_{Cs-Cs_2} \approx 10^{-16} \text{ m}^2.$$

Notons qu'il s'agit d'une estimation très approximative, du fait de notre connaissance peu précise de la densité d'atomes du gaz résiduel. La section efficace obtenue (et donc le temps de vie observé) est proche de la section efficace pour des collisions entre atomes dans leur état fondamental (voir par exemple la thèse d'Andréa Fioretti [82]). Il est probable que d'autres phénomènes doivent en outre être pris en compte pour comprendre la limitation de la durée de vie de notre piège à molécule. On peut penser par exemple à la durée de vie radiative de l'état triplet, qui comprend une faible composante Π , du fait de l'interaction spin-orbite du deuxième ordre. Ceci fait l'objet de calculs au laboratoire.

c) Densité du piège

On peut par ailleurs évaluer le nombre de molécules piégées, ainsi que la densité de piège. Le taux de formation de molécules froides lorsqu'on photoassocie dans le niveau $v=6$ de l'état 0_g^- est de l'ordre de 1 million par seconde. On photoassocie pendant environ 20 ms, et, d'après les calculs menés précédemment, on garde environ $1/5$ des molécules froides produites. On s'attend donc à piéger de l'ordre de 4000 molécules. Le signal observé Cs_2^+ est en bon accord avec cette évaluation. Si ces molécules sont stockées dans un volume de 1 mm^3 environ, la densité est de l'ordre de $5 \cdot 10^6 \text{ cm}^{-3}$.

On voit donc qu'il s'agit pour l'instant de très basses densités. Les résultats que je présente ici sont cependant très préliminaires, et ne constituent qu'un premier pas. De nombreuses expériences sont amenées à être développées au Laboratoire Aimé Cotton, qui seront probablement détaillées dans la thèse à venir de Nicolas Vanhaecke. Dans le but d'étudier des propriétés collisionnelles de

molécules, ou dans la perspective de la réalisation d'un condensat de Bose-Einstein de molécules, en suivant les mêmes étapes que celles qui ont été employées pour la réalisation de condensats atomiques, il est nécessaire d'obtenir un piège à molécules plus dense. On pourra par exemple comprimer plus le gradient de champ magnétique. Ceci est permis dans la configuration actuelle du dispositif. Pour augmenter sensiblement le nombre de molécules piégées, on pourra en outre soit photoassocier plus longtemps, soit photoassocier plus efficacement. Photoassocier plus efficacement signifie dans notre cas photoassocier dans un dispositif atomique plus dense. Dans cette perspective, l'optimisation d'un piège magnétique à atomes, en terme de nombre d'atomes piégés et de densité est une perspective intéressante.

4.3.4 Perspectives

Espèce piégée (masse atomique)	Type de piège	ΔU	T	n (cm ⁻³)	($n\Lambda^3$) ¹⁰	τ
[Notre travail]Cs ₂ (266)	magnétique	1 mK	100 μ K	5 10 ⁶	2 10 ⁻¹¹	1 s
[69]Cs ₂ (266)	optique	350 μ K	100 μ K	7 10 ⁴	3 10 ⁻¹³	0,5 s
[70]CaH (41)	magnétique	2 K	400 mK	8 10 ⁷	2 10 ⁻¹⁴	0,5 s
[71]ND ₃ (20)	électrostatique	0,35 K	< 0,35 K	10 ⁶	10 ⁻¹⁵	0,24 s

Le tableau précédent fait le point des quatre expériences de piégeage moléculaire déjà réalisées. ΔU est la profondeur du puits pour chaque expérience, n la densité moléculaire, et τ la durée de vie du piège. Les techniques de piégeage employées diffèrent beaucoup, ainsi que le type de molécules dont il s'agit. Notons que les chiffres présentés pour le cas du césium pour notre expérience sont des chiffres préliminaires. En particulier, en augmentant le temps de photoassociation et en modifiant les conditions de l'expérience, la densité obtenue pourrait être très supérieure à 10⁷ cm⁻³ et la densité dans l'espace des phases supérieure à 10⁻¹¹. Notons aussi un autre grand avantage de la production de molécules froides *via* photoassociation, démontré par nos expériences de photoassociation Raman stimulée : ces expériences permettront de piéger des molécules qui seront toutes dans le même état quantique interne.

Nous avons donc construit un nouvel outil, qui devrait permettre de nombreuses expériences, concernant en particulier l'étude des collisions entre molécules ou entre molécules et atomes, ou l'optique moléculaire. La perspective de piéger des molécules dans un seul état quantique interne est maintenant une perspective à court terme qui pourrait permettre d'atteindre pour les molécules le stade qui a été atteint pour les atomes au début des expériences de refroidissement évaporatif visant à la condensation de Bose-Einstein.

¹⁰C'est moi qui calcule la densité dans l'espace des phases, d'après les données présentées par les auteurs. Notons que les molécules ne sont pas dans un seul état quantique interne.

4.4 Conclusion

Comme il a été montré au cours des thèses de Cyril Drag [4] et Daniel Comparat [7], le césium est un élément très favorable pour la production de molécules froides, du fait de l'existence, pour les états moléculaires excités, d'une structure de potentiel en double-puits. Ces molécules sont bien décrites par le concept de "molécules purement longue distance". L'efficacité de la production de molécules froides par désexcitation radiative des molécules excitées repose sur le fait que les puits à longue distance présentent à distance intermédiaire une barrière de répulsion douce, ce qui augmente la probabilité de présence des atomes de la molécule excitée à distances plus courtes, et donc le facteur la probabilité de désexcitation vers des niveaux liés de l'état fondamental. J'ai évoqué dans ce mémoire d'autres mécanismes pour la formation de molécules froides, qui tous augmentent la partie "courte distance" de la fonction d'onde des molécules photoassociées. En particulier, l'état 0_u^+ corrélé à la limite de dissociation $6s+6p_{1/2}$ est couplé à courte distance par couplage radial avec l'état de même symétrie 0_u^+ corrélé à $6s+6p_{3/2}$. La probabilité de désexcitation vers le fondamental des molécules dans cet état est assez importante, ce qui conduit à l'observation de molécules froides. Ce nouveau mécanisme est très intéressant car il devrait se retrouver dans de nombreux autres systèmes.

La détection des molécules est réalisée par ionisation (schéma REMPI), qui offre l'avantage d'une grande sensibilité (il est possible de détecter un ion). Cependant, les molécules sont dans plusieurs niveaux de rotation-vibration, et le caractère résonant de la détection rend celle-ci assez peu efficace (de 3 à 5%). Cet inconvénient disparaît dans le cas de la photoassociation Raman stimulée, car toutes les molécules sont alors produites dans le même niveau. L'efficacité de détection est dans ce cas de l'ordre de 20 %. Il a été remarqué, cependant, que lorsque les molécules sont produites dans le tout dernier niveau (et l'avant dernier éventuellement) de l'état fondamental, l'efficacité de détection devient quasi-nulle. Il serait intéressant de détecter ces molécules, qui sont probablement produites dans de nombreux schémas de photoassociation. Il s'agit de molécules assez particulières, puisque leur extension spatiale varie typiquement entre 50 et 100 a_0 .

Nous avons montré que la température des molécules formées, mesurée dans la plage 20-200 μK correspond à celle des atomes dans le piège magnéto-optique. Nous avons estimé le taux de formation de molécules froides à plusieurs millions par seconde dans nos conditions expérimentales. Ces molécules, froides selon le degré de translation, ne le sont pas selon les degrés de liberté de rotation et de vibration. Les molécules photoassociées se désexcitent dans un grand nombre de niveaux ro-vibrationnels, selon une distribution statistique déterminée par les facteurs de Franck-Condon.

Nous avons démontré par détection directe des molécules formées l'efficacité de la méthode de photoassociation Raman stimulée, qui permet l'obtention d'un gaz de molécules qui sont toutes dans un seul et même niveau de rotation-vibration : dans ce processus, des paires d'atomes sont photoassociées vers un niveau moléculaire excité, dont la désexcitation est stimulée par un laser vers un niveau lié bien déterminé de l'état moléculaire fondamental. On peut alors dire que les

molécules produites sont froides suivant tous les degrés de liberté (translation, rotation, vibration). Nous avons montré que le taux de photoassociation Raman stimulée dans notre cas est de l'ordre de 10^5 molécules par seconde. Ce processus est bien décrit par un modèle perturbatif, et son efficacité est presque du même ordre de grandeur que le taux de formation de molécules froides par photoassociation suivie d'émission spontanée. En utilisant d'autres lasers, on doit pouvoir produire ces molécules de manière contrôlée dans n'importe quel niveau, en particulier dans l'état $v=0, J=0$. On pourra parler de molécules froides suivant tous les degrés de liberté (translation, rotation, et vibration).

Finalement, nous avons réalisé le piégeage de molécules froides dans un piège magnétique quadrupolaire. Nous pouvons garder les molécules pendant un temps de l'ordre de la seconde. Il devient maintenant possible d'envisager l'accumulation des molécules formées dans un piège quadrupolaire.

Les différentes expériences détaillées dans ce chapitre ont été réalisées indépendamment les unes des autres. La prochaine grande étape sera de réunir ces expériences en une seule : produire, de façon très efficace dans un piège magnétique, des molécules qui soient toutes dans le même niveau ro-vibrationnel, par photoassociation Raman stimulée. Alors, on pourra commencer à envisager l'obtention d'un nuage froid et dense de molécules toutes dans le même état. Il paraît raisonnable d'obtenir sans changement majeur de l'expérience, un piège magnétique à atomes de densité (10^{12} cm^{-3}), à une température de $20 \mu\text{K}$ et donc des taux de formation de molécules froides par photoassociation Raman stimulée de $5 \cdot 10^6$ molécules par seconde (20 fois le taux actuel). On pourra alors obtenir environ 5 millions de molécules froides, soit un densité de molécules de l'ordre de 10^{11} cm^{-3} . La densité dans l'espace des phases serait alors de 10^{-6} . C'est-à-dire qu'on peut approcher les conditions où commencent usuellement les expériences de refroidissement évaporatif pour l'obtention d'un condensat de Bose-Einstein atomique. La question du comportement des molécules lors de collisions moléculaires reste posée. Ce scénario est une voie possible vers la condensation de Bose-Einstein de molécules (une autre voie très intéressante est de produire les molécules à partir d'un condensat atomique). Notons que pour aller dans ce sens, un autre dispositif expérimental devra être conçu, le vide courant dans notre dispositif ne permettant pas des temps de vie de piégeage magnétique supérieurs à la seconde. Notons de plus que le piégeage magnétique ne permet pas le piégeage de l'état fondamental singulet. Piéger cet état nécessitera la mise en oeuvre d'un piège optique, par exemple en utilisant un laser à CO_2 .

CONCLUSION

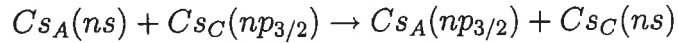
Plusieurs résultats concernant les collisions et les interactions entre atomes froids ont été décrits dans ce manuscrit. Nous avons tout d'abord montré qu'un gaz d'atomes froids d'un piège magnéto-optique excités dans des niveaux de Rydberg supérieurs à 30 est instable pour des densités supérieures à environ 10^9 cm^{-3} . En quelques microsecondes, en effet, ce gaz se transforme en un plasma ultra-froid presque neutre. Dans un premier temps, une charge d'espace se développe au sein du gaz de Rydberg. Celle-ci s'explique par l'ionisation d'atomes de Rydberg sous l'effet de deux causes principales : l'absorption du rayonnement du corps noir, et des collisions avec des atomes de Rydberg excités depuis les atomes du gaz résiduel non piégés dans le piège magnéto-optique. Les ions créés étant froids, une charge d'espace positive s'accumule. Les électrons, qui dans un premier temps ne sont pas retenus par la charge d'espace, finissent pas être piégés lorsque le potentiel créé par les ions est suffisamment profond. Environ 5% des atomes de Rydberg sont ionisés lorsque le piégeage des électrons se produit de façon significative. Une seconde étape commence alors, qui voit l'ensemble des atomes de Rydberg restant s'ioniser en avalanche, du fait de collisions avec les électrons piégés.

Le mécanisme décrit ci-dessus rend compte de la plupart de nos observations. Certaines questions restent cependant ouvertes, qui feront l'objet d'expériences à venir. En particulier, le rôle des atomes de Rydberg du gaz résiduel dans l'ionisation des premiers atomes de Rydberg doit encore être précisé. Une analyse du signal d'ionisation en fonction du nombre quantique principal et de la densité d'atomes de Rydberg sera menée de manière à comprendre plus en détail les mécanismes qui engendrent la charge d'espace. De même, on pourra évaluer le rôle des interactions dipolaires entre atomes de Rydberg froids.

Par ailleurs, il n'est pas complètement sûr que l'énergie des électrons piégés est suffisante pour expliquer l'ionisation de l'ensemble des atomes de Rydberg. La source d'énergie "manquante" pourrait se trouver dans des collisions superélastiques entre électrons et atomes de Rydberg, conduisant à un chauffage des électrons, et à la production d'atomes de Rydberg dans des niveaux plus profonds. Ces atomes n'ont pas pour l'instant été détectés ; leur détection éventuelle est peut-être difficile, car on s'attend à ce qu'ils soient répartis sur de nombreux niveaux. Une analyse précise du nombre moyen d'atomes de Rydberg plus ions en fonction du délai entre la production des atomes de Rydberg et la détection devrait permettre d'infirmier ou de valider l'hypothèse de collisions superélastiques.

D'autres expériences, portant par exemple sur la recombinaison atomique au sein du plasma ultra-froid produit, sont envisagées. La recombinaison au sein d'un plasma est un sujet très intéressant, notamment dans le cadre des études de la production d'atomes d'anti-hydrogène. Les études menées sur l'évolution des gaz de Rydberg vers un plasma presque neutre, seront donc dans les

prochaines années poursuivies. Les gaz d'atomes de Rydberg offrent aussi de nombreuses possibilités. On pourra par exemple étudier, dans des pièges dipolaires à CO₂, des gaz de Rydberg à une ou deux dimensions (c'est-à-dire qu'au moins une dimension du gaz est inférieure à la distance interatomique moyenne). En particulier, on pourra étudier la migration de l'excitation



mise en évidence dans la thèse d'Igor Mourachko (et évoquée brièvement en introduction de ma thèse). Un autre sujet intéressant est la photoassociation d'états moléculaires très excités (états trilobites prédits par C. Green [92], où un atome neutre est entouré par l'orbitale électronique d'un atome de Rydberg).

Le second résultat obtenu au cours de cette thèse concerne les paramètres de collision entre atomes froids dans leur niveau électronique fondamental. Nous avons en effet montré (voir chapitre 3) que la spectroscopie de photoassociation est un outil très puissant pour la détermination des paramètres de collision entre atomes froids. Dans un premier temps (chapitre 1), nous avons mesuré le taux de photoassociation en observant la diminution du nombre d'atomes dans un piège magnéto-optique. Dans nos conditions expérimentales, c'est-à-dire pour une densité atomique de l'ordre de $5 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-3}$, le taux mesuré est de 0,1 à 5 s^{-1} par atome. Ces résultats expérimentaux sont comparés à un modèle perturbatif, qui décrit avec succès le taux mesuré.

Ce modèle, analogue à une règle d'or de Fermi, montre que le taux de photoassociation est proportionnel au carré du recouvrement entre la fonction d'onde radiale des atomes en collision, et la fonction d'onde de vibration de la molécule excitée. Lorsque le niveau vibrationnel de l'état excité est suffisamment élevé, on montre que le taux de photoassociation est proportionnel au module carré de la fonction d'onde des atomes en collision, prise au point tournant externe de la molécule excitée. De ce fait, il est possible, en analysant les modulations d'intensité d'un spectre de photoassociation, d'acquérir des informations sur les paramètres de collision et d'interaction des atomes. Ainsi, en utilisant des atomes polarisés dans l'état $F=4$, $m_F = 4$, nous avons estimé la longueur de diffusion triplet de l'atome de césium à $a_T = -530_{-295}^{+160} a_0$, ainsi que le paramètre d'interaction de Van-der-Waals, $C_6 = 6510 \pm 70 \text{ u.a.}$ Ces mesures sont très délicates, et ne sont peut-être pas définitives. Elles font l'objet d'un débat ouvert avec l'équipe de S. Chu, et de théoriciens du NIST, qui présentent des résultats incompatibles avec les nôtres ($a_T = 2400 a_0$; $C_6 = 6890 \pm 35 \text{ u.a.}$). La difficulté pour déterminer la longueur de diffusion précisément réside dans le fait qu'elle est très grande en valeur absolue, c'est à dire qu'on est au voisinage d'une résonance de diffusion. Un faible déphasage de la fonction d'onde radiale à longue distance des atomes en collision peut se traduire par une grande différence dans la longueur de diffusion. Par conséquent, la connaissance précise du potentiel 0_g^- excité utilisé pour calculer les recouvrements entre les niveaux excités et la fonction d'onde de collision est un point clef de ces études. Des études sont menées à l'heure actuelle au Laboratoire Aimé Cotton sur le potentiel RKR employé pour connaître les points tournants externes des molécules excitées.

Par ailleurs, j'ai montré dans cette thèse qu'on pouvait utiliser la même méthode, consistant à analyser les minima du taux de photoassociation dans un spectre, en utilisant cette fois des atomes dans l'état $F=3$, $m_F = 3$, pour observer, au voisinage d'une résonance de Feshbach (résonante pour un champ magnétique de 30 Gauss environ), la modification de la longueur de diffusion. Nous avons observé la modification de la longueur de diffusion, et montré qu'elle est très petite pour une valeur du champ magnétique de 17 Gauss environ. La longueur de diffusion varie de $-\infty$ à $+\infty$ en passant par zéro. Ce résultat est d'un grand intérêt en vue du refroidissement évaporatif prévu dans une expérience en cours au Laboratoire Aimé Cotton, visant à la condensation de Bose-Einstein de l'atome de césium dans l'état $F=3$, $m_F = 3$: on peut contrôler les collisions froides binaires entre atomes. Cependant, nous avons aussi montré que nos résultats indiquent qu'au voisinage de la résonance, un taux de collision à trois corps important pourrait intervenir. Nous sommes dans une situation où la longueur de diffusion ne décrit probablement pas tous les phénomènes qui interviendront dans le refroidissement évaporatif.

Dans ce manuscrit, je décris par ailleurs d'autres expériences de spectroscopie développées pour déterminer les longueurs de diffusion de l'atome de césium. La technique expérimentale mise en oeuvre exploite le déplacement lumineux produit par un second laser pour réduire le taux de photoassociation. On parle de frustration de la réaction de photoassociation par effet Autler-Townes. Ceci permet de faire la spectroscopie des derniers niveaux liés de l'état fondamental. Cette spectroscopie devrait permettre la détermination des longueurs de diffusion du césium, par une méthode indépendante de celle précédemment utilisée.

Les études rassemblées dans le chapitre 4 portent sur la possibilité de former des molécules froides par désexcitation radiative de niveaux moléculaires électroniquement excités peuplés par photoassociation. La production de molécules froides a été mise en évidence en 1997 au Laboratoire Aimé Cotton. Je présente ici une mesure de température montrant que les molécules produites ont la même température que la température atomique. Je récapitule les différents mécanismes favorables à la production de molécules froides *via* photoassociation. Tous ces mécanismes correspondent à des situations où la probabilité de présence des molécules excitées est à la fois importante à grande distance (ce qui est favorable à un taux de photoassociation important) et à courte distance (ce qui est favorable aux transitions lié-lié lors de la désexcitation radiative). Je détaille en particulier un nouveau mécanisme, mis en évidence lors de la photoassociation de l'état 0_u^+ corrélé à la limite de dissociation $6s+6p_{1/2}$. Un couplage en zone interne avec un état de même symétrie corrélé à $6s+6p_{3/2}$ augmente le recouvrement entre la fonction d'onde excitée et des fonctions d'onde liées du fondamental, ce qui augmente le taux de production de molécules froides. Nous avons aussi noté que l'utilisation d'une résonance de Feshbach est un outil pour le contrôle du taux de formation de molécules froides : au voisinage de la résonance, la fonction d'onde des atomes en collision augmente à courte distance ; par conséquent, le taux de photoassociation augmente pour les niveaux vibrationnels de l'état 0_g^- les plus profonds, qui sont de relativement faible extension spatiale, et qui sont donc aussi ceux pour lesquels le rapport de branchement vers les niveaux liés du fondamental est le plus grand.

Les molécules produites *via* photoassociation le sont dans de nombreux niveaux de rotation-vibration. De ce fait elles ne sont froides que en ce qui concerne le degré de liberté de translation. Pour former des molécules qui soient toutes dans le même niveau (et qui soient donc froides suivant tous les degrés de liberté), j'ai développé des expériences de photoassociation Raman stimulée. Les atomes en collision subissent une transition à deux photons, ce qui conduit à la formation d'un nuage de molécules qui sont toutes dans le même état. Les molécules produites ont été détectées par photoionisation, et le taux de production de molécules froides obtenu est supérieur à 10^5 s^{-1} dans le piège magnéto-optique. D'autres expériences (qui n'ont pas pour l'instant été réalisées par manque de laser disponible), devraient permettre d'atteindre n'importe quel niveau de rotation-vibration de l'état triplet, à l'aide d'une ou de plusieurs transitions Raman stimulées. La possibilité d'obtenir des molécules froides qui sont toutes dans le même niveau est un résultat très stimulant. On peut par exemple penser réaliser des expériences d'interférométrie moléculaires.

Dans toutes les expériences évoquées précédemment, les molécules froides produites ne sont pas piégées, et on ne peut les détecter que pendant environ 10 ms, le temps qu'elle sortent de la zone de détection du fait de leur température et de la gravité. Ceci est un problème, car cela limite la densité du gaz de molécules obtenu, et les expériences qu'ont pourrait réaliser sur celles-ci. Pour remédier à ce problème, nous avons construit un piège magnétique, qui permet de piéger des molécules de l'état triplet métastable. Le temps de vie du piège obtenu est de une seconde environ. Cette réalisation, dont je ne présente que des résultats préliminaires, permettra dans un proche futur de nombreuses expériences. On peut penser par exemple à la photoassociation Raman stimulée dans un piège magnétique, qui devrait permettre l'obtention d'un nuage de molécules assez dense, et qui seront toutes dans le même état. Les collisions entre molécules (ou entre atomes et molécules) pourront alors être étudiées ; à terme, ceci peut ouvrir la voie au refroidissement évaporatif d'un gaz de molécules, en vue de l'obtention d'un condensat de molécules.

Annexe A

Eléments de physique moléculaire

La réaction de photoassociation permet de produire des molécules excitées de très grande élongation. Nous présentons ici un bref résumé du cadre théorique nécessaire à la compréhension des expériences de photoassociation. Les résultats présentés ici sont des résultats classiques, dont j'ai cherché à donner une vision synthétique. On pourra se référer aux thèses rédigées par mes prédécesseurs pour une étude plus exhaustive ([4], [7]), ou bien consulter le livre de Landau [3].

A.1 Approximation de Born Oppenheimer

Le système dont nous allons traiter maintenant est un système constitué de deux atomes, c'est-à-dire deux noyaux, et deux électrons, en interaction via l'interaction électrostatique. On se place dans les coordonnées barycentriques, et nous ne nous intéressons pas au mouvement de translation globale du système. Nous écrivons les équations du problème en coordonnées réduites. Les électrons sont bien plus légers que les noyaux. Leur position est donc une variable rapide, qui s'adapte adiabatiquement à la position des noyaux. Dans le cadre de cette approximation, dite de Born Oppenheimer, la démarche est la suivante : pour une position interatomique \vec{R} donnée, on résout l'équation de Schrödinger pour les électrons, \vec{R} étant un paramètre pour le problème. On calcule des valeurs propres pour l'énergie, paramétrées par R , et on en déduit le potentiel dans lequel se déplacent les noyaux. On résoud ensuite l'équation de Schrödinger pour le mouvement des noyaux dans un tel potentiel.

On cherche les solutions de l'équation de Schrödinger indépendante du temps :

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2\mu R} \frac{\partial^2}{\partial R^2} R + \frac{\vec{l}^2}{2\mu R^2} - \frac{\hbar^2}{2m_e} \sum \nabla r_i^2 + U(R, \vec{r}_i) - E \right] \Psi = 0 \quad (\text{A.1})$$

$U(R, \vec{r}_i)$ est la somme de toutes les interactions électrostatiques entre électrons-électrons, noyaux-noyaux, électrons-noyaux $V(\rho) = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\rho}$. \vec{l} est l'opérateur de moment cinétique des noyaux.

Les solutions s'écrivent dans l'approximation de Born-Oppenheimer sous la forme

$$\Psi(\vec{R}, \vec{r}_i) = \Psi_{elec}(R, \vec{r}_i) \Psi_{nucl}(\vec{R}) \quad (\text{A.2})$$

$\Psi_{elec}(R, \vec{r}_i)$ est solution propre du Hamiltonien

$$H_e = -\frac{\hbar^2}{2m_e} \sum \nabla r_i^2 + U(R, \vec{r}_i) \quad (\text{A.3})$$

dont les valeurs propres sont notées $U_e(R)$.

$\Psi_{nucl}(\vec{R})$ est solution propre du Hamiltonien

$$H = -\frac{\hbar^2}{2\mu R} \frac{\partial^2}{\partial R^2} R + \left\langle \Psi_{elec} \left| \frac{\vec{l}^2}{2\mu R^2} \right| \Psi_{elec} \right\rangle + U_e(R) \quad (\text{A.4})$$

A.2 Symétries des fonctions d'onde

L'étude des symétries du hamiltonien est motivée par la recherche des constantes du mouvement, et des bons nombres quantiques. Nous ne traitons ici que du cas des molécules homonucléaires, puisque la molécule étudiée ici est Cs_2 . Dans toute la suite de ce manuscrit, \vec{S} désigne le spin électronique total de la molécule, \vec{L} le moment orbital électronique total, \vec{l} le moment cinétique des noyaux. On notera de plus $\vec{J} = \vec{S} + \vec{L} + \vec{l}$. \vec{T} est le moment nucléaire total et on notera enfin : $\vec{F} = \vec{T} + \vec{J}$.

A.2.1 Symétries du hamiltonien total

Le hamiltonien total est invariant par rotation autour d'un axe fixe. Ceci implique que le moment total de la molécule \vec{F} est constante du mouvement.

A.2.2 Symétries des états électroniques

Afin de simplifier la résolution de l'équation aux valeurs propres liée au hamiltonien électronique A.3, nous considérons les symétries du système, c'est-à-dire que nous cherchons les opérateurs qui commutent avec ce hamiltonien.

Dans un premier temps, dans l'approximation non relativiste, nous négligeons les effets du spin électronique. On note (O,z) l'axe internucléaire.

H_e est invariant par une rotation R autour de (O,z). La projection L_z du moment cinétique électronique total est donc un bon nombre quantique. On note $\hbar\Lambda$ cette projection; elle sera représentée par la lettre Λ seule.

De même, dans le cas d'une molécule homonucléaire, H_e est inchangé par inversion I par rapport à l'origine O, barycentre des deux noyaux. $I^2 = 1$, donc les valeurs propres ω sont ± 1 (on notera

u ou g). L'inversion I et la rotation R commutent. I et L_z est donc un ensemble d'observable qui commutent (non complet). ω et Λ sont de bons nombres quantiques.

H_e est invariant par toute réflexion σ par rapport à un plan contenant l'axe (O,z). $\sigma^2 = 1$, les valeurs propres σ sont donc ± 1 . Cependant, réflexion et rotation ne commutent pas généralement. Lorsque $\Lambda = 0$ cependant, $\sigma L_z = L_z \sigma$, et σ est un bon nombre quantique, appelé parité de Krönig.

a) Cas (a) de Hund

Pour les distances internucléaires courtes, l'interaction spin-orbite est négligeable devant les autres énergies (échange et énergie électrostatique, étudiées plus bas). Le spin total des électrons S est alors un bon nombre quantique, qui engendre $2S+1$ valeurs permises pour la projection sur l'axe internucléaire, notée Σ .

Au total, les états électroniques sont caractérisés par les nombres quantiques Λ , ω (u ou g), $2S + 1$, et éventuellement, lorsque $\Lambda=0$, par $\sigma = (+ \text{ ou } -)$. On les note :

$${}^{2S+1} |\Lambda|_{(u,g)}^{(+,-)}$$

b) Cas (c) de Hund

L'effet du spin n'est pas généralement négligeable. En particulier à grandes distances internucléaires, l'énergie d'échange et l'énergie électronique (étudiées plus bas) deviennent faibles par rapport à l'énergie d'interaction spin-orbite électronique. Le Hamiltonien électronique s'écrit donc $H_e + H_{SO}$, où :

$$H_{SO} = A_{SO}(R) \vec{L} \cdot \vec{S} = A_{SO}(R) \left(L_z S_z + \frac{L^+ S^- + L^- S^+}{2} \right)$$

La seconde forme (écrite dans le repère moléculaire) sous laquelle est écrit H_{SO} fait apparaître que $J_z = L_z + S_z$ commute avec H_{SO} . Les termes en $L^+ S^-$ font apparaître un échange de quanta de rotation entre moment orbital et moment de spin. Comme nous l'avons expliqué plus haut, $J_z = L_z + S_z$ commute par ailleurs avec H_e . Il commute donc avec le hamiltonien électronique total. On note $\hbar\Omega$ ses valeurs propres. $\Omega = \Lambda + \Sigma$ est par conséquent un bon nombre quantique.

Dans le cadre de cette approximation, les niveaux électroniques sont caractérisés par Ω , ω , et éventuellement, lorsque $\Omega=0$, par $\sigma = (+ \text{ ou } -)$. On note :

$$|\Omega|_{(u,g)}^{(+,-)}$$

Nota :

Notons que chaque élément de la base du cas c) de Hund peut être exprimé en fonction des vecteurs de la base du cas a) de Hund. Un état $|\Omega|_{\omega}^{(+,-)}$ s'écrit comme combinaison linéaire d'états ${}^{2S+1} |\Lambda|_{\omega}^{(+,-)}$ de même symétrie ω u ou g (car l'inversion I commute avec l'interaction spin-orbite) et de même valeur de Ω (car J_z commute avec H_{SO}).

c) Effet de la structure hyperfine

Nous avons jusqu'à présent négligé l'effet du spin nucléaire sur les états électroniques. Généralement, l'effet des interactions hyperfines est négligeable devant celui des interactions fines. A grandes distances, cependant, ce n'est pas le cas. Le Hamiltonien d'interaction hyperfine est très complexe. Il est dominé par les interactions entre chaque noyau et son électron de valence. Le hamiltonien hyperfin atomique s'écrit :

$$H_{HFS} = -\frac{\mu_0}{4\pi} \left(\underbrace{\frac{\vec{l} \cdot \vec{I}}{r^3}}_I + \frac{1}{r^3} \underbrace{\left[3 \frac{(\vec{s} \cdot \vec{r})(\vec{I} \cdot \vec{r})}{r^2} - \vec{s} \cdot \vec{I} \right]}_{II} + \underbrace{\frac{8\pi}{3} \vec{I} \cdot \vec{s} \delta(r)}_{III} \right)$$

r est ici la distance entre l'électron et le noyau. Le premier terme (I) représente l'interaction entre le moment de spin nucléaire et le champ magnétique créé par le mouvement électronique. Les termes II et III proviennent de l'interaction entre le spin électronique et le champ magnétique produit par le moment magnétique du noyau. Le champ magnétique s'écrit de manière différente selon que l'on considère la région externe au noyau ou la région interne. De ces deux contributions proviennent réciproquement les termes II et III. Si on considère que le hamiltonien hyperfin moléculaire est la somme des deux hamiltoniens hyperfins atomiques, il apparaît qu'il n'est pas invariant par inversion des coordonnées électroniques I par rapport au barycentre des deux noyaux. Du fait des interactions hyperfines, u et g ne sont pas des bons nombres quantiques. On parle de brisure de symétrie u/g .

A.3 Energie des états électroniques

La seconde étape est maintenant, en fonction de la distance interatomique, de connaître la valeur des énergies propres du système. Le calcul de ces énergies est un problème de chimie quantique qui dépasse le cadre de ce manuscrit. Les fonctions électroniques propres sont exprimées comme combinaison linéaire des fonctions électroniques qui correspondent aux orbitales atomiques (c'est-à-dire les fonctions propres du système lorsque les deux atomes sont indépendants l'un de l'autre).

On peut se reporter à la référence[66] (complément G_{XI}) pour une introduction aux principes de la combinaison linéaire des orbitales atomiques. A assez courte distance, les énergies en présence viennent de l'interaction de Coulomb (interaction entre un noyau et un électron situé autour du second noyau), d'une intégrale de recouvrement (entre les deux orbitales atomiques), d'une intégrale de résonance, et de l'interaction d'échange. Cette dernière est liée au recouvrement des fonctions d'onde des deux électrons. Il s'agit d'une interaction répulsive, qui décroît exponentiellement quand R croît. Notons qu'à courte distance, les orbitales atomiques n'ont plus de sens; dans ce cas le problème est un problème de chimie quantique qui sort du cadre de ce manuscrit.

A.3.1 Développement multipolaire

A grandes distances interatomiques, l'énergie d'échange devient négligeable, et l'interaction électrostatique est prépondérante. L'interaction dominante est alors l'interaction dipôle-dipôle entre les deux atomes neutres A et B.

$$V = \frac{1}{4\pi\epsilon_0 R^3} \left(\vec{R}_A \cdot \vec{R}_B - 3(\vec{R}_A \cdot \vec{n})(\vec{R}_B \cdot \vec{n}) \right)$$

Cette interaction dépend évidemment du dipôle de chaque atome pris individuellement. Dans le cas des potentiels moléculaires fondamentaux (notés en cas a) du Hund) $^1\Sigma_g^+$ et $^3\Sigma_u^+$, asymptotiquement ($R \rightarrow \infty$), les deux atomes sont dans l'état S; ils n'ont pas de dipôle permanent, si bien que l'interaction dipôle-dipôle au premier ordre des perturbations est nulle. A l'ordre 2, en tenant compte des autres interactions (dipôle-quadrupôle...), l'énergie s'écrit : celle-ci s'écrit :

$$E(^1\Sigma_g^+, ^3\Sigma_u^+) = \frac{C_6}{R^6} + \frac{C_8}{R^8} + \dots$$

On donne figure 1.13 les potentiels fondamentaux $^3\Sigma_u^+$ et $^1\Sigma_g^+$.

Dans le cas des états moléculaires convergeant asymptotiquement vers la limite de dissociation $6s + 6p$, la valeur de l'énergie dipolaire n'est pas nulle à l'ordre 1, puisqu'un des atomes a un dipôle permanent. On a :

$$E = \frac{C_3}{R^3} + \frac{C_6}{R^6} + \frac{C_8}{R^8} + \dots$$

A.3.2 Interactions hyperfines

Par ailleurs, à longues distances, les interactions hyperfines ne sont pas négligeables. On sait en particulier que, asymptotiquement, quand la distance interatomique est infinie, les interactions hyperfines engendrent une levée de dégénérescence de l'état $6s$, entre les sous-niveaux $F=3$ et $F=4$. L'écart de structure hyperfine vaut 9,192 GHz (voir figure 1.1).

On considère l'état moléculaire fondamental, asymptotiquement constitué de deux atomes dans l'état $6s$, de moment angulaire respectif F_1 et F_2 , couplés en un moment angulaire total F_t ; F_t est une constante du mouvement, dont la projection sur l'axe moléculaire est notée m_{F_t} . La molécule est bien décrite par les nombres quantiques F_1, F_2, F_t, m_{F_t} . Les interactions fines et hyperfines sont alors diagonales. Pour calculer l'énergie du développement multipolaire pour cet état, il convient cependant de l'exprimer en fonction des vecteurs propres du cas a). On peut se reporter pour plus de détails à la référence [64], dont nous reprenons par ailleurs les résultats principaux au paragraphe 3.3.1 du chapitre 4. Notons que dans cette base, l'interaction d'échange n'est pas diagonale. La diagonalisation de la matrice d'interaction totale permet le calcul des énergies propres pour un F_t donné. Le résultat de ce calcul est représenté sur la figure 1.16 pour $F_t = 6$. Un point notable

apparent sur cette figure est la brusque variation des énergies propres et des projections sur les états u et g aux environs de 24 a_0 . A cette distance interatomique, l'interaction d'échange devient du même ordre que l'interaction hyperfine, si bien que les bons nombres quantiques changent.

A.4 Mouvement des noyaux

A.4.1 Fonctions d'onde de rotation-vibration

Le problème électronique étant résolu, pour R fixé, on étudie le mouvement des noyaux. Ceux-ci évoluent dans un potentiel, qui dépend de l'état électronique. Pour certains états électroniques, il en résulte des puits de potentiel, à l'intérieur desquels les noyaux oscillent. Dans le Hamiltonien H pour le mouvement des noyaux A.4, en rappelant que $\vec{T} = \vec{J} - \vec{L} - \vec{S}$, apparaissent les termes :

$\langle \Psi_{elec} | \frac{\vec{J}^2}{2\mu R^2} | \Psi_{elec} \rangle$, $\langle \Psi_{elec} | \frac{\vec{J}(\vec{L} + \vec{S})}{2\mu R^2} | \Psi_{elec} \rangle$, $\langle \Psi_{elec} | \frac{(\vec{L} + \vec{S})^2}{2\mu R^2} | \Psi_{elec} \rangle$. Le dernier terme ne dépend pas de J et peut être inclu dans l'énergie électronique. Le second terme est une perturbation rotationnelle, inclus dans un terme générique noté $H_{coriolis}$. Nous n'étudions pas ce terme ici. La fonction d'onde propre de rotation s'écrit [12] :

$$|J, M_J, m_J, \alpha\rangle = i^J \sqrt{\frac{2J+1}{4\pi}} D_{m_J, M_J}^J(\omega)$$

où $D_{m_J, M_J}^J(\omega)$ est la fonction de rotation de Wigner ; m_J et M_J sont les projections de J, respectivement sur l'axe interatomique et sur un axe fixe du laboratoire. Le mouvement de vibration des noyaux est ainsi régi par une équation du type :

$$\left(-\frac{\hbar^2}{2\mu R} \frac{\partial^2}{\partial R^2} R + \frac{J(J+1)\hbar^2}{2\mu R^2} + U_e(R) - E \right) \Psi_{nucl}(R) = 0 \quad (A.5)$$

On note $\Psi_{nucl}(R) = G_{nucl}(R)/R$.

A.4.2 Energie de rotation-vibration

Au voisinage d'un minimum, situé en R_e , on a

$$U(R) = U_e + \frac{J(J+1)\hbar^2}{2\mu R_e^2} + \frac{1}{2}\mu\omega_e^2(R - R_e)^2$$

si bien que les niveaux d'énergie liés dans ce potentiel s'écrivent

$$E(v, J) = U_e + \frac{J(J+1)\hbar^2}{2\mu R_e^2} + \hbar\omega_e\left(v + \frac{1}{2}\right)$$

On voit ici apparaître successivement l'énergie du fonds du puits, l'énergie rotationnelle, et l'énergie vibrationnelle. Plus généralement, rotation et vibration sont couplées, et le puits n'est pas réellement harmonique ; on peut alors pousser plus loin le développement des énergies propres : les niveaux de rotation-vibration quantifiés dans le puits peuvent ainsi s'écrire sous la forme :

$$E(v, J) = U_e + \sum_{i,j} Y_{ij} (v + \frac{1}{2})^i (J(J+1))^j$$

Il s'agit du développement de Dunham et les coefficients Y_{ij} sont appelés coefficients de Dunham. $Y_{00} = 0$; Y_{10} est l'énergie de vibration fondamentale $\hbar\omega_e$; Y_{01} est l'énergie de rotation $\frac{\hbar^2}{2\mu R_e^2}$.

A.4.3 Spectroscopie LeRoy-Bernstein

a) Série vibrationnelle Le Roy-Bernstein

LeRoy et Bernstein [2] ont développé une méthode semiclassique qui permet de donner une expression analytique de l'énergie des niveaux vibrationnels proche de la limite de dissociation, dans le cas général d'un potentiel asymptotique en $D - C_n/R^n$. Ceci nous intéresse tout particulièrement, puisque la réaction de photoassociation permet de former des molécules excitées proches de la limite de dissociation. Le traitement semi-classique développé dans la référence [2] s'appuie sur la condition de quantification WKB. Celle-ci s'écrit :

$$v + \frac{1}{2} = \frac{\sqrt{2\mu}}{\pi\hbar} \int_{R_1(v)}^{R_2(v)} [E(v) - V(R)]^{1/2} dR \quad (\text{A.6})$$

On suppose que la partie interne du potentiel compte peu ; cette supposition est confortée par le fait que la fonction d'onde est localisée en grande majorité à longues distances ; on peut alors remplacer le vrai potentiel par $D - C_n/R^n$ sur toute la distance d'intégration. En s'appuyant sur la relation $E(v) = D - C_n/R_2(v)^n$, on montre, en dérivant cette équation selon v , et en utilisant le changement de variables $y=R_2(v)/R$:

$$\frac{dE}{dv} = \hbar \left(\frac{2\pi}{\mu} \right)^{1/2} \frac{\Gamma(1 + 1/n)}{\Gamma(1/2 + 1/n)} \frac{n}{C_n^{1/n}} (D - E)^{(n+2)/2n} \quad (\text{A.7})$$

où Γ est la fonction d'Euler. Ceci s'écrit après intégration :

$$E(v) = D - \left[(v_D - v) \frac{(n-2)}{2n} \hbar \left(\frac{2\pi}{\mu} \right)^{1/2} \frac{\Gamma(1 + 1/n)}{\Gamma(1/2 + 1/n)} \frac{n}{C_n^{1/n}} \right]^{2n/(n-2)} \quad (\text{A.8})$$

Le nombre quantique effectif v_D correspond à une énergie $E(v_D)=D$. Il apparaît dans l'analyse des potentiels attractifs en $1/R^3$ qu'on étudie par spectroscopie de photoassociation. Lorsque v_D

n'est pas entier, il n'existe pas de niveau lié à la limite de dissociation. La partie interne du potentiel d'interaction engendre un déphasage à la réflexion, déphasage qui intègre toutes les interactions à courte distance; v_D est un défaut quantique.

b) Fonction d'onde WKB

Notons par ailleurs qu'on peut déduire de l'équation A.6 la période $T(v)$ du mouvement de vibration dans un tel puits pour un niveau vibrationnel v :

$$\Delta E(v \rightarrow v + 1) = \hbar \frac{2\pi}{T(v)} = \hbar\omega \quad (\text{A.9})$$

Il s'agit de temps typiques de l'ordre de quelques centaines de picosecondes, très inférieurs aux temps de désexcitation de la molécule par émission spontanée (de l'ordre de 30 ns).

On peut aussi calculer, la fonction d'onde de vibration dans le potentiel excité. Celle-ci s'écrit :

$$\Psi(R) = \sqrt{\frac{2\omega\mu}{\pi p(R)}} \cos\left(\frac{1}{\hbar} \int_{R_{int}}^R p(R') dR' - \frac{\pi}{4}\right) \quad (\text{A.10})$$

où ω est la pulsation du mouvement classique, et $p(R)$ l'impulsion relative locale des deux atomes. $\omega = \frac{2\pi}{T(v)}$. Notons que dans la normalisation de la fonction d'onde, il convient de prendre pour ω la pulsation calculée en utilisant le potentiel excité réel, et non pas la pulsation trouvée en utilisant le potentiel tronqué A.9.

c) Conditions de validité de l'approximation semi-classique

Notons que la loi A.8 n'est pas valable pour les niveaux les moins profonds (en fait, elle est vraie pour tous les niveaux sauf le dernier). Ceci est dû au fait que les conditions d'applicabilité des conditions semi-classiques WKB ne sont pas appliquées pour les grandes distances interatomiques : on n'a pas

$$\left| \frac{d}{dR} \frac{\hbar}{\sqrt{2\mu}} [E(v) - V(R)]^{-1/2} \right| \ll 1$$

C'est-à-dire qu'il y a une grande région de l'espace classiquement permise, où l'approximation semi-classique n'est pas valable. Pour les systèmes en $1/R^n$ où $n > 2$, Gribakin et Flambaum [11] ont montré, en utilisant une combinaison d'un calcul semi-classique à courtes distances et quantique à longues distances, que la condition d'existence d'un niveau lié à la limite de dissociation (c'est-à-dire dans notre cas la condition pour que v_D soit entier), s'écrit :

$$\frac{\sqrt{2\mu}}{\hbar} \int_{R_1}^{\infty} \sqrt{-V(R)} dR - \frac{\pi}{2(n-2)} = \frac{\pi}{2} \text{ mod } [\pi] \quad (\text{A.11})$$

ce qui diffère de l'équation A.6. On écrira :

$$(v_D + \frac{1}{2})\pi = \frac{\sqrt{2\mu}}{\hbar} \int_{R_1}^{\infty} \sqrt{-V(R)} dR - \frac{\pi}{2(n-2)} \quad (\text{A.12})$$

Le nombre quantique v_D apparaîtra à plusieurs reprises au cours de ce chapitre. D'une part, v_D apparaît dans l'analyse des spectres de photoassociation pour des potentiels en $1/R^3$. On reviendra aussi sur cette notion lorsque nous parlerons de la longueur de diffusion, qui correspond au cas où le potentiel considéré est le potentiel fondamental, en $1/R^6$. Nous verrons à nouveau ce défaut quantique apparaître dans l'étude sur les atomes de Rydberg. Ceci est une situation où $V=1/R$. Il s'agit alors d'une situation où la condition de quantification WKB reste valable y compris pour les nombre quantiques très élevés.

d) Analogie avec les atomes de Rydberg

Les systèmes moléculaires de grande élongation présentent une forte analogie avec les atomes de Rydberg. En particulier, l'équation A.8 apparaît comme une généralisation de la formule 1.9, donnant l'énergie d'un électron dans un atome de Rydberg. Le calcul des niveaux d'énergie de l'atome d'Hydrogène est bien sûr un résultat historique de la mécanique quantique. Notons cependant qu'on peut retrouver un tel résultat par la théorie semi-classique de LeRoy-Bernstein (évoquée par exemple au paragraphe A.4.3). Cette théorie a été conçue dans le cas général d'un potentiel en C_i/R^i , pour expliquer le mouvement de noyaux d'une molécule diatomique. Cette théorie échoue généralement lorsque le nombre quantique est trop élevé, les conditions WKB n'étant plus valable ; cependant, on est ici dans le cas où le paramètre d'interaction asymptotique est de la forme C_i/R^i , $i = 1$. On s'attend alors à ce que l'approximation semi-classique reste valable jusqu'à la limite d'ionisation [?]. Formellement, l'équation A.8 se généralise au potentiel d'attraction 1.8 pour le mouvement de l'électron. On trouve alors en effet la formule :

$$E = D - \frac{4}{\pi} \left(\frac{\Gamma(3/2)}{\Gamma(2)} \right)^2 \frac{m_e e^4}{2\hbar^2 (4\pi\epsilon_0)^2 (n - n_D)^2}$$

Comme $\frac{4}{\pi} \left(\frac{\Gamma(3/2)}{\Gamma(2)} \right)^2 = 1$, on retrouve, comme prévu, exactement la même formule que l'équation 1.12, donnant l'énergie des niveaux d'un atome de Rydberg. Notons une différence majeure avec l'équation 1.12 : ici, n_D est, formellement, le nombre de niveaux liés (infini) dans le puits de potentiel considéré. Les auteurs de la référence [99], en posant formellement $n_D=-1$, retrouvent les niveaux de l'atome d'hydrogène. Nous allons voir ici comment on peut relier n_D au défaut quantique d'un atome de Rydberg alcalin.

Nous avons noté que les niveaux d'énergie des atomes de Rydberg pour les harmoniques sphériques basses sont perturbées par rapport à la loi de Rydberg. Cette perturbation se traduit par un défaut quantique (voir équation 1.12). Il est intéressant de comparer la formule 1.10 pour le

défaut quantique d'un atome de Rydberg alcalin prise à énergie nulle $E = 0$, à l'équation A.12 qui permet le calcul du nombre de niveaux effectif v_D dans le cas général d'un potentiel en C_n/R^n . v_D est le nombre de niveaux liés (entier ou non) contenus dans un potentiel donné. Dans le cas d'un potentiel coulombien, l'équation A.12 s'écrit (avec $n = 1$) :

$$v_D = \frac{\sqrt{2m_e}}{\pi\hbar} \int_0^\infty dr \sqrt{-V(r)}$$

v_D est formellement infini. L'équation 1.10 prise à $E = 0$ s'écrit donc :

$$\delta = v_D(\text{alcalin}) - v_D(\text{hydrogène})$$

où $v_D(\text{alcalin}, \text{hydrogène})$ est le nombre de niveaux liés dans le potentiel de l'alcalin et de l'atome d'hydrogène. Le défaut quantique δ est la différence entre le nombre de niveaux liés d'un atome alcalin et d'un atome d'hydrogène, tous deux formellement infinis. Poser $n_D = v_D(\text{alcalin}) - v_D(\text{hydrogène})$ ne revient qu'à faire un changement dans la numérotation des niveaux liés, et permet de retrouver les niveaux d'énergie des atomes de Rydberg.

L'analogie entre atomes de Rydberg et molécule de grande élongation repose sur le fait qu'il s'agit de deux systèmes qui sont caractérisés par les interactions à longue distance. Les interactions à courte distance se traduisent par un déphasage de la fonction d'onde à longue distance. On retrouvera cette formulation ci-dessous à propos de la définition de la longueur de diffusion de deux atomes en collision.

A.5 Fonction d'onde au dessus de la limite de dissociation

A.5.1 Fonction d'onde de deux atomes en collision

Dans notre étude de la photoassociation, l'état initial du système considéré est une paire d'atomes en collision. Le hamiltonien du problème est identique à celui étudié plus haut. Il s'agit de le résoudre pour des énergies supérieures à la limite de dissociation 6s+6s. Par ailleurs, la photoassociation ayant lieu à grandes distances internucléaires, nous sommes intéressés principalement par la région où R est grand. La spécificité du traitement théorique réside alors sur le fait que \vec{l} est une constante du mouvement. A longues distances, l'opérateur \vec{l}^2 n'agit pas sur la fonction d'onde électronique. On peut alors décrire le mouvement radial des noyaux comme une combinaison linéaire dans la base des ondes partielles $G^l(R)$:

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2\mu} \frac{\partial^2}{\partial R^2} + \frac{l(l+1)\hbar^2}{2\mu R^2} + U_e(R) - E \right] G_{coll}^l(R) = 0$$

J est une constante du mouvement. L'état initial du système est, dans le cas de la photoassociation, un vecteur propre du hamiltonien total, noté Ψ_{J,M_J} . Ce vecteur propre peut s'exprimer

dans la base atomique, caractérisée par les nombres quantiques des atomes asymptotiquement indépendants. Cette base atomique peut elle-même s'écrire, par découplage des moments, dans la base des ondes partielles. Si bien qu'au total, on peut écrire Ψ_{J,M_J} comme la combinaison linéaire suivante :

$$\begin{aligned}\Psi_{J,M_J} &= \sum_{M_l, M_s} C_{l, M_l, S, M_s}^{J, M_J} Y_l^{M_l} D_{M_s, m_s}^S(\omega) \\ &= CL_{l+S=J} \left(Y_{l, M_l} \frac{G^l}{R} \otimes \left| {}^{2S+1}\Sigma_{(-1)^S}^+ \right\rangle \right)\end{aligned}$$

Les coefficients de la combinaison linéaire ($CL_{l+S=J}$) ne nous intéressent pas pour l'instant. Ils interviennent dans le calcul du couplage dipolaire dans la réaction de photoassociation.

A longues distances, l est un bon nombre quantique. Par ailleurs, $[\vec{L}, \vec{J}] = 0$ car \vec{L} commute avec l'opérateur de spin, et $\vec{L} = \vec{0}$. Ici, \vec{L} est spectateur, et ses éléments non diagonaux sont négligés. Par conséquent tous les vecteurs de la forme $Y_{l, M_l} \frac{G^l}{R} \otimes \left| {}^{2S+1}\Sigma_{(-1)^S}^+ \right\rangle$ sont vecteurs propres du Hamiltonien. C'est-à-dire qu'on peut écrire :

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2\mu} \frac{\partial^2}{\partial R^2} + \frac{l(l+1)\hbar^2}{2\mu R^2} + U_S(R) - E \right] G_S^l(R) = 0 \quad (\text{A.13})$$

C'est-à-dire que, à longues distances, le vecteur propre total est une combinaison linéaire d'onde partielles, chacun évoluant, avec une structure électronique ${}^3\Sigma_u^+$ ou ${}^1\Sigma_g^+$, respectivement dans un potentiel triplet et singulet.

On note $E = \frac{\hbar^2 k^2}{2\mu}$.

A grandes distances, la fonction d'onde est combinaison linéaire de fonctions de Bessel et des fonctions de Neumann sphériques :

$$G_S^l(R) \propto kR \cos(\delta_l^S(k)) j_l(kR) + \sin(\delta_l^S(k)) n_l(kR) \quad (\text{A.14})$$

Les fonctions d'onde de Bessel et de Neumann sont asymptotiquement sinusoïdales. A plus courtes distances, pour $l > 0$, et pour k faible, j_l s'annule. On montre par ailleurs que, à basses énergies, $\delta_l^S(k) \propto k^{2l+1}$, $n_l(kR) \propto k^{-l-1}$, si bien que le deuxième terme de l'équation A.14 s'annule. Ceci retrace l'influence des barrières rotationnelles $\frac{l(l+1)\hbar^2}{2\mu R^2}$ pour les énergies de collision faibles : pour des énergies de collision inférieure à la hauteur de la barrière rotationnelle, la fonction d'onde ne peut pas pénétrer à courtes distances. On donne dans le tableau suivant les valeurs en μK de la hauteur des barrières rotationnelles, et leur position (déterminée par la nullité de la dérivée du potentiel total $-\frac{C_6}{R^6} + \frac{l(l+1)\hbar^2}{2\mu R^2}$).

l	hauteur (μK)	$R_{\max}(a_0)$
0	0	$+\infty$
1	35	220
2	182	168
3	523	141
4	1103	124
5	2063	112
6	3406	103

A très grandes distances, c'est-à-dire après la barrière rotationnelle, on a :

$$\begin{aligned}
G_S^l(R) &\propto \cos(\delta_l^S(k)) \sin(kR - l\frac{\pi}{2}) + \sin(\delta_l^S(k)) \cos(kR - l\frac{\pi}{2}) \\
&\propto \sqrt{\frac{2\mu}{\pi\hbar^2 k^2}} \sin(kR - l\frac{\pi}{2} + \delta_l^S(k))
\end{aligned}$$

La fonction d'onde vibrationnelle est normalisée en énergie. Dans le cas d'un piège magnéto-optique, la température atomique est de l'ordre de $130 \mu K$. Nous verrons que dans le cas de photoassociation d'atomes polarisés, seuls les ondes partielles pairs interviennent dans la réaction de photoassociation. Alors, des collisions en ondes s ($l=0$) jouent un rôle privilégié. La fonction d'onde s'écrit alors

$$G_{coll}(R) = \sqrt{\frac{2\mu}{\pi\hbar^2 k^2}} \sin(k(R + \frac{\delta_0^S(k)}{k}))$$

A.5.2 Longueur de diffusion

On définit la longueur de diffusion a par la limite :

$$a = -\lim_{k \rightarrow 0} \left(\frac{\tan(\delta_0^S(k))}{k} \right)$$

On voit, d'après l'équation A.13 qu'il existe deux longueurs de diffusion différentes. Une longueur de diffusion triplet (notée a_T), et une longueur de diffusion singulet notée a_S .

La longueur de diffusion est un paramètre équivalent au paramètre v_D introduit dans la théorie de LeRoy-Bernstein : il s'agit d'un défaut quantique. Ce défaut quantique résume toutes les interactions à courtes distances. Dans le cas des deux potentiels fondamentaux $^3\Sigma_u^+$ et $^1\Sigma_g^+$, les interactions à courtes distances diffèrent à cause de l'interaction d'échange. On s'attend donc à ce que la phase accumulée à courtes distances, et donc les défauts quantiques respectifs, diffèrent. Les longueurs de diffusion singulet et triplet diffèrent donc dans le cas général.

Lorsqu'il existe un niveau lié à la limite de dissociation, v_D est entier, et la phase accumulée dans le potentiel est alors $\delta_0(k) = \pi(v_D + \frac{1}{2})$, qui tend donc vers $\pi/2 \pmod{\pi}$ [11]. La longueur

de diffusion est alors infinie. Une longueur de diffusion infinie correspond donc à l'existence d'un niveau lié à la limite de dissociation dans le potentiel fondamental. Lorsqu'un niveau lié est situé juste au dessous de la limite de dissociation, la longueur de diffusion est grande et positive. Dans le cas où le potentiel est légèrement modifiée de manière à faire passer le niveau juste au dessus de la limite de dissociation (niveau virtuel), la longueur de diffusion est grande et négative.

La longueur de diffusion est le paramètre qui caractérise les collisions entre atomes froids. Le signe de ce paramètre détermine la stabilité d'un condensat de Bose-Einstein : si la longueur de diffusion est négative, un condensat sera instable si le nombre d'atomes est trop élevé. Si la longueur de diffusion est positive, le condensat sera stable..

A.6 Interaction d'une molécule avec un champ extérieur

Une fois déterminés les états propres du hamiltonien global, il est possible d'analyser les interactions d'un molécule dans un état donné avec un champ extérieur donné (champ électrique, magnétique, ou laser par exemple). Notons cependant que, une fois trouvée une fonction d'onde totale qui est solution de l'équation de Schrödinger, on doit appliquer un opérateur de symétrisation de manière à rendre compte de la nature fermionique ou bosonique des particules considérées.

A.6.1 Terme électronique

L'analyse des couplages radiatifs dans une molécule, ou bien de l'effet d'un champ, électrique ou magnétique, sur une molécule, fait intervenir le formalisme de la théorie quantique des moments angulaires. L'objet de ce paragraphe n'est pas l'étude de cette théorie. Nous en donnons cependant les résultats qui seront utiles à notre étude. On pourra se référer à la référence [12] pour une étude complète. Nous reprenons ici le raisonnement de la référence [3], §110. La difficulté principale réside ici dans le fait que les opérateurs agissent dans notre cas sur les variables électroniques, exprimées dans le référentiel lié à la molécule. Les opérateurs d'interaction (que ce soit l'opérateur dipolaire ou l'opérateur d'interaction électrique ou magnétique, par exemple), sont définis dans le repère du laboratoire. Intervient donc une matrice de rotation pour ramener l'interaction dans le repère de la molécule. Le calcul est grandement simplifié car les fonctions propres considérées ici, tout comme les opérateurs de rotation, sont deux représentations irréductibles du groupe des rotations.

Dans le formalisme de la référence [12] précédemment citée, les vecteurs propres électroniques, caractérisés par le moment total J , ainsi que ses projections sur un axe fixe du laboratoire, M_J , et sur l'axe moléculaire, m_J , s'écrivent :

$$|J, M_J, m_J, \alpha\rangle = i^J \sqrt{\frac{2J+1}{4\pi}} D_{m_J, M_J}^J(\omega)$$

où ω représente génériquement les trois angles d'Euler de la molécule. α représente les nombres quantiques purement électroniques.

Soit f_q^k un tenseur de rang k lié à l'axe moléculaire, caractérisant la molécule. Dans la suite, on notera f_q^k l'expression de ce tenseur dans le référentiel moléculaire, et f_q^k dans le référentiel du laboratoire. Ce tenseur s'écrit dans le repère du laboratoire :

$$f_q^k = \sum_{q'} D_{q',q}^k(\omega) f_{q'}^k$$

On cherche à connaître l'effet de l'opérateur f sur la molécule.

$$\begin{aligned} \langle J', M_{J'}, m_{J'}, \alpha' | f_q^k | J, M_J, m_J, \alpha \rangle &= i^{J-J'} \frac{\sqrt{2J+1}\sqrt{2J'+1}}{8\pi^2} \\ &\sum_{q'} \int d\omega \left(D_{m_{J'}, M_{J'}}^{J'}(\omega) \right)^* D_{q',q}^k(\omega) D_{m_J, M_J}^J(\omega) \langle \alpha' | f_{q'}^k | \alpha \rangle \\ &= i^{J-J'} (-1)^{m_{J'}-M_{J'}} \frac{\sqrt{2J+1}\sqrt{2J'+1}}{4\pi} \\ &\sum_{q'} \int d\omega D_{-m_{J'}, -M_{J'}}^{J'}(\omega) D_{q',q}^k(\omega) D_{m_J, M_J}^J(\omega) \langle \alpha' | f_{q'}^k | \alpha \rangle \end{aligned}$$

Ceci peut s'écrire, en fonction des symboles 3jm [12] :

$$\begin{aligned} \langle J', M_{J'}, m_{J'}, \alpha' | f_q^k | J, M_J, m_J, \alpha \rangle &= i^{J-J'} (-1)^{m_{J'}-M_{J'}} \sqrt{(2J+1)(2J'+1)} \\ &\sum_{q'} \begin{pmatrix} J & k & J' \\ m_J & q & -m_{J'} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} J & k & J' \\ M_J & q & -M_{J'} \end{pmatrix} \langle \alpha' | f_{q'}^k | \alpha \rangle \end{aligned} \quad (\text{A.15})$$

Dans le cas où f_q^k est un opérateur dipolaire, ce résultat permet de calculer les transitions radiatives moléculaires, et les règles de sélections. Nous appliquerons ce formalisme pour déterminer les règles de sélection dans la réaction de photoassociation. Dans le cas où f_q^k représente l'effet d'un champ électrique ou magnétique, cette formule permet de calculer l'effet Stark ou Zeeman moléculaire. Nous reviendrons au chapitre IV sur cette question.

A.6.2 Moment dipolaire $\langle \alpha' | f_{q'}^k | \alpha \rangle$

Lorsqu'on considère une interaction dipolaire entre deux niveaux moléculaires, comme on vient juste de le montrer, il est nécessaire de calculer $\langle \alpha' | f_{q'}^k | \alpha \rangle$, c'est-à-dire le moment dipolaire de transition entre les niveaux électroniques. Pour ce faire, on peut, pour les distances interatomiques grandes, écrire les états propres électroniques moléculaires comme combinaison linéaire des états atomiques (où les deux atomes sont indépendants), caractérisés par les nombres quantiques atomiques. C'est le principe de la combinaison linéaire des orbitales atomiques (LCAO). Les facteurs

de la combinaison linéaire dépendent de la façon dont s'agencent les moments électroniques atomiques pour former l'état électronique moléculaire (état propre du cas a) ou c) de Hund, suivant l'importance de l'interaction spin-orbite). On montre alors que le moment dipolaire de transition est proportionnel au moment dipolaire atomique ; la constante de proportionnalité dépend de la distance interatomique moyenne, comme a été calculé par Mihaela Vatasescu [75].

A.6.3 Principe de Franck-Condon

Nous considérons une transition radiative entre deux niveaux moléculaires (cas dont la photoassociation est un cas particulier) : dans l'approximation dipolaire, la probabilité de transition radiative, est :

$$\left| \langle \Psi_i | \vec{\mu} \cdot \vec{E} | \Psi_f \rangle \right|^2 = \left| \int \Psi_{nucl}^i(R) \Psi_{nucl}^f(R) \langle \Psi_{elec}^i | \vec{\mu} \cdot \vec{E} | \Psi_{elec}^f \rangle dR \right|^2$$

Dans l'approximation de Born Oppenheimer, on a écrit de manière générique les fonctions d'onde initiale et finale sous la forme $\Psi_a = \Psi_{nucl}^a \Psi_{elec}^a$, conformément à l'équation A.2. Les calculs d'algèbres exposés ci-dessus permettent le calcul du dipôle : $d(R) = \langle \Psi_{elec}^i | \vec{\mu} \cdot \vec{E} | \Psi_{elec}^f \rangle$. Dans le cas où celui-ci ne dépend que lentement de la distance interatomique, on peut écrire :

$$\left| \langle \Psi_i | \vec{\mu} \cdot \vec{E} | \Psi_f \rangle \right|^2 = E^2 d^2 \left| \int dR \Psi_{nucl}^i(R) \Psi_{nucl}^f(R) \right|^2 \quad (\text{A.16})$$

L'amplitude de transition radiative est ainsi donnée par le recouvrement entre la fonction d'onde interatomique initiale et la fonction d'onde de la molécule excitée par le laser. Ce recouvrement (intégrale d'un produit de deux fonction spatialement oscillantes) se construit dans les régions où les fréquences d'oscillation des deux fonctions d'onde sont égales. Cela signifie, d'après la forme de la fonction d'onde donnée équation A.10, que l'impulsion relative des deux particule est identique. Ceci est le principe de Franck-Condon [77] : la transition radiative se fait avec conservation de l'énergie cinétique relative. Ce principe est un des résultats les plus utiles de physique moléculaire, et un des outils les plus utilisés dans ce manuscrit.

A.7 Limites de l'approximation de Born-Oppenheimer : les équations couplées

L'approximation de Born-Oppenheimer suppose une adaptation adiabatique de l'état des électrons à la position des noyaux. Ceci n'est valable que lorsque l'état électronique varie lentement en fonction de la position des noyaux. Dans de nombreuses situations, cette approximation est mise en défaut. Au cours de ma thèse, un couplage résonant pour l'état 0_u^+ sous la limite de dissociation $6s+6p_{1/2}$ a été mis en évidence, conduisant à un taux important de formation de molécules froides ;

de même, nous avons étudié un résonance de Feshbach. C'est tout particulièrement l'étude d'une résonance de Feshbach qui a motivé les quelques idées introductives résumées dans les prochains paragraphes.

A.7.1 Les équations couplées

Considérons deux niveaux électroniques propres $|1\rangle$ et $|2\rangle$ associées aux courbes adiabatiques $V_1(R)$ et $V_2(R)$. Les fonctions propres du système s'écrivent :

$$|\Psi\rangle = \Phi(R) |2\rangle + \Psi(R) |1\rangle$$

Les fonctions d'onde F et G obéissent au système d'équations couplées suivant :

$$\left(-\frac{\hbar^2}{2\mu R} \frac{\partial^2}{\partial R^2} R + \frac{J(J+1)\hbar^2}{2\mu R^2} + V_2(R) \right) \Phi(R) + V_{12}\Psi(R) = E\Phi(R) \quad (\text{A.17})$$

$$\left(-\frac{\hbar^2}{2\mu R} \frac{\partial^2}{\partial R^2} R + \frac{J(J+1)\hbar^2}{2\mu R^2} + V_1(R) \right) \Psi(R) + V_{21}\Phi(R) = E\Psi(R) \quad (\text{A.18})$$

On se restreindra pour cette présentation succincte au cas où $l = 0$, conformément aux conditions expérimentales dans notre cas. V_{12} et V_{21} représentent un couplage entre les deux potentiels $V_1(R)$ et $V_2(R)$. Ici, le couplage est un couplage radial non Born-Oppenheimer que je n'explicite pas. L'important est ici que ce couplage ne comprend pas de terme diagonaux. En effet, les fonctions d'onde électroniques sont normalisées à 1, si bien que $\frac{\partial}{\partial R} |i\rangle$ est perpendiculaire à $|i\rangle$, $i = 1, 2$. Le terme de couplage sera d'autant plus important que les deux potentiels seront près l'un de l'autre. On note $\Psi_0(R)$ et $\Phi_0(R)$ les solutions respectives des équations A.18 et A.17 en l'absence de couplage ($V_{12} = V_{21} = 0$). En utilisant la fonction de Green $F(R) = -\frac{1}{4\pi} \frac{\exp(ikR)}{R}$ (avec $\frac{\hbar^2 k^2}{2\mu} = E$), qui vérifie

$$\left(-\frac{\hbar^2}{2\mu R} \frac{\partial^2}{\partial R^2} R - E \right) F(R) = \delta(R)$$

les solutions s'écrivent :

$$\Psi(R) = \Psi_{fesh}^0(R) - \int_0^\infty dR' F(R - R') (V_1(R')\Psi(R') + V_{21}(R')\Phi(R'))$$

Si V_{21} est nul, $\Psi(R) = \Psi_0(R)$, si bien que $\Psi(R) = \Psi_0(R) + \Psi_{fesh}(R)$, avec :

$$\Psi_{fesh}(R) = - \int_{R_{int}}^{R_{ext}} dR' F(R - R') V_{21}(R') \Phi(R') \quad (\text{A.19})$$

De même, $\Phi(R) = \Phi_0(R) + \Phi_{fesh}(R)$, avec :

$$\Phi_{fesh}(R) = - \int_0^\infty dR' F(R - R') V_{12}(R') \Psi(R') \quad (\text{A.20})$$

Le calcul consiste ici à supposer que $\Phi_{fesh}(R)$ est négligeable devant $\Phi_0(R)$: il s'agit d'un calcul perturbatif où on considère que la fonction d'onde liée est peu perturbée par l'interaction avec le continuum. L'équation A.19 s'écrit alors :

$$\Psi_{fesh}(R) = - \int_{R_{int}}^{R_{ext}} dR' F(R - R') V_{21}(R') \Phi_0(R') \quad (\text{A.21})$$

A.7.2 Couplage résonant.

Deux cas se présentent à nous, selon que l'énergie E correspond à une énergie propre de l'équation A.17 avec $V_{12} = 0$ ou non.

Si E n'est pas énergie propre, c'est-à-dire qu'il n'existe pas de niveau lié dans le potentiel $V_2(R)$ à l'énergie E , la seule solution à l'équation A.17 est $\Phi_0(R) = 0$. On a donc, d'après A.21 $\Psi_{fesh}(R) = 0$; la fonction d'onde des atomes en collision n'est pas modifiée par le couplage.

Si E est une énergie propre de l'équation A.17 en l'absence de couplage, l'équation A.21 permet de calculer la perturbation de la fonction d'onde des atomes en collision. Nous avons ainsi affaire à un couplage résonant.

A.7.3 Largeur de la résonance

Cette résonance a une largeur, fixée par l'intensité du couplage. Pour l'évaluer, on peut se ramener à un raisonnement équivalent à celui exposé au paragraphe C.1. Si on considère qu'à l'instant $t=0$, le niveau lié $\Phi_0(R)$ est peuplé, la largeur du niveau est l'inverse du temps de vie de ce niveau à cause de l'interaction avec le continuum d'états. Ceci peut être modélisé par une règle d'Or de Fermi, le couplage étant ici le couplage non Born-Oppenheimer; l'important ici est que l'interaction ici ne comporte pas de termes diagonaux, si bien que le calcul exposé au paragraphe C.1 est valable. Le potentiel V est ici le potentiel ???. On note $\Phi_0(R) |2\rangle$ l'état lié, et $\Psi_0(R) |1_\omega\rangle$ les états du continuum, repérés par $E = \hbar\omega$. On suppose ici que le couplage est faible, si bien qu'on peut négliger son effet sur les fonctions d'onde vibrationnelles. Dans ces conditions, le vecteur d'état du système s'écrit :

$$\tilde{\psi} = b_e(t) \Phi_0(R) |2\rangle + \int d\omega b_\omega(t) \Psi_0(R) |1_\omega\rangle$$

A nouveau, on peut considérer que le continuum d'état possible est large, si bien qu'on peut écrire (voir équation C.1) :

$$\frac{\partial b_e(t)}{\partial t} = -b_e(t) \frac{1}{\hbar} \int d\omega |\langle 2 | \Phi_0(R) V \Psi_0(R) | 1_\omega \rangle|^2 \underbrace{\int_0^t d\tau \exp(-i(\omega_\Phi - \omega)\tau)}_{\pi\delta(\omega_\Phi - \omega) + iPP(\frac{1}{\omega_\Phi - \omega})} \quad (\text{A.22})$$

On en déduit le temps de vie du niveau lié, sous l'effet du couplage, c'est-à-dire une largeur naturelle, qui vaut ici :

$$\hbar\Gamma = \pi |\langle 2 | \Phi_0(R) V \Psi_0(R) | 1_{\omega=\omega_\Phi} \rangle|^2$$

La largeur naturelle définie ici est la largeur de la résonance, fixée par l'intensité du couplage entre le niveau discret et le continuum. A cause de sa partie imaginaire, l'équation A.22 prédit en outre un déplacement de la résonance de Feshbach par rapport au calcul d'un niveau lié dans un potentiel adiabatique. Ce shift vaut :

$$\hbar\Delta = \int d\omega |\langle 2 | \Phi(R) V \Psi(R) | 1_\omega \rangle|^2 PP(\frac{1}{\omega_\Phi - \omega})$$

A.7.4 Effet du couplage sur la fonction d'onde des atomes en collision

Pour $R \in [R_{int}, R_{ext}]$, le terme en $F(R - R')$ dans l'équation A.21 favorise la contribution des termes proches de $R' = R$ dans l'intégrale, sans qu'on puisse dire que les noeuds de la fonction d'onde sont conservés (ici, à $100 \mu K$, $kR \sim 0,4$ au voisinage du point tournant externe).

Pour $R \gg R_{ext}$, on peut remplacer $-\frac{1}{4\pi} \frac{\exp(ik(R-R'))}{(R-R')}$ par $-\frac{1}{4\pi} \frac{\exp(ik(R-R'))}{R}$ dans l'intégrale A.19. On a alors : $\Psi(R) = \Psi_0(R) - \frac{\exp(ikR)}{R} \int dR' \exp(-ikR') V_{21}(R') \Phi_0(R')$, ce qui à longue distance peut se modéliser par un défaut quantique, c'est-à-dire par une phase. Celle-ci dépend du couplage, comme montré sur la figure 3.12. Si on pose, conformément aux notations du chapitre I, $\Psi_0(R) = G_0(R)/R$, on a :

$$G(R) = G_0(R) - A \exp(i(kR + \delta'))$$

$G_0(R)$ est lui-même une exponentielle $\exp(ikR)$ à grande distance, si bien que le couplage se traduit bien alors par un déphasage.

$$G(R) \propto \exp(i(kR + \delta_{fesh}))$$

La longueur de diffusion varie donc au voisinage de la résonance de Feshbach. Le calcul tenant compte de la largeur de la résonance, qui nécessite le calcul de la section efficace de collision, est détaillé dans la référence [44] ; on en déduit :

$$\delta_{fesh} = a \tan\left(\frac{\Gamma/2}{\Delta - \delta}\right) \quad (\text{A.23})$$

Annexe B

Théorie de la photoassociation, modèle perturbatif

Le modèle de la photoassociation que nous donnons ici est un modèle perturbatif. Le traitement que nous en donnons est inspiré de l'article [8]. Nous cherchons ici à donner une écriture analytique du taux de photoassociation.

Dans la réaction de photoassociation, deux atomes froids absorbent un photon au cours de leur collision, pour produire une molécule électroniquement excitée. Ce processus est résonant. Nous considérons donc initialement un gaz d'atomes froids à l'équilibre thermodynamique. Un gaz d'atomes froids en piège magnéto-optique étant un milieu dilué, on ne considère que les interactions à deux particules.

Le système physique considéré est ici une paire d'atomes en interaction. Nous allons dans ce paragraphe utiliser les notions de physique moléculaire introduites en annexe A, dont nous reprenons le formalisme. Le Hamiltonien d'interaction pour une paire d'atomes est écrit en coordonnées réduites, et on se place dans le cadre de l'approximation de Born-Oppenheimer.

B.1 Définition du problème

B.1.1 Etat initial

Les atomes en collision sont tous les deux dans l'état $6s$. L'état initial $|i\rangle$ est un état propre du hamiltonien, caractérisé par un nombre quantique J et une énergie E_i . Cet état initial est décrit au paragraphe A.5.1. On considère une superposition d'ondes partielles, évoluant dans un potentiel moléculaire singulet ou triplet.

L'état initial, comme expliqué au paragraphe A.5.1 s'écrit en fonction des ondes partielles de collision. J et S sont aussi de bons nombres quantiques. On note :

$$|i\rangle = |J, l, S\rangle$$

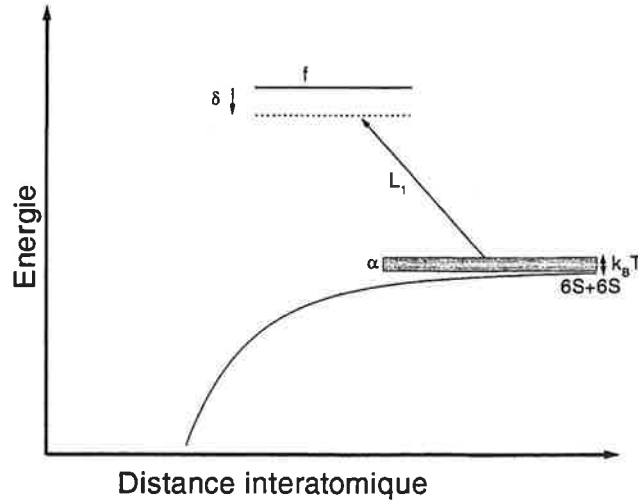


FIG. B.1: Schéma de principe de la réaction de photoassociation. L'état initial est un continuum d'états froids, situés juste au dessus de la limite de dissociation $6s+6s$. $k_B T$ est de l'ordre de 2,5 MHz. $|f\rangle$ est un niveau moléculaire excité, appartenant à un état moléculaire asymptotiquement relié aux asymptotes $6s+6p_{1/2}$ ou $6s+6p_{3/2}$. δ est le décalage à résonance; L_1 est le laser de photoassociation (typiquement, un Sa :Ti continu de 500 W/cm^2).

On peut écrire l'état initial dans le repère fixe :

$$|i\rangle = \sum_{M_i, M_S} C_{l, M_i, S, M_S}^{J, M_J} \frac{G_l^S(R)}{R} Y_l^{M_i} D_{M_S, m_S}^S(\omega)$$

où $C_{l, M_i, S, M_S}^{J, M_J}$ représente un coefficient de Clebsch-Gordan, $Y_l^{M_i}$ une harmonique sphérique, et D_{M_S, m_S}^S une fonction de Wigner.

L'état initial est combinaison linéaire des fonctions propres :

$$Y_l^{M_i}(\theta, \phi) \frac{G_l^S(R)}{R} \left| 2S+1 \Sigma_{(-1)^S}^+(R) \right\rangle$$

Initialement, nous supposons être à l'équilibre thermique à la température T. La matrice densité initiale est

$$\rho(0) = \frac{Z}{\text{tr}(Z)} \quad , \quad Z = \exp\left(-\frac{H}{k_B T}\right)$$

La trace de la fonction de partition est prise sur tous les états initiaux :

$$\text{tr}(Z) = \int D(E) \exp\left(-\frac{E}{k_B T}\right) dE \quad , \quad D(E) = \frac{4\pi V \mu^{3/2}}{h^3} \sqrt{2E}$$

La densité d'états initiaux à l'énergie E vaut donc :

$$n(E) = \exp\left(-\frac{E}{k_B T}\right) \left(\frac{1}{2\pi\mu k_B T}\right)^{3/2} \frac{h^3}{V} = \exp\left(-\frac{E}{k_B T}\right) \frac{\Lambda^3}{V} \left(\frac{3}{2\pi}\right)^{3/2}$$

où Λ est la longueur thermique de de Broglie $\Lambda = h\sqrt{\left(\frac{1}{3k_B T\mu}\right)}$. Celle-ci, pour l'atome de césium à $100 \mu K$, vaut 30 nm . La réaction de photoassociation concerne des atomes séparés de typiquement 30 \AA (soit $\Lambda/10$) ; à cette distance, les deux paquets d'onde sont fortement superposés, si bien que la description correcte du système est bien la fonction d'onde $G_l^S(R)$. Le rapport $\frac{\Lambda^3}{V}$ est en quelque sorte la proportion d'espace effectivement occupée par les atomes (de l'ordre de 1 pour un condensat de Bose). On note $|\alpha\rangle$ les vecteurs du continuum d'états initial, repérés par leur énergie α au dessus de la limite de dissociation $6s+6s$.

B.1.2 Etat final

L'état final $|f\rangle$ est un état propre du hamiltonien d'énergie E_f . La photoassociation ayant lieu à grandes distances, les états électroniques propres sont des états de la base du cas c) de Hund $|\Omega\rangle_{(u,g)}^{(+,-)}$.

$$|f\rangle = \Psi_{rot}(\theta, \phi) \frac{F_n(R)}{R} \left| |\Omega\rangle_{(u,g)}^{(+,-)} \right\rangle$$

Les fonctions d'ondes F_n sont calculées dans le potentiel électronique ainsi déterminé. Il n'existe pas de formule analytique pour la fonction d'onde vibrationnelle dans le cas général. Notons cependant qu'au voisinage des points tournants internes et externes de la molécule excitée, le potentiel peut-être linéarisé. La fonction d'onde vibrationnelle au voisinage de ce point est alors une fonction d'Airy. En particulier, au voisinage du point tournant externe R_0^n , pour un potentiel asymptotique excité en C_3/R^3 , on note :

$$\Delta_n = C_3/(R_0^n)^3 \quad , \quad a = \left(\frac{\hbar R_0^n}{6\mu\Delta_n}\right)^{1/3}$$

Alors :

$$F_n(R) = \frac{\sqrt{\pi}}{(aR_0^n)^{1/4}} \text{Airy}\left(\frac{R - R_0^n}{a}\right)$$

B.2 Calcul du taux

B.2.1 Evolution de la matrice densité

À l'instant $t=0$, on applique un laser de photoassociation pour forcer la réaction suivante :

$$Cs(6s) + Cs(6s) + \hbar\omega_L \rightarrow Cs_2^*(6s + 6p, |\Omega|_{(u,g)}^{(+,-)})$$

La transition radiative entre le niveau initial et le niveau final est une transition dipolaire. Le calcul développé dans la référence [8] montre, en utilisant l'équation d'évolution de la matrice densité, dans l'approximation des grandes longueurs d'onde, et après approximation du champ tournant qu'on peut considérer l'interaction comme une interaction dipolaire électrique entre deux niveaux moléculaires.

Nous sommes en présence d'un laser ω_{PA} . L'énergie E_f du niveau $|f\rangle$ est repérée par rapport à la limite de dissociation $6s+6s$, par la fréquence ω_1 . Les états du continuum initial sont notés $|\alpha\rangle$.

L'équation d'évolution de la matrice densité s'écrit en représentation interaction

$$i\hbar \frac{d}{dt} \sigma(t) = [\widetilde{W}, \sigma(t)] \quad (\text{B.1})$$

où $W = \vec{E} \cdot \overrightarrow{d}(\alpha, f) \cos(\omega_{PA}t)$

Nous cherchons à connaître la population du niveau $|f\rangle$ en fonction du temps. Le calcul consiste à développer l'équation B.1 à l'ordre 2. On a :

$$\sigma(t_f) = \sigma(0) + \frac{1}{i\hbar} \int_0^{t_f} dt \left[\widetilde{W}(t), \sigma(0) + \frac{1}{i\hbar} \int_0^t d\tau \left[\widetilde{W}(\tau), \sigma(0) \right] \right] \quad (\text{B.2})$$

Nous cherchons à calculer $\langle f | \sigma(t) | f \rangle$. Pour ce faire, il convient d'introduire les relations de fermeture dans l'équation B.2, entre chaque opérateur.

$$\int |\alpha\rangle \langle \alpha| d\alpha + |f\rangle \langle f| = 1$$

Les seuls termes de l'équation B.2 qui donnent une contribution non nulle sont les deux termes (complexes conjugués) où $\sigma(0)$ est au centre. Après intégration sur les temps, en faisant l'approximation du champ tournant, on calcule :

$$\langle f | \sigma(t) | f \rangle = \frac{1}{4\hbar^2} \int_0^\infty d\alpha \frac{\Lambda^3}{V} \left(\frac{3}{2\pi} \right)^{3/2} \exp\left(-\frac{E}{k_B T}\right) \left| \langle f | \vec{\mu} \cdot \vec{E} | i \rangle \right|^2 \frac{4 \sin^2\left(\frac{(\delta + \omega_\alpha)t}{2}\right)}{(\delta + \omega_\alpha)^2} \quad (\text{B.3})$$

où on a écrit : $\frac{4 \sin^2\left(\frac{(\delta + \omega_\alpha)t}{2}\right)}{(\delta + \omega_\alpha)^2} = 2\pi t \delta_t((\delta + \omega_\alpha))$. δ_t est une fonction piquée en 0, de surface unité, et de largeur $1/t$. Aux temps longs δ_t se comporte dans l'intégrale comme un pic de Dirac, si bien que :

$$P(t) = \frac{\pi}{2\hbar} \left| \langle f | \vec{\mu} \cdot \vec{E} | i \rangle \right|^2 n(E_f = -\hbar\delta)t$$

Il s'agit en réalité de l'interaction d'un niveau lié et d'un continuum. On retrouve donc, naturellement, la règle d'or de Fermi (dont je rappelle la démonstration paragraphe C.1). Cette formule est essentielle. La densité d'état a été définie plus haut. Le terme $\eta(E_f = -\hbar\delta)$ exprime le caractère résonant de la photoassociation. On note E_r l'énergie de la résonance. $E_r = \hbar(\omega_n - \omega_{PA}) = \hbar\delta_r$. Le nombre de molécules formées est proportionnel à la durée de photoassociation.

B.2.2 Terme de couplage dipolaire

On cherche à calculer le terme $\langle f | \vec{\mu} \cdot \vec{E} | i \rangle$, en utilisant pour $|i\rangle$ et $|f\rangle$ les états définis précédemment. On a :

$$\langle f | \vec{\mu} \cdot \vec{E} | i \rangle = \langle \Omega, J', M_{J'}, m_{J'} | \sum_q (-1)^q \mu_q \cdot \varepsilon_{-q} | J, M_J, m_J, l, S, \Sigma \rangle$$

où on note : $\vec{\varepsilon}_0 = \vec{e}_z$; $\vec{\varepsilon}_{\pm 1} = \mp \frac{\vec{e}_x \pm i\vec{e}_y}{\sqrt{2}}$ On note E le champ électrique; il vaut : $E = \sqrt{\frac{2I_{PA}}{\varepsilon_0 c}}$, où I_{PA} est l'intensité laser. On note de plus :

$$d(R) = \int d\omega \sum_{M_l, M_S} \left\langle \left(D_{m_{J'}, M_{J'}}^{J'}(\omega) \right)^* \left| \sum_{qq'} (-1)^q \varepsilon_{-q} D_{q', q}^k(\omega) \mu_{q'} \right| C_{l, M_l, S, M_S}^{J, M_J} Y_l^{M_l} D_{M_S, m_S}^S(\omega) \right\rangle$$

Alors,

$$\langle f | \vec{\mu} \cdot \vec{E} | i \rangle = E \int R^2 dR \frac{F_n(R)}{R} d(R) \frac{G_l^S(R)}{R} = E \int dR F_n(R) d(R) G_l^S(R)$$

Calculons explicitement $d(R)$; on peut écrire (voir [12] 4.17 (1)) :

$$Y_l^{M_l} = \sqrt{\frac{2l+1}{4\pi}} D_{0, -M_l}^l$$

et par ailleurs, on peut montrer (en utilisant la formule 4.6.2(5) de la référence [12], qui est un simple calcul angulaire) :

$$\begin{aligned} \sum_{M_l, M_S} D_{0, -M_l}^l(\omega) D_{-m_S, -M_S}^S(\omega) C_{l, M_l, S, M_S}^{J, M_J} &= C_{l, m_l, S, m_S}^{J, M_J} D_{m_J, M_J}^J(\omega) \\ &= (-1)^{l+S-m_J} \sqrt{2J+1} \begin{pmatrix} S & l & J \\ m_S & 0 & -m_S \end{pmatrix} D_{m_J, M_J}^J(\omega) \end{aligned}$$

Donc, en suivant le même calcul que celui effectué paragraphe A.6, on a :

$$\begin{aligned}
d(R) &= \sqrt{\frac{2l+1}{4\pi}} i^{J-J'} \sqrt{\frac{2J'+1}{4\pi}} \int d\omega \left(C_{l,m_l,S,m_S}^{J,m_J} D_{M_J,m_J}^J(\omega) \left(D_{m_{J'},M_{J'}}^{J'}(\omega) \right)^* \right. \\
&\quad \left. \sum_{qq'} (-1)^q \varepsilon_{-q} D_{q',q}^k(\omega) \mu_{q'} D_{m_J,M_J}^J(\omega) \right) \\
&= \sqrt{\frac{2l+1}{4\pi}} \sqrt{\frac{2J'+1}{4\pi}} i^{J-J'} (-1)^{m_{J'}-M_{J'}} \sum_{qq'} (-1)^q \varepsilon_{-q} (-1)^{l+S-m_J} 4\pi \sqrt{2J+1} \\
&\quad \begin{pmatrix} J & 1 & J' \\ m_J & q' & -m_{J'} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} J & 1 & J' \\ M_J & q & -M_{J'} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} S & l & J \\ m_S & 0 & -m_S \end{pmatrix} \langle |\Omega|_{(u,g)}^{(+,-)} | \mu_{q'} |^{2S+1} | \Sigma |_{(u,g)}^{(+,-)} \rangle
\end{aligned}$$

C'est-à-dire :

$$\begin{aligned}
d(R) &= \sqrt{2J+1} \sqrt{2J'+1} \sqrt{2l+1} \sum_{qq'} \varepsilon_{-q} (-1)^{q+l+S-m_J-M_{J'}+m_{J'}} i^{J-J'} \quad (B.4) \\
&\quad \begin{pmatrix} J & 1 & J' \\ \Sigma & q' & -\Omega' \end{pmatrix} \begin{pmatrix} J & 1 & J' \\ M_J & q & -M_{J'} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} S & l & J \\ \Sigma & 0 & -\Sigma \end{pmatrix} \langle |\Omega|_{(u,g)}^{(+,-)} | \mu_{q'} |^{2S+1} | \Sigma |_{(u,g)}^{(+,-)} \rangle
\end{aligned}$$

Le terme purement électronique $\langle |\Omega|_{(u,g)}^{(+,-)} | \mu_{q'} |^{2S+1} | \Sigma |_{(u,g)}^{(+,-)} \rangle$ est le moment dipolaire de la transition. Celui-ci est simplement relié au moment dipolaire atomique. On calcul ce terme en utilisant l'algèbre angulaire; il est relié au moment dipolaire de la transition $6s \rightarrow 6p$, lui-même bien connu, puisque

$$\Gamma = \frac{\omega^3 \mu^2}{3\pi \varepsilon_0 \hbar c^3} \quad (B.5)$$

$\Gamma/2\pi$ vaut pour le césium 5,23 MHz. Le principe consiste à exprimer les états moléculaires du cas c) en fonction de la base du cas a), et celles-ci comme combinaison linéaire des fonctions d'onde atomiques. Ceci permet d'évaluer le dipôle moléculaire en fonction du dipôle atomique (voir [75]). Nous ne donnons pas ici le détail du calcul d'algèbre angulaire nécessaire à l'évaluation de l'élément de matrice dipolaire. Nous en rappelons cependant le résultat [4] au chapitre I.

Exemple de calcul d'une règle de sélection : le cas de l'état 0_g^- .

L'équation B.4 permet de mettre en évidence les règles de sélection pour la réaction de photoassociation. Nous pouvons l'expliciter dans le cas de la photoassociation de l'état 0_g^- . Cet état étant un état g, on ne peut l'atteindre par transition dipolaire (impaire) que si l'état initial est un état u, donc triplet. On a donc $\vec{S} = \vec{1}$. Le facteur $\begin{pmatrix} l & S & J \\ 0 & \Sigma & -\Sigma \end{pmatrix}$ implique que seuls les J tels que

$\vec{J} - \vec{l} = \vec{1}$ interviennent dans la transition. D'après les facteurs $\begin{pmatrix} J & 1 & J' \\ \Sigma & q' & -\Omega \end{pmatrix}$, il apparaît que $\vec{J} = \vec{J}' + \vec{1}$. Par conséquent, $J' = l, l \pm 2, l \pm 1$.

Pour des raisons de symétrie, on montre [7] que $J' + l$ est pair. On a donc : $J' = l, l \pm 2$.

Par ailleurs, supposons que l'expérience de photoassociation soit effectuée à partir d'atomes polarisés dans l'état $F=4, M_F = +4$. Comme le montre la figure 1.16, cet état est purement triplet. On peut alors montrer, en utilisant des considérations de symétrie que seuls les ondes partielles paires participent au processus[7]. Ceci découle du caractère bosonique des atomes de césium. Nous en déduisons ce qui est notre critère pour déterminer si un échantillon d'atomes est polarisé dans l'état $F=4, M_F = +4$: si l'échantillon d'atomes est polarisé, les raies de photoassociation impaire dans le spectre 0_g^- disparaissent.

B.2.3 Intégrale de recouvrement

On considère que le dipôle dépend peu de R . Le calcul du taux de photoassociation se ramène donc au calcul d'un recouvrement de fonctions d'onde

$$S(i, f) = \int_0^\infty F_n(R) G_l^S(R) dR$$

$G_l^S(R)$ est connu, et vaut à très longues distances comme nous l'avons indiqué au paragraphe A.5.1 :

$$\sqrt{\frac{2\mu}{\pi \hbar^2 k^2}} \sin(kR - l\frac{\pi}{2} + \delta_l(k))$$

Lorsque la température de l'échantillon est suffisamment froide, on peut remplacer $\delta_l(k)$ par $-ka$, où a est la longueur de diffusion. On calcule $F_n(R)$ à partir du puits de potentiel moléculaire. On peut ensuite calculer numériquement le recouvrement $S(i, f)$. Pour obtenir une expression analytique, on suit l'approximation suivante : $\Psi_n(R)$ oscille rapidement et est de faible amplitude presque partout, sauf au point de rebroussement classique extérieur de la molécule excitée, noté R_0^n . La seule contribution non négligeable à l'intégrale de recouvrement $S(i, f)$ est donné par la région proche du point tournant classique externe. Dans cette région, la fonction d'onde excitée peut être approximée par un fonction d'Airy, qui est la fonction propre au voisinage d'un potentiel linéaire en R . L'intégrale du produit de la fonction d'Airy et de $G_l^S(R)$ vaut environ $G_l^S(R_0^n)$. Ce résultat, qui est un cas particulier du principe de Franck-Condon, signifie que la photoassociation se produit à une distance fixe, qui est le point tournant externe de la molécule excitée.

On montre que, pour des ondes de collision $l=0$:

$$\int_0^\infty \sqrt{\frac{2\mu}{\pi\hbar^2 k^2}} \sin(kR + \delta_0(k)) \frac{\sqrt{\pi}}{(aR_0^n)^{1/4}} \text{Airy}\left(\frac{R - R_0^n}{a}\right) dR \simeq \left(3\frac{\hbar^2 k^2}{2\mu} \hbar\Delta_n\right)^{-1/4} \sin(kR_0^n + \delta_0(k)) \quad (\text{B.6})$$

Ce résultat est généralisable pour les ondes partielles plus élevées :

$$S(i, f) = \frac{kR_0^n}{\left(3\frac{\hbar^2 k^2}{2\mu} \hbar\Delta_n\right)^{1/4}} j_l(kR_0^n)$$

B.3 Taux de photoassociation

B.3.1 Taux de photoassociation

Dans le piège magnéto-optique, si N atomes sont présents, $N(N-1)/2$ paires peuvent subir la réaction de photoassociation. Le calcul du taux de photoassociation par atome s'écrit donc, d'après B.3 :

$$\Gamma_{PA} = \left(\frac{3}{2\pi}\right)^{3/2} \frac{\pi n}{2\varepsilon_0 c \hbar} I_{PA} \Lambda^3 \exp\left(-\frac{E_r}{k_B T}\right) (S(i, f))^2 d^2$$

n est la densité d'atomes à l'endroit où on photoassocie.

Ceci s'écrit, dans le cas de photoassociation d'atomes en onde s :

$$\Gamma_{PA} = \left(\frac{3}{2\pi}\right)^{3/2} \frac{\pi}{2\varepsilon_0 \hbar c} I_{PA} n \Lambda^3 \frac{1}{(3E_r \hbar \Delta_n)^{1/2}} \sin^2(k_r R_0^n + \delta_0(k_r)) \exp\left(-\frac{E_r}{k_B T}\right) d^2 = n I_{PA} \Xi \quad (\text{B.7})$$

Ξ résume tous les termes sauf la densité et l'intensité laser. d est proportionnel au dipôle atomique (la constante de proportionnalité est donnée au tableau du paragraphe 1.3.2). On peut donc écrire, en utilisant l'équation B.5 :

$$\Gamma_{PA} \propto \Gamma(\Lambda^3 n) \omega_{PA} (\lambda^3 n(\omega)) \frac{9}{8} \left(\frac{1}{2\pi}\right)^{5/2} \left[\frac{1}{(\delta_r \Delta_n)^{1/2}} \sin^2\left(\sqrt{\frac{2\mu\delta_r}{\hbar}} R_0^n + \delta_0(k_r)\right) \exp\left(-\frac{\hbar\delta_r}{k_B T}\right) \right] \quad (\text{B.8})$$

Le terme entre crochets fixe les conditions de résonance. Le premier terme est révélateur de la nature du processus. $n(\omega)$ est une densité de photons, qui vaut $\frac{I_{PA}}{\hbar\omega_{PA}c}$. Le taux de photoassociation est proportionnel à la densité atomique et à la densité de photons. Il s'agit d'un processus à trois corps, deux atomes et un photon. Ce processus est résonant. On note l'aspect symétrique de cette formule, dans laquelle photons et atomes jouent le même rôle.

L'intérêt de la spectroscopie à très basse température apparaît ici : seules les pulsations laser ω_{PA} très proches de la résonance ($\omega_{PA} \simeq \omega_1$) contribueront à la réaction de photoassociation. La

réaction de photoassociation ouvre la voie à une spectroscopie limitée par la seule largeur naturelle des niveaux considérés ($k_B T < \hbar \Gamma$). Par ailleurs, le taux de photoassociation est proportionnel au module carré de la fonction d'onde en un point de l'espace donné. Ce point est le point tournant externe de la molécule photoassociée. Il dépend du niveau moléculaire atteint. L'intensité des raies dans un spectre de photoassociation est ainsi révélatrice des modulations de la fonction d'onde des atomes en collision. Ce point est étudié précisément au chapitre III

Dans le cas de températures très faibles, l'équation B.8 s'écrit :

$$\Gamma_{PA} \propto \Gamma(\Lambda^3 n) \omega_{PA} (\lambda^3 n(\omega)) \frac{9}{4\pi} \left(\frac{1}{2\pi} \right)^{3/2} \frac{2\mu}{\hbar \Delta_n^{1/2}} \left[\sqrt{\delta_r} (R_0^n - a)^2 \exp\left(-\frac{\hbar \delta_r}{k_B T}\right) \right] \quad (\text{B.9})$$

B.3.2 Prise en compte de l'émission spontanée

traitement perturbatif suppose que le temps est court devant le temps d'évolution du système, c'est-à-dire l'inverse du taux de photoassociation. On considérera des temps courts devant la seconde (les taux de photoassociation typiques sont au maximum de quelques s^{-1} dans un piège magnéto-optique, comme on le verra dans le paragraphe 1.3.4).

D'autre part, nous avons supposé que le temps d'évolution du système est long, de sorte qu'on peut dans l'intégrale sur les énergies remplacer $\frac{4 \sin^2(\frac{(\delta + \omega_\alpha)t}{2})}{(\delta + \omega_\alpha)^2} = 2t\pi\delta_t(\delta + \omega_\alpha)$ par $2t\pi\delta(\delta + \omega_\alpha)$; ici, il convient que $1/t$ soit très inférieur à la largeur du continuum initialement peuplé, $\frac{k_B T}{\hbar}$. Le temps d'interaction doit donc être supérieur à 300 ns. Or la désexcitation radiative des molécules formées se produit après typiquement 30 ns. C'est-à-dire qu'on ne peut jamais considérer le temps d'interaction comme étant long. L'approximation temps long du traitement perturbatif exposé ci-dessus est donc non valide. On exprimera cependant le taux de photoassociation en tenant compte de l'émission spontanée en fonction du taux de photoassociation "idéal", sans émission spontanée, calculé ci-dessus.

Il faut donc considérer que, pour une paire d'atomes donnée, le temps d'interaction est limité par l'émission spontanée. C'est-à-dire qu'il faut remplacer dans l'équation B.3 la valeur $2\pi t\delta_t(\omega_\alpha)$ par $2\pi tL_\gamma(\omega_\alpha)$, où L_γ est une lorentzienne d'aire 1 et de largeur γ .

$$\langle 1 | \sigma(t) | 1 \rangle = \frac{\pi}{2\hbar} \int d\alpha \frac{\Lambda^3}{V} \left(\frac{3}{2\pi} \right)^{3/2} \exp\left(-\frac{\hbar\omega_\alpha}{k_B T}\right) |\langle f | d.E | i \rangle|^2 \frac{1}{\pi} \frac{\gamma}{(\delta + \omega_\alpha)^2 + \gamma^2} t$$

Cela revient à supposer qu'on ne photoassocie que pendant un temps $1/\gamma$ où γ est la largeur naturelle du niveau excité.

Ceci permet d'évaluer le taux de photoassociation en fonction du décalage à résonance δ . Il est utile d'exprimer ce taux de photoassociation en tenant compte de la largeur naturelle du niveau excité, en fonction du taux calculé en ignorant l'émission spontanée. On suppose que le recouvrement entre les fonctions d'onde est indépendant de α , ce qui est vrai pour les atomes très

froids, et pour les distances interatomiques pas trop grandes¹. Alors, si on suppose le décalage supérieur à la largeur du continuum, on a, dans le cas d'une collision en onde s :

$$\Gamma_{PA}^\gamma(\delta) \approx \frac{\pi}{2\hbar} \int dE \exp(-E/k_B T) \frac{\Lambda^3}{V} \left(\frac{3}{2\pi}\right)^{3/2} |\langle f | d \cdot E | i \rangle|^2 \frac{1}{\pi} \frac{\gamma}{\gamma^2 + \delta^2} \approx \Gamma_{PA} \left(\frac{k_B T}{2}\right) \frac{2\kappa k_B T \gamma}{\pi \hbar (\gamma^2 + \delta^2)} \quad (\text{B.10})$$

où Γ_{PA} est la formule écrite en B.7. κ est défini par l'équation suivante :

$$\exp(1/2) \int dE \exp(-E/k_B T) \sqrt{E} = \kappa (k_B T)^{3/2}$$

κ vaut 1,46.

L'expression B.10 est une expression approchée. Le taux de photoassociation Γ_{PA} est calculé pour une énergie $E=k_B T/2$. Il s'agit du maximum du taux de photoassociation. La réalité est plus complexe, puisque tous les atomes en collision n'ont pas une énergie de collision $k_B T/2$. La résonance de la réaction de photoassociation dépend de l'énergie de collision E . La largeur totale de la raie est une convolution de la largeur γ et de la largeur du continuum. Il convient par ailleurs de convoluer cette valeur avec la largeur du laser.

L'expression B.10 est cependant utile car elle offre une forme analytique du taux de photoassociation tenant compte de la largeur naturelle.

¹Un développement limité de la fonction d'onde WKB A.10 montre que l'amplitude de celle-ci varie comme $(1 - \frac{1}{4} \frac{k_B T}{V})$. Aux distances où la photoassociation a lieu, $V=C_6/R^6$ est de l'ordre de 2 cm^{-1} , et $k_B T$ de l'ordre de 2,5 MHz. On peut donc complètement négliger l'effet de la température sur l'amplitude de la fonction d'onde; quant à l'effet sur la phase, il est aussi négligeable tant que $k_B T \ll V$: en effet, on a alors $\frac{1}{\hbar} \int p(R') dR' \simeq \frac{1}{\hbar} \int \sqrt{2mV(1 + \frac{k_B T}{2V})} dR'$.

Annexe C

Interaction entre des électrons piégés dans une charge d'espace et le rayonnement du corps noir.

C.1 Rappel : émission spontanée et déplacement de Lamb ; règle d'Or de Fermi.

Nous allons ici présenter un court rappel du principe de calcul de la largeur naturelle d'un système à deux niveaux couplés, par un potentiel V , à un continuum large. Ce calcul est très classique, et peut être trouvé par exemple dans la référence [45]. Nous en rappelons ici le principe car nous avons rencontré dans ce manuscrit plusieurs situations d'apparence complètement différente, qui peuvent cependant être modélisées de cette manière. Il s'agit ici de calculer le taux d'absorption du rayonnement du corps noir par un électron oscillant dans une charge d'espace. Nous avons vu en annexe B que la théorie de la photoassociation est équivalente à une règle d'Or de Fermi. Et, au cours du chapitre III, nous étudions une résonance de Feshbach, qu'on peut modéliser par le même formalisme. Seule la nature du système physique et du couplage V change d'un cas à l'autre.

On considère un système à deux niveaux $\{|1\rangle, |2\rangle\}$, séparés d'une énergie $\hbar\omega_0$, couplé par V à un continuum d'états i , repérés par leur énergie $E_i = \hbar\omega_i$. On peut écrire, pour un tel système l'équation de Schrödinger dépendant du temps en représentation interaction :

$$i\hbar\frac{\partial\tilde{\psi}}{\partial t} = \tilde{V}\tilde{\psi} \quad , \quad \text{avec } \tilde{V} = \exp(iH_0t)V \exp(-iH_0t)$$

On écrit le vecteur d'état du système sous la forme :

$$\tilde{\psi} = \int di b_i(t) |2, i\rangle + \int dj a_j(t) |1, j\rangle$$

Dans le cas où le couplage V n'a pas d'éléments diagonaux, on a :

$$\begin{aligned} i\hbar \frac{\partial b_{i_0}(t)}{\partial t} &= \int \langle 2, i_0 | V | 1, j \rangle \exp(i(\omega_{i_0} + \omega_0 - \omega_j)t) b_j(t) \\ b_j(t) &= \frac{1}{i\hbar} \int_0^t dt' \int di \langle 1, j | V | 2, i \rangle \exp(-i(\omega_i + \omega_0 - \omega_j)t') b_i(t') \end{aligned}$$

et donc :

$$-\hbar^2 \frac{\partial b_{i_0}(t)}{\partial t} = \int_0^t dt' \int di dj \langle 1, j | V | 2, i \rangle \langle 2, i_0 | V | 1, j \rangle \exp(-i(\omega_i + \omega_0 - \omega_j)t') \exp(i(\omega_{i_0} + \omega_0 - \omega_j)t) b_i(t')$$

Si on néglige les termes de cohérence entre les états du continuum, cette équation s'écrit :

$$-\hbar^2 \frac{\partial b_{i_0}(t)}{\partial t} = \int_0^t d\tau \int dj |\langle 1, j | V | 2, i_0 \rangle|^2 \exp(i(\omega_{i_0} + \omega_0 - \omega_j)\tau) b_{i_0}(t - \tau)$$

$f(\tau) = \int dj |\langle 1, j | V | 2, i_0 \rangle|^2 \exp(i(\omega_{i_0} + \omega_0 - \omega_j)\tau)$ apparaît comme la transformée de Fourier de la distribution spectrale du couplage. Dans le cas où le continuum est large, $f(\tau)$ est très centrée sur 0, si bien qu'on peut remplacer $b_{i_0}(t - \tau)$ par $b_{i_0}(t)$. On en déduit :

$$\frac{\partial b_{i_0}(t)}{\partial t} = -b_{i_0}(t) \frac{1}{\hbar^2} \int dj |\langle 1, j | V | 2, i_0 \rangle|^2 \underbrace{\int_0^t d\tau \exp(i(\omega_{i_0} + \omega_0 - \omega_j)\tau)}_{\pi \delta(\omega_{i_0} + \omega_0 - \omega_j) + iPP\left(\frac{1}{\omega_{i_0} + \omega_0 - \omega_j}\right)} \quad (C.1)$$

On en déduit d'une part un shift, dû à la partie imaginaire (équivalent au déplacement de Lamb), et d'autre part une largeur naturelle :

$$\hbar\Gamma = \pi \int dj |\langle 1, j | V | 2, i_0 \rangle|^2 \delta(\omega_{i_0} + \omega_0 - \omega_j)$$

$$\hbar\Delta = \int d\omega_j |\langle 1, j | V | 2, i_0 \rangle|^2 PP\left(\frac{1}{\omega_{i_0} + \omega_0 - \omega_j}\right)$$

Dans le cas particulier de l'émission spontanée, l'état du continuum i_0 est le vide. V est l'opérateur $\frac{-q}{m} \vec{A} \cdot \vec{p}$, avec

$$\vec{A} = \sum_i A_i \left(a_i \vec{\varepsilon}_i \exp(i \vec{k}_i \cdot \vec{R}) + a_i^\dagger \vec{\varepsilon}_i^* \exp(-i \vec{k}_i \cdot \vec{R}) \right)$$

Si n est le nombre de photons, on a : $\langle n+1 | a^+ | n \rangle = \sqrt{n+1}$. Dans le cas de l'émission spontanée, $n=1$, et on a l'équation très connue :

$$\Gamma = \frac{\omega^3 \mu^2}{3\pi\epsilon_0 \hbar c^3} \quad (\text{C.2})$$

Dans le cas particulier de l'interaction d'un électron avec le rayonnement du corps noir, l'état du continuum i_0 est caractérisé par le nombre d'occupation du rayonnement du corps noir pour chaque mode (voir équation 2.6) ; l'opérateur d'interaction V est le même que précédemment, si bien que le taux d'absorption par l'électron de photons du rayonnement du corps noir est donné par :

$$\Omega = \Gamma n(\nu_0). \quad (\text{C.3})$$

Cette formule nous permet de calculer le réchauffement éventuel des électrons dans la charge d'espace par absorption du rayonnement du corps noir¹, à partir de la largeur naturelle du système à deux niveaux considéré. Nous allons maintenant calculer la largeur naturelle des niveaux liés dans la charge d'espace.

C.2 Dipôle et largeur naturelle des niveaux de la charge d'espace

Le fond du "piège à électrons" décrit au chapitre II est tout simplement un puits harmonique. Il est aisé de calculer l'écartement en énergie entre deux niveaux, ainsi que le dipôle d'interaction. Cependant, le calcul du dipôle fait apparaître des règles de sélection très strictes ($\Delta n = \pm 1$) liées à la symétrie des fonctions d'onde ; ces règles de sélection ne sont pas ici réalistes, vu les approximations sous-tendues par notre modèle.

Le modèle du puits carré est de ce point de vue bien moins spécifique. Nous allons donc calculer le dipôle d'interaction entre deux niveaux du puits carré, avant d'évaluer le taux d'absorption de photons du corps noir dans ce puits.

Soit un puits carré de dimension 1, et de largeur L . Les fonctions d'onde liées dans un tel potentiel sont de la forme $\sin(kx)$. Le calcul du dipôle entre deux niveaux fait apparaître l'intégrale

$$\int \sin(px) \sin(lx) x dx$$

¹Notons qu'on peut évaluer Ω par le raisonnement suivant : pour un système à deux niveaux séparés d'une énergie $h\nu_0$, les fluctuations du vide, équivalentes à un nombre moyen d'occupation $1/2$, conduisent à un taux de transition Γ égal à la largeur naturelle du niveau excité. Le taux de transition Ω entre ces deux niveaux électroniques est donc la largeur naturelle, multiplié par le nombre de photons du continuum à résonance avec la transition.

Calculer cette intégrale revient à calculer les intégrales

$$\int \exp(ikx) x dx$$

pour des valeurs de k valant

$$\frac{\pi}{L}(n+p), \frac{\pi}{L}(n-p), \frac{\pi}{L}(n+p+1/2), \frac{\pi}{L}(n-p-1/2)$$

où n et p sont des entiers naturels. Après sommation des différentes contributions, seuls restent les termes en

$$\frac{2iL^2}{((n+p+1/2)\pi)^2}, \frac{2iL^2}{((n-p-1/2)\pi)^2}$$

Si on suppose qu'au départ l'électron est dans le niveau le plus bas, le dipôle s'écrit en L/p^2 . On peut alors écrire la largeur naturelle pour le système à deux niveaux (1,p) :

$$\Gamma(1,p) = \frac{\omega(p)^3 \mu(p)^2}{3\pi\epsilon_0 \hbar c^3}, \omega(p) = \frac{\hbar\pi^2}{2L^2 m} p^2$$

Γ correspond à un temps de vie dû à l'interaction du système à deux niveaux avec 1/2 photon du corps noir -fluctuations du vide à la fréquence ω .

Puissance absorbée

L'énergie par unité de temps F apportée par le corps noir à l'électron piégé dans la charge d'espace vaut donc

$$\sum \Gamma(1,p) \hbar\omega(p) n(\omega(p))$$

où $n(\nu)$ est défini à l'équation 2.7.

$$F \approx \frac{P^3 k_B T \hbar^2 \pi e^2}{72 L^4 m^3 \epsilon_0 c^3}$$

où P est le nombre total de niveaux dans le puits carré. Ce nombre, pour une profondeur typique du puits carré de 200 cm^{-1} , et pour $L = 100 \mu m$, vaut environ $2,5 \cdot 10^4$.

Si on généralise à trois dimensions le résultat suivant, il faut remplacer la somme sur p par la somme sur p_1, p_2, p_3 :

$$\Theta = \sum \frac{(p_1 + p_2 + p_3)^6}{p_1^4 p_2^4 p_3^4}$$

si bien que :

$$F \approx \frac{\Theta k_B T \hbar^2 \pi e^2}{24 L^4 m^3 \epsilon_0 c^3}$$

Θ ne diffère pas notablement de P^3 .

Ceci donne un taux d'accumulation d'énergie de l'ordre de $6 \text{ cm}^{-1} \text{ s}^{-1}$, ce qui est négligeable aux échelles de temps et d'énergie qui nous intéressent (la microseconde et la dizaine de cm^{-1}). Il est extrêmement peu probable que le corps noir chauffe sensiblement les électrons de la charge d'espace.

Le mécanisme d'absorption du rayonnement du corps noir par les électrons oscillant dans la charge d'espace semble insuffisant pour chauffer sensiblement les électrons dans les quelques microsecondes au cours desquelles le plasma se forme.

C.3 Rayonnement des électrons

Nous avons également évalué la perte d'énergie de l'électron sous l'effet du rayonnement qu'il émet en oscillant dans la charge d'espace. Une charge accélérée émet un rayonnement (on peut se reporter au livre de Landau[22]). On peut en particulier calculer le champ magnétique émis :

$$\vec{B} = \frac{e}{c^2 R} \frac{\partial^2 \vec{r}}{\partial t^2} \times \vec{n}$$

Le vecteur de Poynting s'écrit :

$$\vec{\Pi} = c \frac{B^2}{4\pi} \vec{n}$$

si bien que l'énergie rayonnée par unité de temps vaut (en omettant les facteur angulaires, de l'ordre de 1) :

$$\frac{dE}{dt} = - \frac{e^2}{c^3 \epsilon_0} \left| \frac{\partial^2 \vec{r}}{\partial t^2} \right|^2$$

ce qui s'écrit dans notre cas :

$$\frac{dE}{dt} = - \frac{e^6 N^2}{32 \pi^2 \epsilon_0^3 c^3 m_e^2 R^4}$$

Pour $N=2000$ et $R=100 \mu m$, cela correspond à une perte d'énergie de $0,007 \text{ cm}^{-1}/s$, ce qui est négligeable au regard des énergies et des temps considérés dans les expériences du chapitre II.

Bibliographie

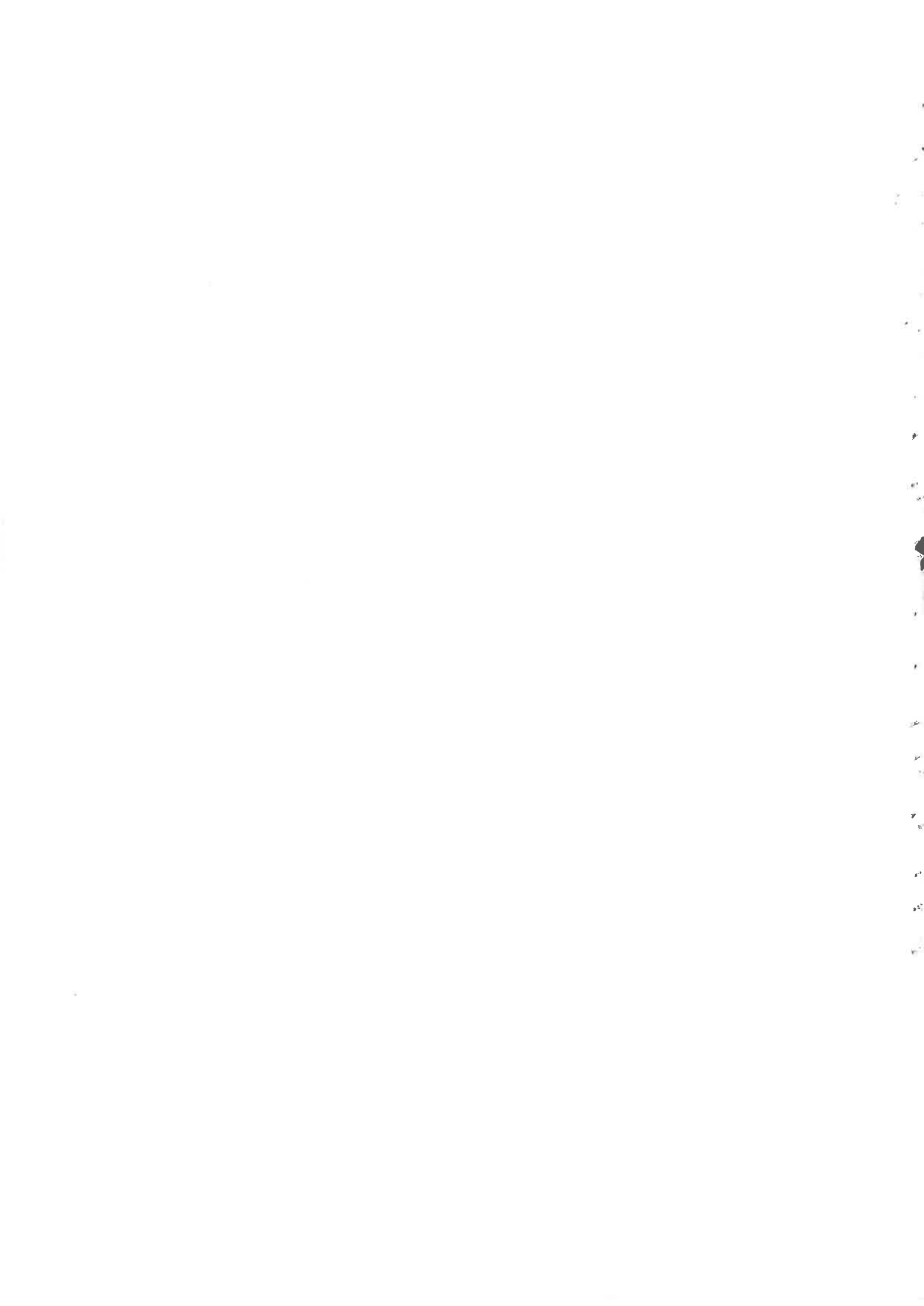
- [1] T.F.Gallagher, Rydberg Atoms, Cambridge University Press (1994)
- [2] R. J. LeRoy, R.B. Bernstein, J. Chem. Phys, 52,8, 3869 (1970)
- [3] Landau, Lifshitz, Quantum Mechanics, Pergamon Press (1958)
- [4] C. Drag, Thèse de 3ème cycle, Université Paris XI (2000)
- [5] M. Drewsen, P. Laurent, A.Nadir, G. Santarelli, A. Clairon, Y. Castin, D. Grison, et C. Salomon, Appl. phys. B 59,283 (1994)
- [6] C.G. Townsend, N.H. Edwards, C.J. Cooper, K.P. Zetie, C.J. Foot, A.M. Steane, P. Szcifgiser, H. Perrin, et J. Dalibard, Phys. Rev. A 52, 1423 (1995)
- [7] D. Comparat, Thèse de troisième cycle, Université Paris XI (1999)
- [8] P. Pillet, A. Crubellier, A. Bleton, O. Dulieu, P. Nosbaum, I. Mourachko, and F. Masnou-Seeuws, J. Phys. B., At. Mol. Opt. Phys. 30, 2801-2820 (1997)
- [9] J. Dalibard, C. Cohen-Tannoudji, J. Opt. Soc. Am. B 6, 2023 (1989)
- [10] C. Drag, B. Laburthe Tolra, O. Dulieu, D. Comparat, M. Vatasescu, S. Boussen, S. Guibal, A. Crubellier, and P. Pillet, IEEE 36, 12, 1378 (2000)
- [11] G. F. Gribakin and V. V. Flambaum Phys. Rev. A 48,546 (1993)
- [12] D. A. Varshalovitch, A. N. Moskalev, V. K. Khersonskii, Quantum theory of Angular Momentum, World Scientific (1988)
- [13] R.E. Olson, Phys. Rev. Lett. 43, 126, (1979)
- [14] W.P. Spencer, A.G. Vaidyanathan, and D. Kleppner, Phys. Rev. A 26, 1490 (1982)
- [15] G Vitrant, J.M. Raimond, M. Gross and S. Haroche, J. Phys. B; At. Mol. Phys. 15 L49 (1982)
- [16] S. Kulin, T.C. Killian, S.D. Bergeson, and S.L. Rolston, Phys. Rev. Lett, 85, 318 (2000)
- [17] M.P. Robinson, B. Laburthe Tolra, Michael W. Noel, T.F. Gallagher, and P. Pillet, Phys. Rev. Lett 85, 4466 (2000)
- [18] T.C. Killian, S. Kulin, S.D. Bergeson, L.A. Orozco, C. Orzel, and S.L. Rolston, Phys. Rev. Lett 83, 4776 (1999)
- [19] I.C. Percival and D. Richards Advances in atomic and molecular physics 11, p1 (1975)

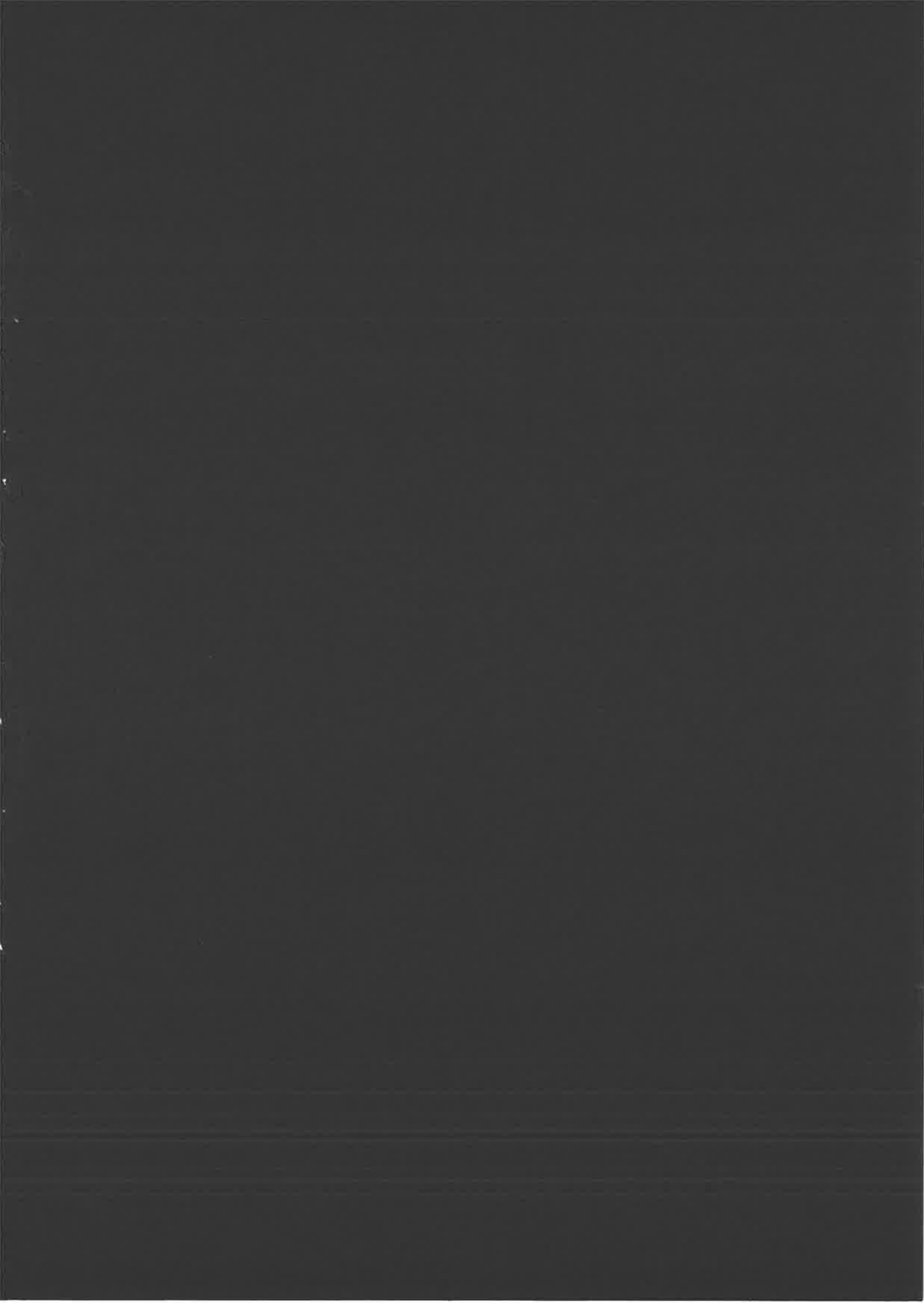
- [20] J.L. Delcroix, A. Bers, Physique des plasmas, Savoirs Actuels, CNRS Editions (1994)
- [21] I. Mourachko, D. Comparat, F. de Tomasi, A. Fioretti, P. Nosbaum, V.M. Akulin, and P. Pillet, Phys. Rev. Lett, 80, 253 (1998)
- [22] Landau et Lifchitz, Théorie du champ, Edition MIR (1966)
- [23] T. C. Killian, M. J. Lim, S. Kulin, R. Dumke, S. D. Bergeson, and S. L. Rolston, à paraître.
- [24] W. R. Anderson, J. R. Veale, and T. F. Gallagher, Phys. Rev. Lett, 80, 249 (1998)
- [25] D. Steele, Spontaneous Cold plasma, Physical Review Focus (17 novembre 2000), <http://focus.aps.org/>
- [26] Eyler, P. Gould, Physics World, <http://physicsweb.org/article/world/14/3/3>
- [27] J. J. Bollinger and D. J. Wineland, Phys. Rev. Lett, 53, 348 (1984)
- [28] F. Diedrich, E. Peik, J. M. Chen, W. Quint, and H. Walther, Phys. Rev. Lett, 59, 2931 (1987)
- [29] D. J. Wineland, J. C. Bergquist, W. M. Itano, J. J. Bollinger, and C. H. Manney, Phys. Rev. Lett, 59, 2935 (1987)
- [30] A. Fioretti, D. Comparat, C. Drag, T. F. Gallagher, and P. Pillet, Phys. Rev. Lett, 82, 1839 (1999)
- [31] R. J. Le Roy Canadian Journal of Physics, 50, 953 (1972)
- [32] A. Fioretti, D. Comparat, C. Drag, C. Amiot, O. Dulieu, F. Masnou-Seeuws, and P. Pillet, EPJD, 5, 389 (1999)
- [33] S. Gerstenkorn, J. Vergès, et J. Chevillard (1982)
- [34] D. Comparat, C. Drag, A. Fioretti, O. Dulieu, and P. Pillet, JMS, 195, 229 (1999)
- [35] C. Drag, B. Laburthe Tolra, B. T'Jampens, D. Comparat, M. Allegrini, A. Crubellier, and P. Pillet, Phys. Rev. Lett, 85, 1408 (2000)
- [36] A. Crubellier, O. Dulieu, F. Masnou-Seeuws, M. Elbs, H. Knöckel, and E. Tiemann, EPJD, 6, 211 (1999)
- [37] Paul J. Leo, Carl J. Williams, and Paul S. Julienne, Phys. Rev. Lett, 85, 2721 (2000)
- [38] Cheng Chin, Vladan Vuletic, Andrew J. Kerman, and Steven Chu, Phys. Rev. Lett, 85, 2717 (2000)
- [39] F. K. Fatemi, K. M. Jones, and P. D. Lett, Phys. Rev. Lett, 85, 4462 (2000)
- [40] M. Arndt, M. Ben Dahan, D. Guéry-Odelin, M. W. Reynolds, and J. Dalibard, Phys. Rev. Lett, 79, 625 (1997)
- [41] V. Vuletic, A. J. Kerman, C. Chin, and S. Chu, Phys. Rev. Lett, 82, 1406 (1999)
- [42] A. Derevianko, W. R. Johnson, M. S. Safronova, and J. F. Babb, Phys. Rev. Lett, 82, 3589 (1999)

- [43] D. Comparat, C. Drag, B. Laburthe Tolra, A. Fioretti, P. Pillet, A. Crubellier, O. Dulieu, and F. Masnou-Seeuws, *E.P.J.D*, 11, 59 (2000)
- [44] A. J. Moerdijk, B. J. Verhaar, and A. Axelsson, *Phys. Rev. A.*, 51, 4852 (1995)
- [45] C. Cohen-Tannoudji, J. Dupont-Roc, G. Grynberg, *Photons et atomes*, CNRS (1987)
- [46] S. Inouye, M. R. Andrews, J. Stenger, H.-J. Miesner, D. M. Stamper-Kurn, and W. Ketterle, *Nature*, 392, 151 (1998)
- [47] N. R. Claussen, S. L. Cornish, J. L. Roberts, E. A. Cornell, and C. E. Wieman, *Atomic Physics, ICAP 2000*, 325 (2000)
- [48] E. Timmermans, P. Tommasini, M. Hussein, A. Kerman, *Physics Reports* 315, 199 (1999)
- [49] E. R. I. Abraham, W. I. McAlexander, C. A. Sackett, and R. Hulet, *Phys. Rev. Lett*, 74, 1315 (1995)
- [50] C. C. Tsai, R. S. Freeland, J. M. Vogels, H. M. J. M. Boesten, B. J. Verhaar, and D. J. Heinzen, *Phys. Rev. Lett*, 79, 1245 (1997)
- [51] M. Vatasescu, O. Dulieu, C. Amiot, D. Comparat, C. Drag, V. Kokoouline, F. Masnou-Seeuws, P. Pillet, *Phys. Rev. A* 61, 044701 (2000)
- [52] J. Söding, D. Guéry-Odelin, P. Desbiolles, G. Ferrari, and J. Dalibard, *Phys. Rev. Lett*, 80, 1869 (1998)
- [53] P. J. Leo, E. Tiesinga, P. S. Julienne, D. K. Walter, S. Kadlecek, and T. G. Walker, *Phys. Rev. Lett*, 81, 1389 (1998)
- [54] J. Stenger, S. Inouye, M. R. Andrews, H.-J. Miesner, D. M. Stamper-Kurn, and W. Ketterle, *Phys. Rev. Lett*, 82, 2422 (1999)
- [55] E. R. I. Abraham, W. I. McAlexander, J. M. Gerton, and R. G. Hulet, *Phys. Rev. A.*, 53, R3713 (1996)
- [56] J. R. Gardner, R. A. Cline, J. D. Miller, D. J. Heinzen, H. M. J. M. Boesten, and B. J. Verhaar, *Phys. Rev. Lett*, 74, 3764 (1995)
- [57] R. Wynar et al, *Science* 287, 1016 (2000)
- [58] B. Laburthe Tolra, C. Drag, P. Pillet, à paraître dans *Phys. Rev. A*.
- [59] C. M. Dion, C. Drag, O. Dulieu, B. Laburthe Tolra, F. Masnou-Seeuws, P. Pillet, *Phys. Rev. Lett.*, 86, 2253 (2001)
- [60] A. Fioretti, D. Comparat, A. Crubellier, O. Dulieu, F. Masnou-Seeuws, P. Pillet, *Phys. Rev. Lett.* 80, 440 (1998)
- [61] A. N. Nikolov, J. R. Ensher, E. E. Eyler, H. Wang, W. C. Stwalley, and P. L. Gould, *Phys. Rev. Lett* 84, 246 (2000)
- [62] A. N. Nikolov, E. E. Eyler, X. T. Wang, J. Li, H. Wang, W. C. Stwalley, and P. L. Gould, *Phys. Rev. Let.* 82, 703 (1999)

- [63] C. Gabbanini, A. Fioretti, A. Lucchesini, S. Gozzini, and M. Mazzoni, *Phys. Rev.Let.* 84, 2814 (2000)
- [64] D. Comparat, C. Drag, B. Laburthe Tolra, A. Fioretti, P. Pillet, A. Crubellier, O. Dulieu, and F. Masnou-Seeuws, *EPJD* 11,59-71 (2000)
- [65] W. Stwalley, Y. Uang, G. Pichler, *Phys. Rev .Lett* 41, 1164 (1978)
- [66] C. Cohen-Tannoudji, Bernard Diu, Franck Laloë *Mécanique Quantique*, Hermann (1973)
- [67] B. R. Judd, *Angular momentum theory for diatomic molecules*, Academic Press (1975)
- [68] Bergeman et al *PRA* 35 p1535 (1987)
- [69] T. Takekoshi, B. M. Patterson, and R. J. Knize, *Phys. Rev. Lett* 81, 5105 (1998)
- [70] J. D. Weinstein, R. deCarvalho, T. Guillet, B. Friedrich, J. M. Doyle, *Nature*, 395, 148 (1998)
- [71] H. L. bethlem, G. Berden, F. M. H. Crompvoets, R. T. Jongma, A. J. A. van Roij, G. Meijer, *Nature*, 406, 491 (2000)
- [72] A. L. Migdall, J. V. Prodan, W. D. Phillips, T. H. Bergeman, H. J. Metcalf, *Phys. Rev. Lett* 54, 2596 (1985)
- [73] D. E. Pritchard, *Phys. Rev. Lett* 51, 1336 (1983)
- [74] W. Petrich, M. H. Anderson, J. R. Ensher, E. A. Cornell, *Phys. Rev. Lett* 74, 3352 (1995)
- [75] Mihaela Vatasescu, Thèse de Troisième Cycle, Université Paris XI (1999)
- [76] H. J. Metcalf, P. Van der Straten, *Laser Cooling and Trapping*, Springer (1999)
- [77] E. U. Condon, *Phys. Rev.*, 32, 858 (1928)
- [78] D.A. Steck, <http://www.ph.utexas.edu/~quantopt/resources.html>
- [79] I. Mourachko, Thèse de troisième Cycle, Université Paris XI (1999)
- [80] A. Fioretti, A. F. Molisch, J. H. Müller, P. Verkerk, M. Allegrini, *Optics Comm.*, 149, 415 (1998)
- [81] D. Sesko, T. Walker, C. Monroe, A. Gallagher, and C. Wieman, *Phys. Rev. Lett*, 63, 961 (1989)
- [82] A. Fioretti, *Tesi di Perfezionamento*, Pisa (1998)
- [83] Sir Nevill Mott, *Metal-Insulator Transitions*, Taylor & Francis (1990)
- [84] S.H. Patil and K.T. Tang, *J. Chem. Phys.* 106, 2298 (1997)
- [85] G. Hadinger, S. Magnier, M. Aubert-Frécon, *J. Mol. Spectrosc.* 175, 441 (1996)
- [86] J. M. Raimond, G. Vitrant, S. Haroche, *J. Phys. B., At. Mol. Phys*, 14, L655 (1981)
- [87] C. G. Townsend, N. H. Edwards, K. P. Zetie, C. J. Cooper, J. Rink, and C. J. Foot, *Phys. Rev. A*, 53, 1702 (1996)
- [88] D. Guéry-Odelin, J. Söding, P. Desbiolles, and J. Dalibard, *Europhys. Lett*, 44(1), 25 (1998)

- [89] V. Kokoouline, O. Dulieu, and F. Masnou-Seeuws, *Phys. Rev. A*, 62, 022504-1 (2000)
- [90] V. Kokoouline, Thèse de troisième Cycle, Université Paris XI (1999)
- [91] R. J. Rafac, C. E. Tanner, A. E. Livingston, and K. W. Kukla, *Phys. Rev. A*, 50, R1976 (1994)
- [92] C. H. Green, A. S. Dickinson, H. R. Sadeghpour, *Phys. Rev. Lett*, 85, 2458 (2000)
- [93] H.R. Thorsheim, J. Weiner, P.S. Julienne, *Phys. Rev. Lett*, 58, 2420 (1987)
- [94] E. Timmermans, P. Tommasini, R. Côté, M. Hussein, A. Kerman, *Phys. Rev. Lett*, 83, 2691 (1999)
- [95] M. Mackie, R. Kowalski, J. Javanainen, *Phys. Rev. Lett*, 84, 3803 (2000)
- [96] D. J. Heinzen, R. Wynar, P. D. Drummond, K. V. Kheruntsyan, *Phys. Rev. Lett*, 84, 5029 (2000)
- [97] K. Goral, M. Gajda, K. Rzazewski, *Phys. Rev. Lett*, 86, 1397 (2001)
- [98] Spies, Ph.D. Thesis, universitat Kaiserlautern (1989)
- [99] V. N. Ostrovsky, V. Kokoouline, E. Luc-Koenig, F. Masnou-Seeuws, *J. Phys. B., At. Mol. Opt. Phys.* 34 L27-38 (2001)
- [100] B. Girard, G. O. Sitz, R. N. Zare, N. Billy, J. Vigué, *J. Chem. Phys.*, 97 (1), 26-41 (1992)





Résumé

Nous avons observé l'évolution spontanée d'un gaz de Rydberg gelé vers un plasma ultra-froid neutre. Les atomes de Rydberg sont excités dans un piège magnéto-optique. Certains d'entre eux sont ionisés du fait de collisions ou de l'absorption du rayonnement du corps noir. Il se crée une charge d'espace. Lorsque celle-ci est suffisamment profonde, des électrons sont piégés. Il se produit un phénomène d'ionisation en avalanche de tous les atomes de Rydberg restant.

Dans la réaction de photoassociation, deux atomes en collision absorbent un photon et forment une molécule électroniquement excitée. Le taux de photoassociation mesuré dans nos conditions expérimentales est de 0,1 à 5 s⁻¹ par atome.

La spectroscopie de photoassociation est un outil puissant pour la détermination des paramètres collisionnels. Ainsi, les modulations d'intensité de spectres de photoassociation nous ont permis de déterminer la longueur de diffusion triplet du césium, et d'observer la modification de la longueur de diffusion des atomes de césium polarisés dans l'état $F=3$, $m_F=3$ au voisinage d'une résonance de Feshbach.

La réaction de photoassociation conduit à la possibilité de former des molécules froides par désexcitation radiative des molécules excitées. Les mécanismes favorables à la formation de molécules froides reposent sur l'existence de niveaux moléculaires excités pour lesquels la probabilité de présence à courte distance interatomique est importante.

De manière à produire des molécules froides toutes dans le même niveau ro-vibrationnel, nous avons réalisé une expérience de photoassociation Raman stimulée, qui consiste à stimuler la désexcitation radiative des molécules excitées vers un niveau unique du fondamental. Un taux de formation de molécules froides de 10³ s⁻¹ a été mesuré.

Enfin, nous avons réalisé un piège magnétique pour les molécules froides dans l'état triplet de plus basse énergie. Le temps de vie du piège à molécules est de l'ordre d'une seconde.

We have observed the spontaneous evolution of a frozen Rydberg gas into an ultra-cold neutral plasma. The Rydberg atoms are excited in a magneto-optical trap. Some of them are ionized due to collisions or to the absorption of the black body radiation. This produces a space charge, which finally traps some electrons. Then all the remaining Rydberg atoms ionize in an avalanche process.

In a photoassociation experiment, a pair of two colliding atoms absorbs a photon, to form an electronically excited molecule. The measured photoassociation rate in our experimental conditions stands between 0,1 and 5 molecules per second and per atom.

The photoassociative spectroscopy is a powerful tool for the determination of the atomic collisional parameters. Through the analysis of the line intensity modulations in a photoassociation spectrum, we measured the triplet scattering length of cesium, and we observed the variation of the scattering length of cesium atoms prepared in the polarized state $F=3$, $m_F=3$ when varying a magnetic field near a Feshbach resonance.

The photoassociation reaction leads to the possibility of producing cold molecules by radiative decay of the excited molecules. The mechanisms that are favourable for cold molecules production lay upon the existence of excited molecular levels for which the probability of presence at short interatomic distances is important.

To produce the cold molecules all in the same ro-vibrational level, we performed Raman stimulated photoassociation experiments, in which the radiative decay is stimulated towards a single level of the fundamental molecular state. A cold molecule formation rate of 10³ s⁻¹ has been obtained by this Raman scheme.

We have also built a magnetic trap for cold molecules in the lowest triplet state. The lifetime of the trap is on the order of one second.

Mots-clés

Plasma ultra-froid
Rydberg
Photoassociation
Longueur de diffusion

Résonance de Feshbach
Transition Raman stimulée
Piège magnétique
Effet Autler-Townes