

Orsay  
n° d'ordre :

UNIVERSITÉ DE PARIS - SUD  
CENTRE D'ORSAY

# THÈSE

présentée  
pour obtenir

**Le GRADE de DOCTEUR EN SCIENCES**

par

**Patrick NOSBAUM**

Sujet

**Contributions à l'étude des collisions et des interactions dans  
un gaz froid d'atomes de Rydberg de césium:**

- Entonnoir à atomes
- Spectroscopie de croisements évités
- Des collisions résonnantes au gaz de Rydberg gelé

Soutenue le 23 juillet 1996 à Orsay devant la Commission d'examen

M.	Jacques BAUDON	Rapporteur
M.	Jacques BOULMER	
M.	Claude FABRE	
M.	Pierre PILLET	
M.	Jean-Michel RAIMOND	Rapporteur



*A mes parents,  
A Nancy.*

I do not know what I may appear to the world,  
but to myself I seem to have been only like a boy  
playing on the sea-shore, and diverting myself  
in now and then finding a smoother pebble  
or a prettier shell than ordinary, whilst the great  
ocean of truth lay undiscovered before me.

Sir Isaac Newton



## Remerciements

En premier lieu, je tiens à remercier Mme Catherine Bréchnac de m'avoir accueilli dans son laboratoire, et M Jacques Bauche pour tous ses efforts afin d'y faciliter mon arrivée.

Le travail de cette thèse a été effectué sous la direction de M. Pierre Pillet. A cet endroit, je lui exprime toute ma reconnaissance et gratitude pour sa compétence qu'il a essayé de me faire partager avec tant de patience.

Je remercie de tout mon coeur M. Jacques Baudon et M. Jean-Michel Raimond de bien avoir voulu accepter de faire partie de mon jury de thèse en tant que rapporteurs. De même, je remercie M. Jacques Boulmer et M. Claude Fabre pour leur intérêt qu'ils ont porté à ma thèse en acceptant de participer au jury.

Very special thanks to Prof. T.F. Gallagher of the University of Virginia for his great work done in collaboration with our group. The second chapter of this thesis is based upon one of his many suggestions, and wouldn't exist without his help. Thank you Tom.

Je dirai un grand merci à mes deux "instructeurs lasers", Jin Yu, pour sa patience à me transmettre son savoir-faire concernant les diodes lasers, et Louis Cabaret en ce qui concerne les lasers à colorant et le laser Saphir:Titane.

De nombreuses autres personnes ont contribué au travail de cette thèse, notamment les thésards du groupe "atomes froids": Jouda Djemaa, Anthony Bleton et Igor Mourachko. Merci beaucoup pour la bonne ambiance de travail, facilitant celui-ci.

A cet endroit j'aimerais bien faire un petit clin d'oeil au "groupe de midi" (pas toujours au rendez-vous) avec lequel j'ai passé de bons et longs moments, me divertissant agréablement du travail. Merci les copains!

En y réfléchissant bien, il faut avouer qu'une multitude de personnes du laboratoire Aimé Cotton ont contribué au travail de cette thèse, que ce soit en mécanique, électronique ou physique. A cet endroit, j'exprime ma gratitude à toutes ces personnes.

Zu gudder lescht (déi lescht sin eeben déi bescht), ee grouesse Merci un meng Elteren an un meng Nancy fir hier grouess Gedold an Opmierksamkeet. Villmols Merci!

Le travail présenté dans ce mémoire a partiellement été financé par un contrat européen de capital humain et mobilité (Human Capital and Mobility Contract ERB CHRXCT930344) dans le cadre du réseau européen: Lasers, atoms and molecules: dynamical interactions.



the 1990s, the number of people in the world who are undernourished has increased from 600 million to 800 million (FAO 2001).

There are a number of reasons for this increase. One of the main reasons is the increase in the world population. The world population has increased from 5 billion in 1987 to 6 billion in 2000, and is projected to reach 9 billion by 2050 (FAO 2001). This increase in population has led to an increase in the demand for food, which has not been met by the current level of food production.

Another reason for the increase in undernourishment is the increase in the number of people who are living in poverty. The number of people living on less than \$1 per day has increased from 1.1 billion in 1987 to 1.2 billion in 2000 (FAO 2001). This increase in poverty has led to an increase in the number of people who are unable to afford the food that they need to live a healthy life.

A third reason for the increase in undernourishment is the increase in the number of people who are living in rural areas. The number of people living in rural areas has increased from 3.5 billion in 1987 to 4.5 billion in 2000 (FAO 2001). This increase in rural population has led to an increase in the number of people who are unable to access the food that they need to live a healthy life.

There are a number of ways in which the world can reduce the number of people who are undernourished. One way is to increase the level of food production. This can be done by increasing the amount of land that is used for agriculture, by increasing the amount of water that is used for irrigation, and by increasing the amount of fertilizer that is used. Another way is to reduce the number of people who are living in poverty. This can be done by increasing the minimum wage, by providing social security, and by providing access to credit.

A third way is to reduce the number of people who are living in rural areas. This can be done by providing access to education and health care, and by providing access to employment opportunities. A fourth way is to increase the amount of food that is available to people who are living in rural areas. This can be done by providing access to roads and markets, and by providing access to extension services.

There are a number of challenges that the world faces in reducing the number of people who are undernourished. One of the main challenges is the increase in the world population. The world population is projected to reach 9 billion by 2050, which will lead to an increase in the demand for food. Another challenge is the increase in the number of people who are living in poverty. This will lead to an increase in the number of people who are unable to afford the food that they need to live a healthy life.

A third challenge is the increase in the number of people who are living in rural areas. This will lead to an increase in the number of people who are unable to access the food that they need to live a healthy life. A fourth challenge is the increase in the amount of land that is used for agriculture. This will lead to an increase in the amount of water that is used for irrigation, and to an increase in the amount of fertilizer that is used.

There are a number of ways in which the world can overcome these challenges. One way is to increase the level of food production. This can be done by increasing the amount of land that is used for agriculture, by increasing the amount of water that is used for irrigation, and by increasing the amount of fertilizer that is used. Another way is to reduce the number of people who are living in poverty. This can be done by increasing the minimum wage, by providing social security, and by providing access to credit.

A third way is to reduce the number of people who are living in rural areas. This can be done by providing access to education and health care, and by providing access to employment opportunities. A fourth way is to increase the amount of food that is available to people who are living in rural areas. This can be done by providing access to roads and markets, and by providing access to extension services.

# Introduction générale

Le but de ce mémoire est l'étude de phénomènes de collisions et la mise en évidence d'effets collectifs dans un gaz d'atomes préalablement refroidis par laser. Le domaine des collisions froides apparaît avec les débuts des développements des pièges magnéto-optiques livrant des échantillons denses d'atomes froids. Le domaine des collisions froides qui peut apparaître comme un effet parasite pour l'obtention d'échantillons denses d'atomes froids intéresse des champs de recherche aussi différents que la métrologie, la spectroscopie à haute résolution, l'interférométrie, l'étude d'effets collectifs ou la réalisation de condensats de Bose-Einstein. Les premières études de collisions froides ont permis d'étudier les processus limitant la densité atomique dans un piège magnéto-optique, et le réchauffement causé par ces collisions [GALL 89], [SES 89], [BAR 92]. Des études théoriques sont entreprises pour déterminer l'influence des collisions froides sur la transition de l'horloge à césium pour cerner la précision ultime dans l'amélioration de la définition de l'étalon du temps en utilisant des atomes froids [TIE 92], [VER 93]. Dans un registre un peu différent, l'étude du processus de photoassociation d'atomes froids a permis d'obtenir de précieuses données spectroscopiques pour les dimères d'alcalins [THOR 87]. Les données spectroscopiques récoltées au cours de ces expériences livrent entre autre un paramètre très important qui détermine la possibilité d'obtenir une condensation Bose-Einstein à partir d'un certain atome. Ce paramètre est la longueur de diffusion qui si elle est négative interdit l'observation d'un condensat, mais conduit à un liquide ou un solide avant d'arriver dans le régime de condensation [STOO 94]. La longueur de diffusion peut être déterminée à l'aide de la position du dernier état vibrationnel excité du dimère d'alcalin considéré, position qui peut être mesurée dans des expériences de photoassociation. Ces études étaient surtout motivées par le fait de chercher à atteindre le régime de condensation Bose-Einstein dans un échantillon d'atomes froids, et d'étudier ces effets collectifs [AND 95]. Pour atteindre un tel régime il est indispensable de s'affranchir de toute collision dans l'échantillon d'atomes froids, il est donc nécessaire de les étudier pour trouver des moyens pour les éviter.

Jusqu'à ce jour que très peu d'études ont eu comme but d'étudier des processus de collisions froides en les comparant à des processus de collisions thermiques. Il apparaît que

dans le régime des très basses énergies les collisions sont totalement différentes des collisions thermiques. C'est dans ce cadre que viennent s'inscrire les expériences de collisions que nous avons choisies d'entreprendre et qui utilisent des atomes de Rydberg de césium. Les atomes de Rydberg sont des candidats idéaux pour étudier des collisions, car ils possèdent des sections efficaces très importantes, vu leur grande taille géométrique. De plus, à cause de leur grand moment dipolaire, ces atomes de Rydberg sont très sensibles à l'action de champs électriques. On peut par exemple leur appliquer un champ électrique pulsé de telle manière à leur arracher l'électron Rydberg. Ce fait permet de détecter efficacement et sélectivement des atomes se trouvant dans différents états de Rydberg en récoltant les ions résultants. Ces considérations nous ont motivés à choisir des atomes de Rydberg afin d'étudier des processus de collisions froides.

Le processus que l'on a choisi d'étudier à l'aide d'atomes de Rydberg est le processus de collisions résonnantes, où l'un des deux partenaires perd de l'énergie interne, tandis que l'autre gagne exactement la même quantité d'énergie interne [GAL 92]. Cette collision est un cas particulier des collisions de transfert d'énergie connues sous le terme anglais "energy pooling collisions". La condition de résonance fait apparaître une section efficace très importante pour ce processus et qui vaut plusieurs ordres de grandeurs fois la taille géométrique des atomes de Rydberg impliqués. La condition de résonance est aisée à satisfaire, lorsque l'on emploie des atomes de Rydberg. A cause de leur moment dipolaire important, les niveaux des atomes de Rydberg sont en effet facilement déplacés en énergie par la présence de champs électriques relativement faibles à l'aide de l'effet Stark. L'utilisation d'atomes de Rydberg permet ainsi d'étudier la forme des raies de résonances des collisions résonnantes en balayant lentement un champ électrique statique Stark autour de la valeur pour laquelle la condition de résonance est satisfaite [SAF 81]. Ce sont ces arguments qui nous ont décidés à étudier le processus de collision résonnante sur des atomes de Rydberg.

De nombreuses expériences furent menées sur le sujet des collisions résonnantes dans le passé, et ceci notamment pour le cas des atomes de Rydberg des alcalins [GAL 82], [STO 87], [THO 89]. Ces expériences effectués sur des jets atomiques thermiques livrent des raies de résonance de largeurs de l'ordre de quelques centaines de mégahertz. Ces largeurs sont très fines pour le domaine des collisions et viennent plutôt s'inscrire dans le domaine de la spectroscopie. D'après les développements théoriques qui ont accompagnés ces expériences, la largeur des raies de résonance est inversement proportionnelle à la vitesse de collision [GAL 94]. C'est ainsi que Thomson et al. [THO 90] ont réussi à trouver des raies de résonance ayant des largeurs de l'ordre du mégahertz dans un jet atomique sélectionné en vitesse par un chopper mécanique. De telles expériences ont livré des résultats plus précis pour

la valeur d'un défaut quantique du potassium que les mesures spectroscopiques réalisées auparavant [STO 87]. Ce régime où les temps de collisions commencent à devenir longs, pratiquement de l'ordre du temps d'interaction entre les atomes, est le régime que l'on devrait pouvoir observer sur des atomes froids d'un jet ralenti. La vitesse de collision est dans un tel cas de l'ordre de quelques mètres par seconde.

Dans un jet thermique le temps caractéristique d'une collision est toujours plus petit que le temps qu'on laisse aux atomes pour faire des collisions. Ces deux temps commencent à devenir du même ordre de grandeur dans un jet ralenti. On peut aller plus loin et essayer d'effectuer des expériences de collisions résonnantes sur des atomes ultra-froids, tels qu'ils existent dans un piège magnéto-optique à trois dimensions. Pour de tels atomes, la vitesse de collision devient de l'ordre de quelques centimètres par seconde, tandis que le temps de collision compte quelques centaines de microsecondes. Les atomes ultra-froids ne bougent donc pratiquement plus tout au long de leur collision et voient une interaction constante dans le temps. Une telle interaction présente des effets complètement différents par rapport aux collisions thermiques, et on peut espérer observer des effets collectifs entre les atomes de Rydberg situées dans l'échantillon ultra-froid. Le but des études de collisions dans cette thèse est de réaliser des mesures pour ces différents régimes pour observer la transition du régime des collisions à énergie thermique au régime des collisions ultra-froides, et caractériser les différences entre ces collisions.

Pour pouvoir effectuer des études de collisions entre atomes de Rydberg, il a été nécessaire de mettre en place certains outils permettant d'obtenir des échantillons d'atomes froids. Les deux dispositifs qui ont été développés à ce but sont des pièges magnéto-optiques, et qui au commencement de cette thèse, n'avaient pas été réalisés. Il a donc d'abord construit ces dispositifs avant de pouvoir faire des études de collisions froides. Le premier est un piège à deux dimensions qui permet de compresser un jet atomique ralenti et monocinétique de césium selon ses dimensions transverses et d'obtenir ainsi un jet atomique froid et dense [NEL 90], [RII 90]. L'optimisation de cette compression a été réalisée à l'aide de deux méthodes expérimentales basées sur l'orientation du moment magnétique de l'atome à l'entrée du piège selon le champ magnétique local. De plus, pour faciliter largement l'utilisation de ce piège magnéto-optique, il a été nécessaire de développer des systèmes lasers fiables et maniables. Ce point sera brièvement décrit dans le premier chapitre de cette thèse.

Il existe une différence fondamentale entre le piège à deux dimensions et celui à trois dimensions. Dans le cas à trois dimensions, on remplit le piège jusqu'à ce que les pertes égalent l'apport en atomes. On est en général très loin d'atteindre ce régime dans un piège à

deux dimensions. En effet, le principe du piège 2D est de compresser un jet atomique en un temps court, limité par le temps de vol de l'atome dans la zone d'interaction qui constitue le piège. Le processus de compression est donc dans ce cas un processus transitoire [YU 94]. Ce début de ce travail de thèse a consisté à mettre en marche un tel dispositif. Des études pour améliorer l'efficacité de la compression obtenue lors des résultats préliminaires ont ainsi mis en évidence une différence de comportement d'un tel piège dans le cas du césium comparé à l'atome de sodium. Le grand nombre de sous-niveaux pour le césium montre qu'il est nécessaire de préparer les atomes avant leur entrée dans le piège pour optimiser l'efficacité de celui-ci. Ces expériences de mise en route et d'études en vue d'amélioration du piège magnéto-optique à deux dimensions seront le sujet du premier chapitre de cette thèse.

Pour pouvoir effectuer des études de collisions entre atomes ultra-froids, on avait par ailleurs la possibilité d'utiliser un piège magnéto-optique à trois dimensions. A l'aide de ce dispositif, on a réalisé des études sur deux processus de collisions froides différents. Le premier processus est celui de la photoassociation de deux atomes de césium [THOR 87]. Ces expériences de collisions sont utilisées pour effectuer la spectroscopie du dimère de césium et ont pour l'instant livrées des résultats pour la plupart des alcalins [LET 93], [MIL 93], [ABR 95], [WAN 95]. Dans cette thèse, je n'aborderai cependant pas ce sujet, car ces expériences auxquelles j'ai participé font le sujet d'une autre thèse [BLE 96]. Je me contenterai donc de décrire le second processus de collisions froides qui a fait le sujet de nos études. De même ce piège qui a été conçu pour l'expérience de photoassociation sera succinctement décrit dans cette thèse.

Pour pouvoir entreprendre des études de collisions froides entre atomes de Rydberg, il est souhaitable de connaître les différentes interactions et leur comportement dans des champs électriques qui risquent d'influencer les signaux issus de collisions. Au cours de nos expériences, on utilise la méthode d'ionisation par une impulsion de champ électrique afin de détecter sélectivement les différents niveaux Rydberg [DUN 83]. Lors de ce processus, les différents niveaux Rydberg sont projetés par une impulsion de champ électrique vers des états Stark qui se trouvent dans le continuum d'ionisation. A un certain seuil de champ électrique, les électrons sont ainsi arrachés aux atomes de Rydberg, et on peut détecter ou bien l'électron ou l'ion Rydberg résultant de cette réaction. Pour pouvoir efficacement attribuer ces signaux d'ions à un certain niveau Rydberg, il est donc nécessaire de connaître le chemin exact selon lequel un état Rydberg va s'ioniser en présence du champ d'ionisation. Dans le cas des alcalins, et surtout les alcalins lourds comme Rb et Cs à cause de leur structure hyperfine importante, on observe que les niveaux Stark peuvent se repousser mutuellement et former ainsi des croisements évités plus ou moins importants. Le chemin d'ionisation d'un état Rydberg dépendra en grande partie

de son comportement au niveau des différents croisements évités en présence de l'impulsion d'ionisation [VIA 79], [JEY 80]. Ces considérations nous ont motivés de réaliser des études spectroscopiques de croisements évités entre états de Rydberg dans le césium.

Cette thèse est constituée de trois chapitres bien distincts relatant les différentes étapes expérimentales parcourues afin d'étudier des collisions entre atomes froids. Ces trois chapitres seront chaque fois divisés en une partie théorique, servant à expliquer les phénomènes auxquels on s'attend dans les expériences, et une partie expérimentale, décrivant les expériences réalisées pour les différents sujets qui nous intéressent.

Dans le premier chapitre, je décrirai des expériences qui ont pour but de compresser un jet ralenti selon ses dimensions transverses à l'aide d'un piège magnéto-optique à deux dimensions. On verra que les premiers résultats de compression ont conduit à une interprétation du processus de compression pour le cas spécifique du césium dans le but de trouver des processus permettant d'améliorer l'efficacité du piège magnéto-optique. Je décrirai les expériences de compression qui utilisent des processus de préorientation des atomes avant leur entrée dans le piège afin d'améliorer son efficacité.

Le deuxième chapitre introduit le domaine des atomes de Rydberg en rappelant leurs principales propriétés. On s'intéressera surtout au comportement des atomes de Rydberg en présence de champs électriques, qu'ils soient statiques ou pulsés. Pour déterminer le chemin exact que suivent des niveaux d'énergie Rydberg en présence d'un champ électrique pulsé, et donc pour pouvoir détecter un état Rydberg sélectivement avec la méthode d'ionisation par champ électrique, il est nécessaire de connaître la structure Stark de ces niveaux. Un des phénomènes le plus déterminant sur le chemin d'ionisation est le comportement d'un état Stark aux alentours d'un croisement évité entre niveau Stark en présence de l'impulsion d'ionisation. Ce fait nous a motivé d'entreprendre les expériences spectroscopiques sur des croisements évités entre états de Rydberg, que je décrirai dans ce deuxième chapitre. Ces mesures ont débouchées sur l'utilisation d'une nouvelle méthode de spectroscopie à haute résolution pouvant livrer des mesures bien plus précises que la largeur du laser utilisé pourrait le laisser supposer.

Le troisième et dernier chapitre de ce mémoire est consacré à l'étude de collisions résonnantes entre atomes de Rydberg. Ce chapitre est divisé en deux parties bien distinctes. La première détaille le processus de collision résonnante entre atomes de Rydberg pour le cas où ces collisions ont lieu à température ambiante. Dans ce cas, le processus peut être correctement

décrit en tant que collision entre deux atomes isolés avec un paramètre d'impact, une vitesse de collision et une section efficace. Ceci est le cas des expériences qu'on a réalisées sur un jet atomique thermique de césium, et aussi pour le cas d'un jet ralenti qui constitue le cas limite de ce régime. Je décrirai ces expériences et leurs résultats dans cette première partie. Dans la deuxième partie, on exposera les considérations théoriques et les expériences qu'on a entreprises visant à les étudier, pour le cas de collisions résonnantes dans le régime de collisions ultra-froides. Ces expériences réalisées sur des atomes de Rydberg situés dans un piège magnéto-optique à trois dimensions, montreront l'apparition de phénomènes complètement différents que pour le cas de collisions résonnantes thermiques. On verra ainsi que de telles collisions ne peuvent plus être considérées en tant que collisions isolées entre deux atomes, mais plutôt en tant qu'effet collectif de tout l'échantillon d'atomes de Rydberg ultra-froid.

**Références de l'introduction**

- [ABR 95] E.R.I. Abraham, W.I. Mc Alexander, C.A. Sackett, R.G. Hulet, *Phys. Rev. Lett.* **74**, 1315, (1995).
- [AND 95] M.H. Anderson, J.R. Ensher, M.R. Matthews, C.E. Wieman, E.A. Cornell, *Science* **269**, 198, (1995).
- [BAR 92] F. Bardou, O. Emile, J.M. Courtois, C.I. Westbrook, A. Aspect, *Europhys. Lett.* **20**, 681, (1992).
- [BLE 96] Anthony Bleton, Thèse de l'Université Paris VI, à soutenir.
- [DUN 83] F.B. Dunning and R.F. Stebbings, in *Rydberg States of Atoms and Molecules*, eds. R.F. Stebbings and F.B. Dunning, (Cambridge University Press, Cambridge, 1983).
- [GAL 82] T.F. Gallagher, K.A. Safinya, F. Gounand, J.F. Delpech, W. Sandner, and R. Kachru, *Phys. Rev. A* **25**, 1905, (1982).
- [GAL 92] T.F. Gallagher, *Phys. Rept.* **210**, 319, (1992).
- [GAL 94] T.F. Gallagher, *Rydberg Atoms*, eds. A. Dalgarno, P.L. Knight, F.H. Read, R.N. Zare (Cambridge University Press, Cambridge, 1994).
- [GALL 89] A. Gallagher, D.E. Pritchard, *Phys. Rev. Lett.* **63**, 957, (1989).
- [JEY 80] T.H. Jeys, G.W. Foltz, K.A. Smith, E.J. Beiting, F.G. Kellert, F.B. Dunning, and R.F. Stebbings, *Phys. Rev. Lett.* **44**, 390, (1980).
- [JUL 90] P.S. Julienne, R. Heather, J. Vigué, in *Atomic Physics 12* (1990).
- [JUL 91] P.S. Julienne, J. Vigué, *Phys. Rev. A* **44**, 4464, (1991).
- [LET 93] P.D. Lett, K. Helmerson, W.D. Phillips, L.P. Ratcliff, S.L. Rolston, M.E. Wagshul, *Phys. Rev. Lett.* **71**, 2200, (1993).
- [MIL 93] J.D. Miller, R.A. Cline, and D.J. Heinzen, *Phys. Rev. Lett.* **71**, 2204, (1993).

- [NEL 90] J. Nellesen, J. Werner, W. Ertmer, *Opt. Comm.* **78**, 300, (1990).
- [RAA 87] E. Raab, M. Prentiss, A. Cable, S. Chu, D. Pritchard, *Phys. Rev. Lett.* **56**, 2631, (1987).
- [RII 90] E. Riis, D. Weiss, K. Moler, S. Chu, *Phys. Rev. Lett.* **64**, 1658, (1990).
- [SAF 81] K.A. Safinya, J.F. Delpach, F. Gounand, W. Sandner, and T.F. Gallagher, *Phys. Rev. Lett.* **47**, 405, (1981).
- [SES 89] D. Sesko, T. Walker, C. Monroe, A. Gallagher, C. Wieman, *Phys. Rev. Lett.* **63**, 961, (1989).
- [STOO 94] H.T.C. Stoof, *Phys. Rev. A* **49**, 3824, (1994).
- [STO 87] R.C. Stoneman, M.D. Adams, and T.F. Gallagher, *Phys. Rev. Lett.* **58**, 1324, (1987).
- [THO 89] D.S. Thomson, R.C. Stoneman, and T.F. Gallagher, *Phys. Rev. A* **39**, 2914, (1989).
- [THO 90] D.S. Thomson, M.J. Renn, and T.F. Gallagher, *Phys. Rev. Lett.* **65**, 3273, (1990).
- [THOR 87] H.R. Thorsheim, J. Weiner, and P.S. Julienne, *Phys. Rev. Lett.* **58**, 2420, (1987).
- [TIE 92] E. Tiesinga, B.J. Verhaar, H.T.C. Stoof, D. van Bragt, *Phys. Rev.* **45**, R2671, (1992).
- [VER 93] B. Verhaar, K. Gibble, S. Chu, *Phys. Rev. A* **48**, R3429, (1993).
- [VIA 79] J.L. Vialle and H.T. Duong, *J. Phys. B* **12**, 1407, (1979).
- [WAN 95] H. Wang, P.L. Gould, and W.C. Stwalley, *Phys. Rev. A*, (1995).
- [YU 94] J. Yu, J. Djemaa, P. Nosbaum, P. Pillet, *Opt. Comm.* **112**, 136, (1994).





# **Chapitre I: Piège magnéto-optique à deux dimensions; entonnoir à atomes**

## **I - 1 Introduction**

Depuis de nombreuses années, on connaissait l'existence de la force de pression de radiation exercée par la lumière. Ces phénomènes furent cependant difficiles à observer, vu que les seules sources de lumière à l'époque étaient des lampes. Frisch [FRI 33] réussit en 1933 à défléchir un jet atomique de sodium à l'aide d'une lampe à décharge de sodium. Le développement du domaine de la manipulation d'atomes neutres par la lumière fut facilité par l'avènement des lasers en tant que sources intenses de lumière monochromatique. Ainsi l'expérience de Frisch fut reprise de manière plus quantitative en utilisant un laser au Laboratoire Aimé Cotton [PIC 76].

En utilisant cette force de pression de radiation d'un laser, on peut aussi ralentir un jet atomique en l'éclairant en contresens [BAL 79]. On peut ainsi arriver à obtenir un jet présentant une vitesse finale bien définie entre zéro et une centaine de mètres par seconde avec une distribution en vitesse pratiquement monocinétique correspondant à une largeur de quelques mètres par seconde. De tels jets lents et monocinétiques peuvent s'avérer très utiles dans des expériences où le temps d'interaction avec celui-ci joue un rôle important dans l'obtention d'un signal. C'est ainsi que, dans des expériences de métrologie, l'utilisation d'un tel jet peut contribuer à une mesure de l'étalon du temps, la transition atomique  $6S_{1/2} F=3 \rightarrow 6S_{1/2} F=4$  du césium, bien plus précise que toutes les méthodes spectroscopiques auparavant [GUE 92]. Des horloges utilisant des jets ralentis ou des fontaines atomiques sont en cours de développement.

Un des domaines en plein essor de la physique atomique est l'étude de collisions entre atomes froids. Dans un jet atomique thermique, des collisions sont facilement observables. Un jet ralenti et refroidi par laser présente cependant une divergence plus

importante et donc une densité atomique plus faible que le jet thermique dont il est issu. Ceci est compréhensible, car en diminuant considérablement la vitesse axiale du jet, sans changer les vitesses atomiques transversales, il est clair que les atomes auront tout le temps de s'échapper transversalement du jet.

Pour obtenir un bon rapport signal sur bruit dans des expériences où le signal dépend de la densité atomique, telles que la spectroscopie à haute résolution, l'interférométrie atomique ou les collisions froides, il est donc impératif d'augmenter la densité du jet ralenti tout en diminuant sa divergence. On peut obtenir un tel effet à l'aide d'un dispositif de piège magnéto-optique appliqué suivant les 2 dimensions transverses du jet: un tel dispositif est appelé entonnoir à atomes [NEL 89]. Celui-ci utilise deux paires d'ondes électromagnétiques de même fréquence et de directions opposées qui illuminent transversalement les atomes du jet [HÄN 75], [WIN 75]. Ceci crée à l'aide de forces de friction une mélasse optique où les atomes sont accumulés autour d'une vitesse transversale nulle. En superposant à cette mélasse optique à deux dimensions un gradient de champ magnétique, on crée une force de rappel additionnelle qui accumule les atomes refroidis sur l'axe du jet où le champ magnétique s'annule [NEL 90], [RII 90], [YU 94]. La description de la réalisation et de l'étude d'un tel piège magnéto-optique à deux dimensions fait l'objet de ce chapitre.

Au commencement de cette thèse, le montage expérimental du jet ralenti était déjà réalisé [GUE 92]. Ces expériences de ralentissement utilisaient des faisceaux lasers obtenus à l'aide de diodes lasers couplées en cavité externe avec un Fabry-Pérot. Avec un tel dispositif, nous avons obtenus les premiers signaux de jet ralenti comprimé à l'aide d'un piège magnéto-optique à deux dimensions [YU 94], [DJE 95]. Afin d'améliorer l'utilisation du dispositif, en particulier pour faire une étude détaillée de l'effet d'entonnoir, il a fallu réaliser de nouveaux dispositifs lasers. Nous avons construit des systèmes de diodes lasers couplées à des réseaux de diffraction en cavité externe, plus faciles à manier, et offrant une bonne stabilité temporelle. C'est la raison pour laquelle j'insisterai, dans la partie décrivant le montage du dispositif expérimental, sur le développement laser auquel j'ai eu à participer.

La première partie de ce chapitre donne une brève description des principaux mécanismes de refroidissement d'atomes neutres par laser qui jouent un rôle pour ralentir un jet atomique et pour former un piège magnéto-optique. Ceux-ci sont très variés, et vont de la simple force de pression de radiation utilisée pour ralentir un jet, à un piège magnéto-optique présentant des phénomènes un peu plus compliqués.

Dans la seconde partie de ce chapitre, j'aborderai une description du dispositif expérimental utilisé pour le ralentissement d'un jet atomique de césium et pour la compression transverse de ce jet ralenti et monocinétique, où j'insisterai notamment sur le développement laser réalisé.

Les résultats des expériences de piège magnéto-optique à deux dimensions sont décrits dans une troisième partie. On notera les répercussions du caractère transitoire d'un tel dispositif, provenant du temps de transit des atomes dans le piège, sur l'efficacité de la compression du jet ralenti. A cause de ce caractère spécifique d'une part, et de la présence d'une multitude de sous niveaux Zeeman pour le césium d'autre part, on verra qu'une optimisation de cette compression transverse peut être obtenue en agissant sur l'état initial des atomes du jet ralenti avant leur entrée dans le piège.

## **I - 2 Principes théoriques du refroidissement d'atomes par laser**

L'effet de la force de pression de radiation d'une source lumineuse très intense permet d'agir sur les degrés de liberté externes d'un atome neutre. Cette force a ainsi permis de défléchir un jet en éclairant celui-ci par une lampe ou un laser [FRI 33], [PIC 76]. Un cas relativement simple de l'utilisation de ce phénomène de pression de radiation consiste à ralentir un jet atomique en éclairant celui-ci à contresens par un faisceau laser à résonance. En éclairant des atomes par deux ondes électromagnétiques, on arrive à geler leur mouvement à l'aide de la somme de deux forces de pression de radiation opposées [HÄN 75], [WIN 75]. Ce principe à la base des mélasses optiques Doppler permettant de refroidir des atomes à des températures de l'ordre de quelques centaines de microKelvins [CHU 85], [CHU 86], qui est appelée limite Doppler. Dans des expériences de mélasses optiques, différents groupes ont cependant obtenus des températures de l'ordre du microKelvin [LET 88], [CHU 89], [DAL 89a], [SHE 89], [SAL 90], ce qui est impossible en ne considérant que la force de pression de radiation. Pour atteindre ces températures extrêmement basses, d'autres mécanismes beaucoup plus compliqués que la simple force de pression de radiation entrent en jeu [WEI 89], [CHU 89], [DAL 89a,b], [CAS 92]. Ces mécanismes, tel que l'effet Sisyphé, menant à des températures inférieures à la limite Doppler sont appelées sub-Doppler.

En superposant à une telle mélasse un champ magnétique inhomogène, on arrive à concentrer les atomes froids dans les points de l'espace où celui-ci s'annule. Ces dispositifs sont appelés pièges magnéto-optiques et associent une force de rappel, à la force de friction de la mélasse [RAA 87], [MON 90], [SES 89]. Les mécanismes sub-Doppler peuvent aussi être présents dans les pièges magnéto-optiques et des températures très basses et des tailles très petites ont été mises en évidence [STE 91], [GRI 92], [DRE 94].

Dans la partie théorique suivante, je vais essayer d'expliquer les différents processus décrits ci-dessus, en commençant par expliquer le processus à la base de tout refroidissement laser d'atomes neutres: la force de pression de radiation.

### I - 2 - 1 - Force de pression de radiation

Considérons un atome libre soumis à l'onde électromagnétique d'un faisceau laser. Supposons que cet atome soit un simple système à deux niveaux ayant une masse  $m$  et une vitesse  $v$ . Cet atome présente un niveau fondamental  $f$  et un niveau excité  $e$  qui sont séparés l'un de l'autre par l'énergie  $\hbar\omega_0$ .

L'onde électromagnétique est considérée comme monomode de fréquence  $\omega_L$  et de vecteur d'onde  $k$ . On supposera que ce vecteur d'onde  $k$  est exactement opposé en direction à la vitesse  $v$  de l'atome. Celui-ci va absorber un photon du champ laser et passer dans l'état excité. Pendant ce processus l'atome va acquérir une énergie interne  $\hbar\omega_0$  et une quantité de mouvement  $\hbar k$ , qui est opposée au mouvement de l'atome. On peut écrire les équations de conservation d'énergie et de quantité de mouvement pour le système atome-laser:

$$m v + \hbar k = m v' \quad (I - 1)$$

$$\frac{1}{2} m v^2 + \hbar\omega_L = \frac{1}{2} m v'^2 + \hbar\omega_0 ,$$

où  $v'$  décrit la vitesse de l'atome après l'interaction. Ce système d'équations peut aussi être écrit de la façon suivante:

$$v' = v + \frac{\hbar k}{m} \quad (I - 2)$$

$$\hbar(\omega_L - \omega_0) = \hbar \mathbf{k} \cdot \mathbf{v} + \frac{1}{2} \frac{(\hbar \mathbf{k})^2}{m}$$

On voit tout de suite l'importance de deux termes pour ce processus: l'énergie de recul  $E_R$  et la vitesse de recul  $v_R$  transmises à l'atome durant le processus d'absorption d'un photon. Ces notions sont définies de la manière suivante:

$$v_R = \frac{\hbar \mathbf{k}}{m} \quad (\text{I - 3})$$

$$E_R = \frac{(\hbar \mathbf{k})^2}{2m} \quad (\text{I - 4})$$

On voit bien qu'un élément important pour les processus de refroidissement est donné par le poids de l'élément en question. Les deux grandeurs décrites ci-dessus sont inversement proportionnelles à la masse de l'atome, et elles sont présentées sur le tableau (I-1) en même temps que la largeur naturelle  $\Gamma/2\pi = \Gamma = (2\pi\tau)^{-1}$  du niveau excité mis en oeuvre.

Éléments	Énergie de recul [kHz]	Largeur du niveau excité $\Gamma$ [MHz]	Vitesse de recul [cm/s]
H	14000	99.5	325.6
Li	65	5.8	8.5
Na	26.5	9.9	2.94
K	9	5.7	1.33
Rb	4	5.9	0.60
Cs	2	5.2	0.35

Tableau I-1: Ordre de grandeur de l'énergie et de la vitesse de recul ainsi que de la largeur naturelle du niveau excité impliqué dans le processus de refroidissement.

Après avoir absorbé un photon, l'atome se retrouve dans son état excité. Ce niveau excité possède une durée de vie radiative finie et va donc se désexciter par émission spontanée ou induite d'un photon. En régime de faible intensité laser, la désexcitation va se faire essentiellement par émission spontanée. En régime de champ fort, tout ce qui suit reste valable,

mais il ne faut prendre en compte que l'émission spontanée dans le bilan de transfert d'impulsion de la lumière à l'atome. Durant un cycle d'émission spontanée, l'atome va perdre un quantum d'impulsion selon une direction complètement aléatoire. En faisant subir à l'atome plusieurs cycles d'absorption-émission spontanée, les variations d'impulsion dues à l'émission spontanée se moyennent à zéro à cause de leur caractère aléatoire (pour une direction donnée, on a la même probabilité d'émettre un photon dans un sens ou dans l'autre), tandis que la variation d'impulsion totale est non nulle pour l'ensemble des processus d'absorption. Pour un nombre  $n$  de cycles absorption-émission spontanée, l'atome acquiert donc une quantité de mouvement égale à  $n\hbar\mathbf{k}$ .

On peut donc écrire la force de pression de radiation exercée par l'onde sur l'atome:

$$\mathbf{F} = n \hbar \mathbf{k} \quad (\text{I - 5})$$

où  $n$  est ici le nombre de photons absorbés par l'atome par unité de temps.

En faisant un calcul semi-classique en utilisant les équations d'évolution du système atome-laser, on trouve pour la force radiative moyenne exercée sur un atome en interaction avec un champ électromagnétique:

$$\langle \mathbf{F} \rangle = \hbar \mathbf{k} \frac{\Gamma}{2} \frac{\frac{2 \Omega^2}{\Gamma^2}}{1 + \frac{2 \Omega^2}{\Gamma^2} + \left( 2 \frac{(\delta - \mathbf{k}\mathbf{v})}{\Gamma} \right)^2} \quad (\text{I - 6})$$

Dans cette formule  $\Omega$  représente la fréquence de Rabi qui caractérise l'intensité du couplage entre l'onde électromagnétique et le moment dipolaire atomique:  $\Omega = -2d|E|/\hbar$ , et  $\Gamma$  est la fréquence liée à la largeur naturelle  $\Gamma'$  du niveau excité de l'atome, directement reliée à durée de vie radiative  $\tau = 1/\Gamma = 2\pi/\Gamma'$ . On voit apparaître un nouveau facteur dans cette expression pour la force de pression de radiation. Celle-ci dépend du désaccord  $\delta = \omega_L - \omega_0$  entre la fréquence laser et la fréquence correspondant à la transition atomique. A ce décalage en fréquence vient s'ajouter un autre décalage. Celui-ci est provoqué par la vitesse de l'atome induisant un décalage de la fréquence laser vue par l'atome en mouvement, et ceci à cause de l'effet Doppler. Ce terme en  $-\mathbf{k}\mathbf{v}$  vient donc s'ajouter au décalage  $\delta$ . La figure I-1 représente le module de cette force en fonction du désaccord réduit, qui comprend ces deux décalages.

L'expression de la force de radiation peut être simplifiée en introduisant un nouveau coefficient: le paramètre de saturation  $s$ . On obtient ainsi pour le nombre  $n$  de photons absorbés par l'atome par unité de temps l'expression suivante:

$$n = \frac{\Gamma}{2} \frac{s}{s + 1} \quad (\text{I - 7})$$

avec le paramètre de saturation  $s$  défini de la manière suivante:

$$s = \frac{I/I_{\text{sat}}}{1 + (2\delta/\Gamma)^2} \quad (\text{I - 8})$$

où  $I_{\text{sat}}$  est l'intensité de lumière nécessaire à saturer la transition atomique, et peut être calculée à l'aide de grandeurs caractérisant la transition atomique choisie. Dans cette formule, le décalage  $\delta$  tient compte de l'effet Doppler, il s'agit en effet du décalage réduit.

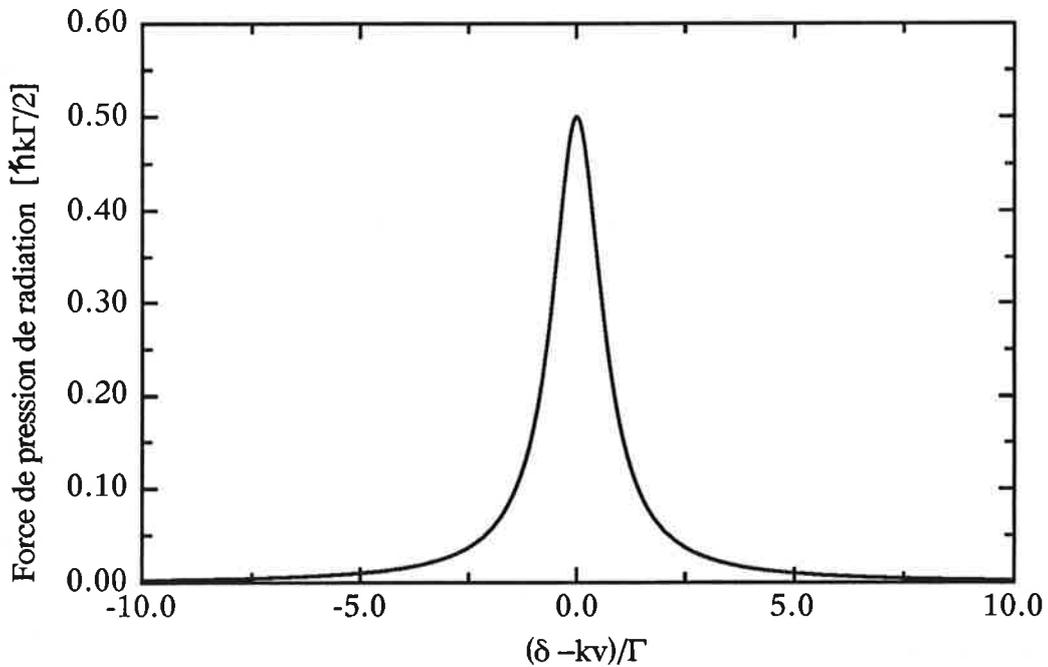


Figure I-1: Variation de la force de pression de radiation en fonction de la vitesse de l'atome pour  $\Omega = \Gamma\sqrt{2}$ .

La fréquence de l'onde incidente étant fixe, on peut analyser la forme de la force en fonction de la vitesse à partir de la courbe I-1. La force présente un profil Lorentzien présentant un maximum pour un décalage Doppler nul et une largeur, qui dépendent tous les deux de la puissance de l'onde incidente. La force augmente avec la puissance de l'onde incidente pour tendre vers une valeur limite de  $\hbar k \Gamma / 2$  à désaccord nul.

Élément	H	Li	Na	K	Rb	Cs
$I_{\text{sat}}$ [mW/cm <sup>2</sup> ]	7200	2.5	6.3	1.7	1.6	1.1

### I - 2 - 2 - Principe du ralentissement d'un jet atomique

On considère un jet atomique ayant une distribution de vitesse thermique initiale éclairé à contresens par un faisceau laser. Un nombre d'atomes dans une certaine classe de vitesse sont en résonance avec le laser. Ils vérifient la relation:  $\delta + kv \approx 0$ .

Ces atomes subissent une décélération ce qui change leur vitesse et donc également leur désaccord en fréquence  $\delta + kv$ . Si la fréquence du laser est fixe, tous les atomes autour de la classe de vitesse  $\delta + kv = 0$  vont être accumulés dans une classe de vitesse inférieure qui ne subit plus de force de pression de radiation [BAL 79]. L'idée du ralentissement par laser d'un jet atomique consiste donc à garder la fréquence du laser continûment en résonance avec les atomes décélérés afin de modifier la distribution de vitesse du jet atomique. En gros ceci a été réalisé par deux techniques différentes.

La première utilise le déplacement de la transition atomique par effet Zeeman [PHI 82]. Dans une telle expérience un gradient de champ magnétique est créé le long de l'axe du jet atomique, de telle manière à faire varier la transition atomique par effet Zeeman pour rester en résonance avec un laser de fréquence fixe. On obtient ainsi un jet continu d'atomes ralentis, où chaque position dans le jet correspond à une classe de vitesse bien définie, puisque chaque position correspond à une condition de résonance bien définie.

La seconde consiste à balayer la fréquence du laser de ralentissement entre deux bornes de fréquence données correspondant à deux classes de vitesse du jet atomique [ERT 85], [SAL 88], [YU 91]. Ainsi à la fin du balayage laser, toutes les classes de vitesse

intermédiaires sont accumulées autour de la classe de vitesse inférieure. Ceci va nous donner un jet comportant des "bouffées" d'atomes ralentis, répartis tout le long de l'axe du jet atomique. C'est cette méthode de ralentissement, dite de "frequency chirping", que nous utilisons dans nos expériences avec le jet de césium.

La force de pression de radiation exercée sur un atome d'un jet durant un tel processus de ralentissement est relativement importante. Ainsi, pour le césium on peut obtenir une décélération de l'ordre de 6000g. Pour une telle décélération il faut environ 80 cm pour complètement "stopper" un jet atomique de césium [GUE 92].

### I - 2 - 3 - Mélasse optique Doppler

On a vu dans la partie précédente qu'il était possible de freiner des atomes dans un jet atomique selon une direction et ceci à pratiquement n'importe quelle vitesse, en ajustant la fréquence du laser. En combinant deux ondes électromagnétiques de même fréquence et de directions opposées, on peut confiner les atomes dans l'espace de vitesse par effet de friction, d'où le terme de mélasse optique [CHU 85]. Le type le plus simple de mélasse est constitué par la mélasse Doppler faisant agir uniquement les forces de pression de radiation des deux ondes.

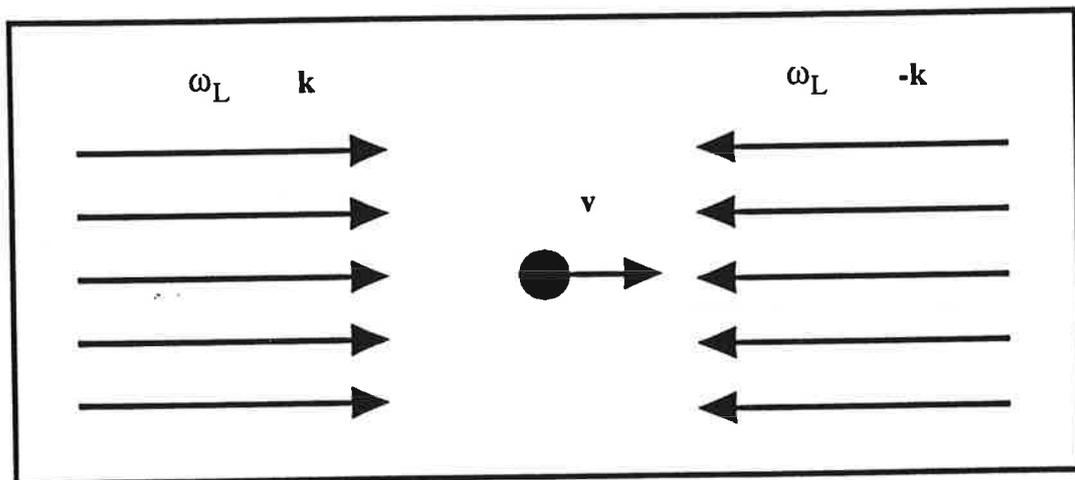


Figure I-2: Schéma d'une mélasse Doppler à une dimension.

En se contentant du problème à une dimension on arrive à comprendre très facilement le principe de la mélasse Doppler. On considère toujours notre atome à deux niveaux animé d'une vitesse  $v$ . Cet atome interagit maintenant avec deux ondes lasers de même

fréquence fixe  $\omega$  et de même intensité qui se propagent selon des directions opposées sur l'axe défini par la vitesse de l'atome (figure I-2).

### 3 - a - Force de mélasse

On suppose qu'on se trouve dans un régime de faible intensité laser, de telle manière à ce qu'on puisse admettre que chaque onde agit indépendamment de l'autre sur l'atome; on peut en effet négliger les effets d'interférences entre les deux ondes lasers [DAL 86]. On voit que si le désaccord  $\delta$  est négatif, l'atome est plus résonnant avec l'onde se propageant dans le sens opposé à son mouvement. En moyenne sa vitesse s'amortit et il reste confiné autour de la vitesse  $v = 0$ . La force résultante agissant sur l'atome est égale à la somme des deux forces de pression de radiation  $F_+$  et  $F_-$  associées aux deux ondes lasers et qui est:

$$F = F_+ + F_-.$$

$$F = \hbar k \frac{\Gamma}{2} \frac{\frac{2 \Omega^2}{\Gamma^2}}{1 + \frac{2 \Omega^2}{\Gamma^2} + \left(2 \frac{(\delta - kv)}{\Gamma}\right)^2} - \hbar k \frac{\Gamma}{2} \frac{\frac{2 \Omega^2}{\Gamma^2}}{1 + \frac{2 \Omega^2}{\Gamma^2} + \left(2 \frac{(\delta + kv)}{\Gamma}\right)^2} \quad (\text{I - 9})$$

En regardant la courbe décrivant cette force (figure I-3) on voit que entre les deux vitesses pour lesquelles la force atteint ses valeurs extrêmes, elle est quasi-linéaire [LET 89]. Pour  $kv \ll \Gamma$  et  $kv \ll |\delta|$ , on a donc:

$$F = - \alpha v, \quad (\text{I - 10})$$

où le coefficient de friction Doppler  $\alpha$  est donné à faible intensité par:

$$\alpha = - \hbar k^2 \Omega^2 \frac{\delta \Gamma}{\left(\delta^2 + \frac{\Gamma^2}{4}\right)^2} \quad (\text{I - 11})$$

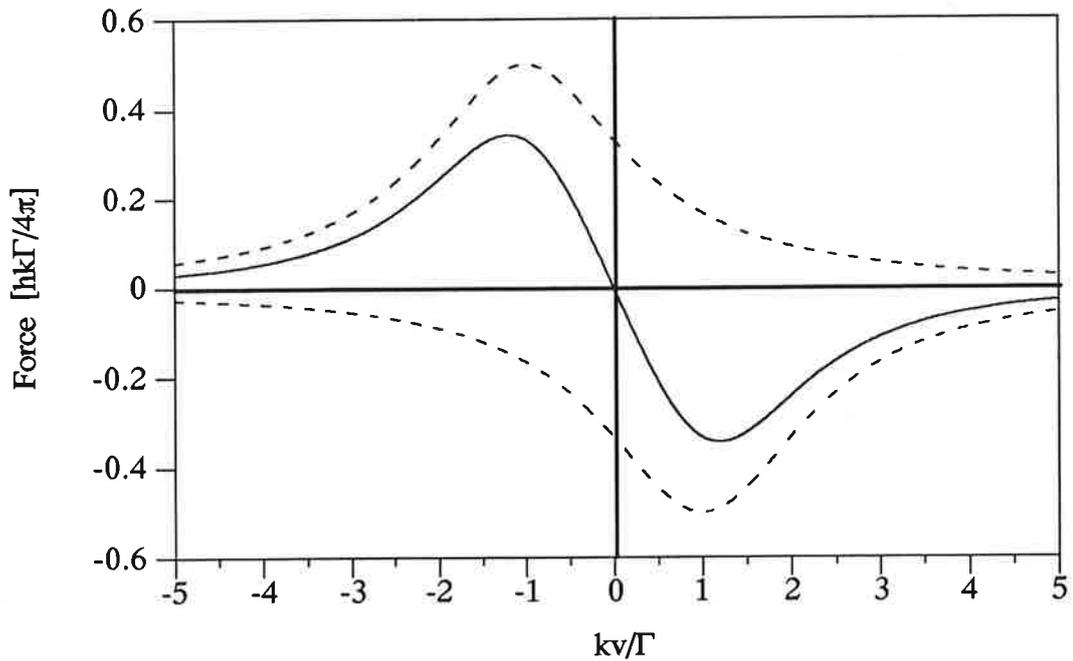


Figure I-3: Force de mélasse Doppler exercée sur un atome en fonction de sa vitesse, pour un décalage de  $\delta = -1/2 \Gamma$  et une intensité laser de  $\Omega = \Gamma\sqrt{2}$ . Les deux courbes en pointillé représentent les forces exercées par chacune des ondes séparément. La somme de ces deux forces résulte dans la force de mélasse (courbe pleine).

### 3 - b - Température limite

Dû à la nature aléatoire du processus d'émission spontanée, la force de mélasse fluctue autour d'une valeur moyenne, ce qui induit un réchauffement des atomes. Le coefficient de diffusion associé à ces fluctuations de la force peut être déterminé à l'aide d'une image de mouvement Brownien. En admettant que l'atome effectue une marche au hasard de pas  $\hbar k$  dans l'espace des impulsions, on trouve pour le coefficient de diffusion d'impulsion  $D_p$  [LET 89]:

$$D_p = (\hbar k)^2 \frac{\Gamma}{2} \frac{\Omega^2}{\delta^2 + \frac{\Gamma^2}{4}} \quad (\text{I - 12})$$

On a donc compétition entre ce phénomène d'échauffement et le refroidissement par pression de radiation. A l'équilibre, c'est à dire quand les taux d'échauffement et de refroidissement sont égaux, on trouve que l'atome ne peut être ralenti au dessous d'une vitesse limite, appelée vitesse Doppler et qui vaut:

$$v_{\text{Doppler}} = \sqrt{\frac{D_p}{m \alpha}} \quad (\text{I - 13})$$

La température d'équilibre à une dimension devient, en utilisant la relation pour l'énergie thermique  $E = \frac{1}{2} mv^2 = \frac{1}{2} k_B T$ :

$$k_B T = \frac{D_p}{\alpha} = \frac{\hbar \Gamma}{4} \frac{1 + \left(\frac{2\delta}{\Gamma}\right)^2}{\left(\frac{2\delta}{\Gamma}\right)} \quad (\text{I - 14})$$

On voit que la température d'une mélasse Doppler ne dépend pas de l'intensité des lasers, mais seulement du décalage en fréquence. La température minimale pouvant être atteint est obtenue pour  $\delta = \Gamma/2$ . Cette limite ou température Doppler vaut [WIN 79]:

$$k_B T_{\text{Doppler}} = \frac{\hbar \Gamma}{2} \quad (\text{I - 15})$$

Celle-ci, de même que la vitesse Doppler limite sont présentées pour les différents alcalins utilisés pour le refroidissement par laser dans le tableau I-2.

Élément	H	Li	Na	K	Rb	Cs
$T_D$ [ $\mu\text{K}$ ]	2387	140	237	137	141	125
$v_D$ [cm/s]	446	41	29	17	11.7	8.8

Tableau I-2: Ordres de grandeur pour la température et la vitesse Doppler limite qui peuvent être atteints dans une mélasse Doppler pour le cas des différents alcalins.

3 - c - Mélasse en configuration  $\sigma^+ \sigma^-$ 

Pour un atome à trois niveaux, présentant une transition de  $J = 0$  vers  $J' = 1$ , on retrouve l'effet de mélasse Doppler en utilisant deux ondes planes polarisées respectivement  $\sigma^+$  et  $\sigma^-$  ayant même fréquence et des directions opposées [DAL 84]. Nous allons maintenant traiter ce système dans le cas à une dimension.

Considérons donc un atome présentant une transition  $J = 0 \rightarrow J' = 1$  placé dans le champ électromagnétique qui est constitué d'une onde polarisée  $\sigma^+$  se propageant selon  $+\mathbf{e}_z$  et d'une onde polarisée  $\sigma^-$  se propageant en sens inverse suivant  $-\mathbf{e}_z$ . On suppose que ces deux ondes ont la même fréquence  $\omega_L$  et même intensité. L'amplitude du champ électrique d'une telle onde stationnaire s'exprime en fonction des vecteurs unitaires  $\mathbf{e}_x$  et  $\mathbf{e}_y$  de la façon suivante:

$$\mathbf{E}(z, t) = -i\sqrt{2} E_0 (\sin(kz) \mathbf{e}_x + \cos(kz) \mathbf{e}_y) \quad (\text{I - 16})$$

Le champ électrique est donc polarisé selon  $\vec{\epsilon}(z) = \sin(kz) \mathbf{e}_x + \cos(kz) \mathbf{e}_y$ , avec une amplitude qui est constante selon  $z$ . A l'origine  $z = 0$ , ce champ électrique est dirigé selon  $\mathbf{e}_y$ . Ensuite, si on se déplace selon  $z$ , ce champ tourne avec un angle  $-kz$ , et son extrémité forme une hélice de pas égal à  $\lambda$ , où  $\lambda$  est la longueur d'onde des lasers [DAL 89b] (voir figure I-4).

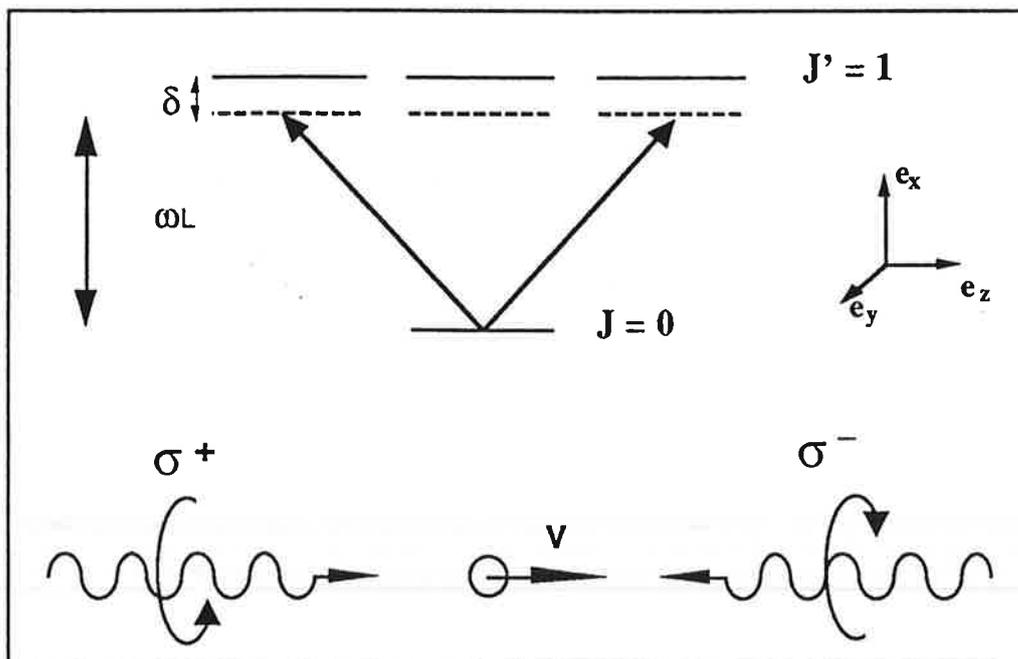


Figure I-4: Configuration de la polarisation dans une mélasse optique  $\sigma^+ \sigma^-$ .

En utilisant le formalisme de la matrice densité, on peut calculer l'expression de la force radiative agissant sur un atome. Dans ce formalisme, l'équation d'évolution du système s'écrit en fonction de la matrice densité du système considéré:

$$i\hbar \frac{\partial \rho}{\partial t} = [H, \rho] + i\hbar \left[ \frac{\partial \rho}{\partial t} \right]_{sp} \quad (I - 17)$$

L'Hamiltonien total du système s'écrit:  $H = H_A + V_{AL}$

avec:  $H_A = \frac{\mathbf{p}^2}{2m} + \hbar \omega_0 \sum_{k=0, \pm 1} |e_k\rangle\langle e_k|$  : Hamiltonien atomique,

$V_{AL} = -\vec{D} \cdot \vec{E}$  : Hamiltonien d'interaction entre le dipôle atomique et le champ laser,

Le premier terme de l'équation (I-17) représente l'évolution de l'Hamiltonien, tandis que le second terme décrit la relaxation due à l'émission spontanée. En résolvant cette équation, on arrive à calculer les populations des différents sous-niveaux fondamentaux et excités et leurs cohérences. La détermination de ces termes est essentielle pour le calcul de la force stationnaire de dissipation qui s'exerce sur l'atome [DAL 89b].

En utilisant un traitement semi-classique, on peut découpler l'évolution des paramètres internes et des paramètres externes de l'atome. On trouve finalement, en utilisant le théorème d'Ehrenfest, que la force radiative moyenne est proportionnelle à la différence entre les populations des sous-niveaux Zeeman du niveau excité:

$$F = -(\nabla_R V_{AL}) = \frac{\hbar k \Gamma}{2} (\Pi_{m_j=+1} - \Pi_{m_j=-1}) \quad (I - 18)$$

Ces populations des sous-niveaux Zeeman excités sont exprimés en fonction des coefficients de saturation  $s_+$  et  $s_-$ , qui caractérisent les ondes polarisées respectivement  $\sigma^+$  et  $\sigma^-$ .

$$\Pi_{m_j, \pm 1} = \frac{1}{2} s_{\pm} \quad (I - 19)$$

avec:

$$s_{\pm} = \frac{\frac{\Omega^2}{2}}{(\delta \mp kv)^2 + \frac{\Gamma^2}{4}} \quad (\text{I - 20})$$

Cette force de mélasse pour le cas spécifique de la configuration  $\sigma^+ \sigma^-$  est représentée pour un cas donné en fonction de la vitesse sur la figure I-5. Dans le régime de faibles vitesses, où la force est linéaire selon la vitesse de l'atome, on obtient, en remplaçant les populations des sous-niveaux excités par leurs valeurs, l'expression suivante pour la force radiative:

$$F = -\alpha_D v = \hbar k \Gamma \frac{8 \delta kv \frac{\Omega^2}{2}}{\left(\delta^2 + \frac{\Gamma^2}{4}\right)^2} \quad (\text{I - 21})$$

En comparant la valeur de ce coefficient de frottement à celle donnée par l'expression (I-11) pour le coefficient de friction dans une mélasse Doppler, on voit qu'elle est 4 fois plus importante. En général, on note que plus le nombre de sous-niveaux de l'atome considéré augmente, plus le refroidissement devient efficace.

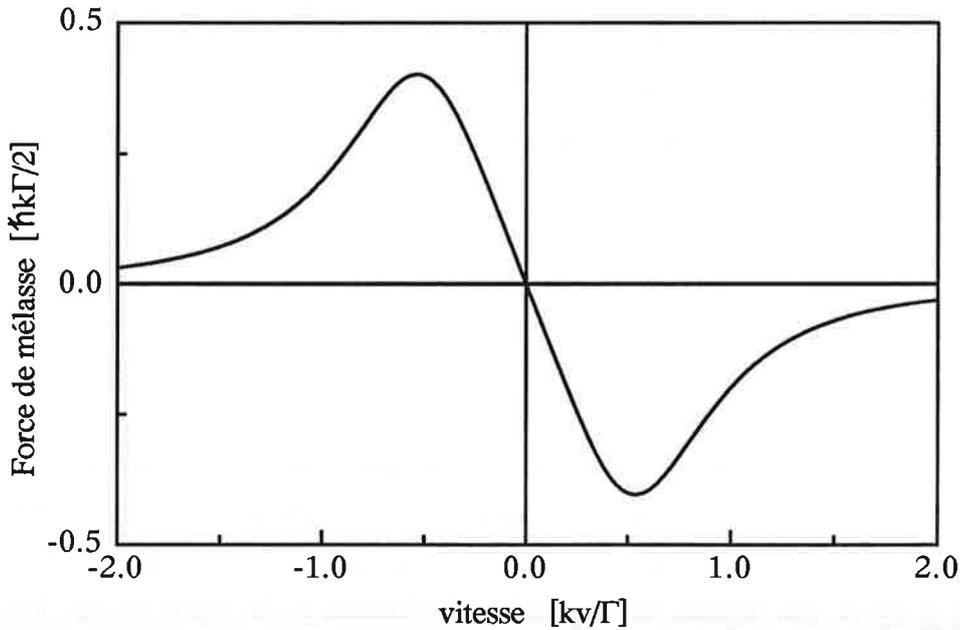


Figure I-5: Force Doppler en fonction de la vitesse dans une configuration de polarisation  $\sigma^+ \sigma^-$  pour une transition de  $J = 0$  vers  $J' = 1$  pour  $\delta = -\Gamma/2$  et  $\Omega = 0.707 \Gamma$ .

## I - 2 - 4 - Piège magnéto-optique

Une mélasse optique permet donc de refroidir des atomes à des températures très basses et de les confiner par pure viscosité grâce à la force de pression de radiation. Mais elle ne constitue pas un piège, puisqu'il n'y existe aucune force de rappel en position sur les atomes refroidis. L'idée du piège magnéto-optique repose sur le fait d'ajouter à la force dissipative de mélasse, une force de rappel créée par l'ajout d'un champ magnétique inhomogène à la configuration d'ondes lasers d'une mélasse optique. Cette combinaison procure à la fois une force de mélasse dissipative et une force de rappel harmonique vers un certain point de l'espace. Le fonctionnement d'un tel piège est le plus facilement expliqué sur un simple modèle à une dimension.

### 4 - a - Principe du piège magnéto-optique à une dimension

Considérons à nouveau un atome présentant une transition  $J=0 \rightarrow J'=1$ , qui se trouve dans le champ électromagnétique de deux ondes laser polarisées respectivement  $\sigma^+ \sigma^-$  ayant même fréquence et des directions opposées. On suppose que ces ondes sont désaccordés au rouge de la fréquence de la transition atomique d'une quantité  $\delta = \omega_L - \omega_0$  ( $\delta < 0$ ). Ceci est donc le cas d'une mélasse créée avec des lasers en configuration de polarisation  $\sigma^+ \sigma^-$ , qu'on vient de traiter dans le paragraphe précédent. A cette mélasse optique, on superpose un gradient de champ magnétique variant linéairement avec la position sur l'axe  $z$ , qui s'annule au point  $z=0$  et qui a la même direction que les faisceaux lasers formant la mélasse [MET 89]. Celui-ci s'exprime donc de la façon:

$$\vec{B} = \frac{\partial B}{\partial z} z \vec{e}_z \quad (\text{I - 22})$$

Supposons notre atome au repos sur un point de l'axe  $z$ . L'atome se trouvant dans un champ magnétique externe, la dégénérescence entre les différents sous-niveaux Zeeman  $m_J = 0, \pm 1$  du niveau excité est levée et ceux-ci sont déplacés d'une quantité d'énergie égale à  $\Delta E = \mu_B g m_J B$ , qui dépend de la position de l'atome et du signe de  $m_J$ . En choisissant correctement la polarisation des lasers, le désaccord et le gradient de champ magnétique, on arrive à ce qu'un atome déplacé du point  $B_z=0$  ( $z=0$ ) soit accordé sélectivement à résonance, à cause de l'effet Zeeman, avec le laser opposé à son déplacement.

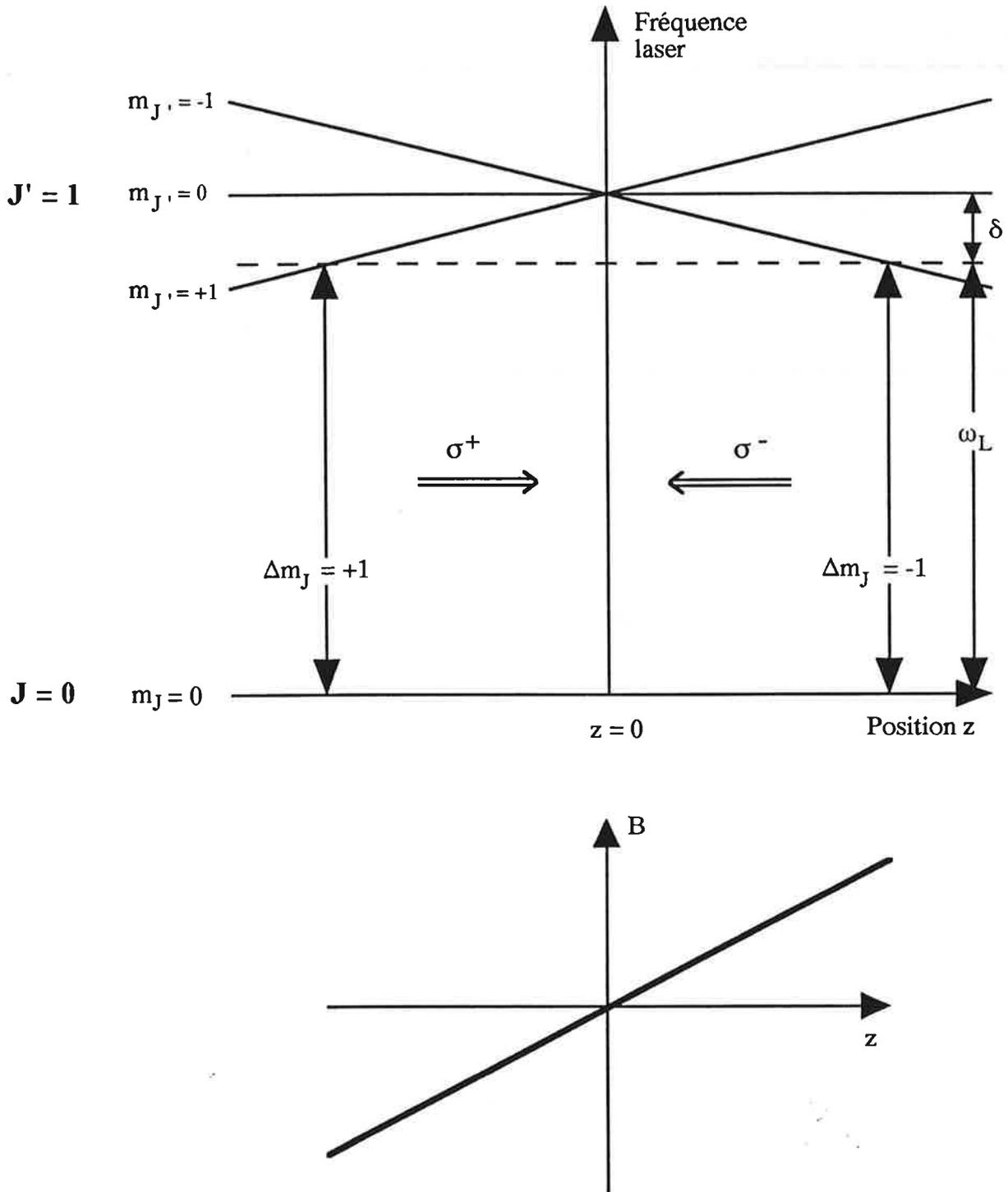


Figure I-6: Schéma du principe à une dimension d'un piège magnéto-optique.

Sur la figure I-6 on voit que, par exemple pour un atome se trouvant à un endroit  $z > 0$  ( $B > 0$ ), la transition  $J=0 \rightarrow J'=1, m_J = -1$  est bien plus résonnante que celle impliquant  $m_J = +1$ . On a donc un déséquilibre entre les deux forces de pression de radiation provenant

des deux faisceaux lasers, et l'onde  $\sigma^-$  pousse l'atome dans la direction du centre du piège, qui est donné par  $B_z=0$  ( $z=0$ ).

En considérant un atome en mouvement sur l'axe  $z$ , on retrouve le mécanisme d'amortissement de l'impulsion atomique dû à l'effet Doppler, qui donne naissance à la force de friction d'une mélasse optique. La force totale subie par l'atome est donc la superposition d'une force de rappel, dépendant de l'effet Zeeman, et d'une force de friction provenant de l'effet Doppler [PHI 82]. L'atome en mouvement se trouve en résonance avec l'une des deux ondes lasers  $\sigma^+$  ou  $\sigma^-$  si la condition de résonance est satisfaite:

$$\delta = \pm \left( kv + \frac{g \mu_B B}{\hbar} \right) \quad (\text{I - 23})$$

#### 4 - b - Force de rappel

On utilise l'équation de Schrödinger dans le formalisme de la matrice densité:

$$i\hbar \frac{\partial \rho}{\partial t} = [H, \rho] + i\hbar \left[ \frac{\partial \rho}{\partial t} \right]_{sp} \quad (\text{I - 24})$$

L'Hamiltonien total du système s'écrit:  $H = H_A + V_{AL} + H_{AC}$  (I - 25)

avec:  $H_A = \frac{\mathbf{p}^2}{2m} + \hbar \omega_0 \sum_{k=0, \pm 1} |e_k\rangle\langle e_k|$  : Hamiltonien atomique,

$V_{AL} = -\vec{\mathbf{D}} \cdot \vec{\mathbf{E}}$  : Hamiltonien d'interaction entre le dipôle atomique et le champ laser,

$H_{AC} = -\vec{\mu} \cdot \vec{\mathbf{B}}$  : Hamiltonien d'interaction entre l'atome et le champ magnétique.

On trouve ainsi pour la force radiative à l'état stationnaire pour de faibles intensités lasers:

$$F = \frac{\hbar k \Gamma}{2} (s_+ - s_-) \quad (\text{I - 26})$$

$$\text{où } s_+ = \frac{\frac{\Omega^2}{2}}{(\delta - kv - g\omega_B z)^2 + \frac{\Gamma^2}{4}} \quad \text{et} \quad s_- = \frac{\frac{\Omega^2}{2}}{(\delta + kv + g\omega_B z)^2 + \frac{\Gamma^2}{4}}$$

sont les coefficients de saturation pour les transitions entre le niveau fondamental et les différents sous-niveaux du niveau excité, et  $\omega_B$  est la pulsation Zeeman définie de la manière suivante:

$$\omega_B = - \frac{g \mu_B}{\hbar} \frac{\partial B}{\partial z} \quad (\text{I - 27})$$

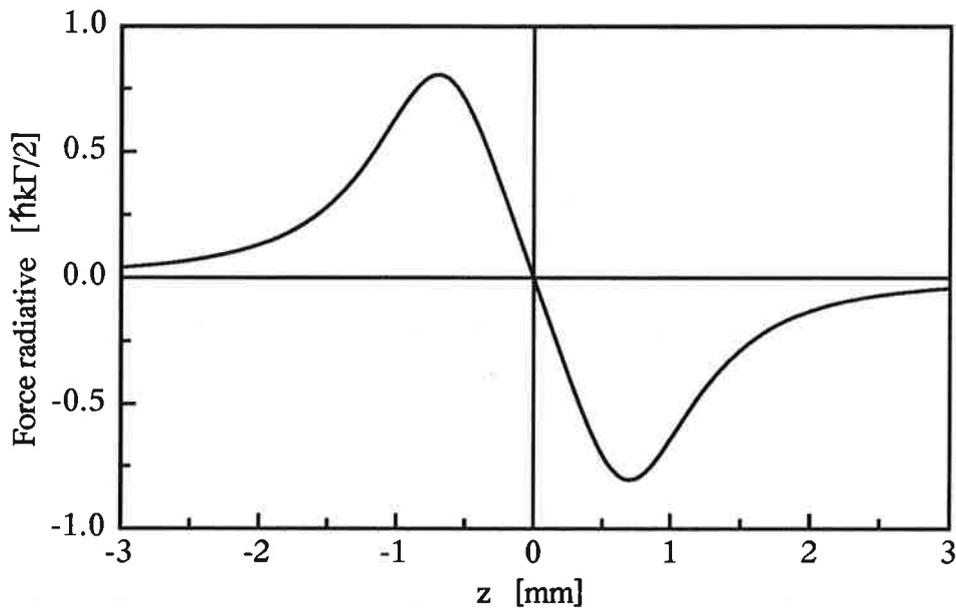


Figure I-7: Force radiative dans un piège magnéto-optique à une dimension en fonction de la position de l'atome  $z$  pour une vitesse nulle,  $\delta = -\Gamma/2$ ,  $\Omega = 0.707 \Gamma$  et un gradient de champ magnétique de 40 Gauss/cm.

Sur la figure I-7 montrant l'allure de la force radiative, on voit que pour des positions centrales ( $z$  petit), des vitesses faibles et aux environs d'un décalage de  $\delta = -\Gamma/2$ , la

force radiative s'écrit en tant que somme d'une force de friction et une force de rappel [NEL 90]:

$$F = -\alpha v - \kappa z \quad (\text{I - 28})$$

avec les coefficients de friction  $\alpha$  et de rappel  $\kappa$  [GRI 92]:

$$\alpha = -\frac{2\hbar k^2 \delta \Gamma \frac{\Omega^2}{2}}{\left(\delta^2 + \frac{\Gamma^2}{4}\right)^2} \quad (\text{I - 29})$$

$$\kappa = -\frac{2k\delta\Gamma\frac{\Omega^2}{2}\mu_B\frac{\partial B}{\partial z}}{\left(\delta^2 + \frac{\Gamma^2}{4}\right)^2} \quad (\text{I - 30})$$

#### 4 - c - Compression limite

Les coefficients de rappel et de friction augmentent avec l'intensité laser et ont un maximum pour un décalage de  $\delta = -0.5 \Gamma$ . Pour une vitesse non nulle de l'atome, la force de piégeage se décale en position et s'annule pour le point  $z = -kv/\omega_B$ . La zone où la force de piégeage varie linéairement avec  $z$  est appelée plage de capture en position et vaut:  $\omega_B z = \delta$ .

On voit bien que l'expression de la force de piégeage donne une équation de mouvement de l'atome selon un oscillateur harmonique amorti autour de  $z=0$ . On a en effet:

$$m\ddot{z} = -\alpha \dot{z} - \kappa z$$

$$\text{ou: } \ddot{z} = -\beta \dot{z} - \omega^2 z \quad (\text{I - 31})$$

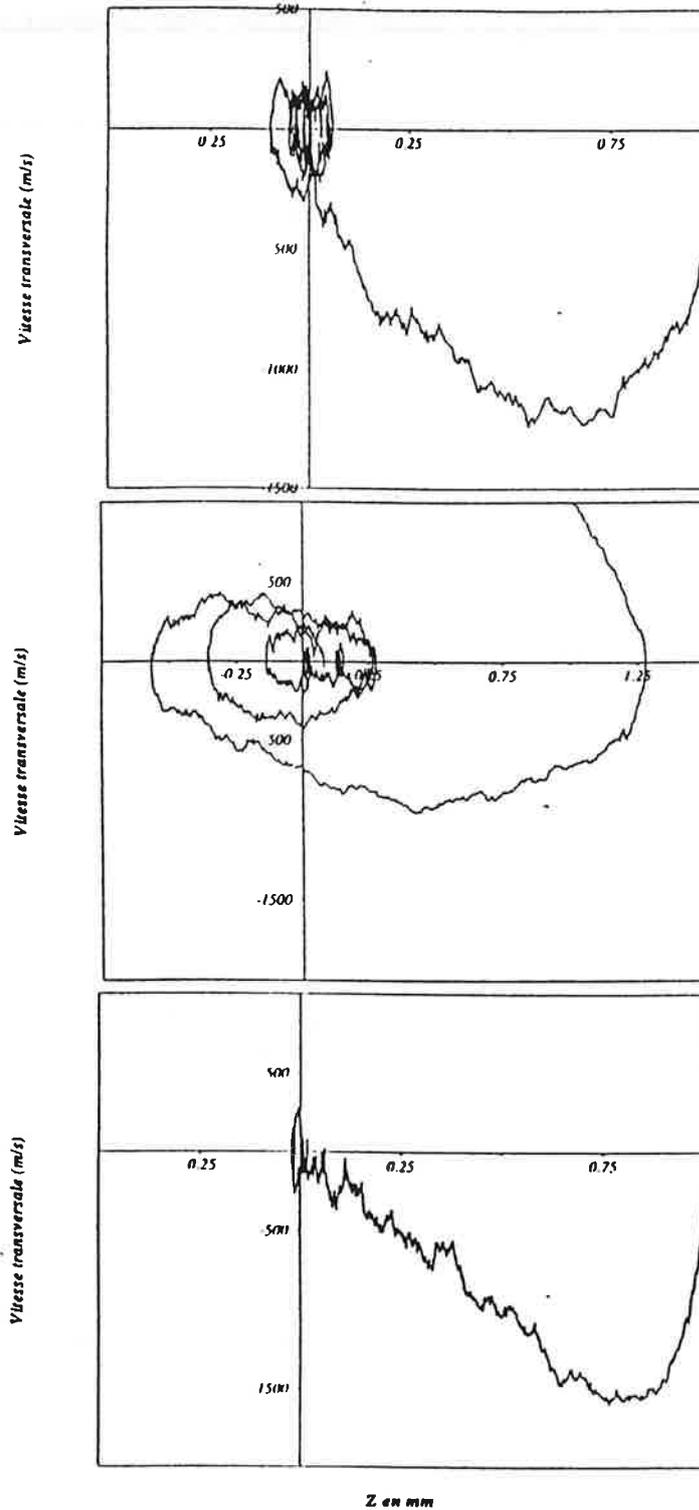


Figure I-8: Diagrammes de phase pour différentes valeurs du décalage  $\delta$  issus d'une simulation Monte-Carlo d'un piège magnéto-optique à une dimension. Ces figures correspondent aux cas: régime sous-amorti: (a)  $\delta = -2\Gamma$ , (b)  $\delta = -\Gamma$  et régime sur-amorti: (c)  $\delta = -\Gamma$ . Les paramètres utilisés dans ce calcul sont:  $s = 3$ ,  $b = 40$  G/cm, et  $v(t=0) = 0$ .

Selon les valeurs des paramètres  $\alpha$  et  $\kappa$ , l'atome subit une trajectoire d'oscillateur harmonique amorti avec un régime sur-amorti ( $\beta^2 > 4\omega^2$ ), critique ( $\beta^2 = 4\omega^2$ ) ou sous-amorti ( $\beta^2 < 4\omega^2$ ). En régime sur-amorti, l'atome rejoint le centre du piège en suivant une trajectoire en loi exponentielle, tandis qu'en régime sous-amorti il lui faut plusieurs oscillations autour de celui-ci avant de s'y confiner. Ceci est illustré par la figure I-8, sur laquelle sont représentés des diagrammes de phases pour différents décalages  $\delta$ . Ces résultats sont issus d'une simulation Monte-Carlo [DJE 95], qui a été entreprise pour interpréter les résultats de nos expériences de piège magnéto-optique à deux dimensions.

A nouveau la compression est limitée par le caractère aléatoire de l'émission spontanée qui tend à disperser les atomes dans le piège. Ces fluctuations aléatoires rapides peuvent être modélisées par un coefficient de diffusion  $D_p$ , qui est donné par l'expression (I-12), de telle façon à ce qu'un nuage d'atomes dans un piège présente une température d'équilibre déterminée par une équation de Fokker-Planck [STE 92], [MOL 94]. La solution stationnaire de l'équation de Fokker-Planck pour un oscillateur harmonique à une dimension donne comme température d'équilibre:

$$kT = \frac{D_p}{\alpha} \quad (\text{I - 32})$$

Celle-ci est donc la même que pour la mélasse Doppler correspondante. La compression limite en position des atomes est elle de:

$$z^2 = \frac{D_p}{\alpha \kappa} \quad (\text{I - 33})$$

Le temps caractéristique pour la compression est donnée par la constante de temps suivante:

$$\tau_c = \frac{2m}{\alpha} \quad (\text{I - 34})$$

Élément	H	Li	Na	K	Rb	Cs
plage de capture [mm]	8.89	0.52	0.88	0.51	0.53	0.46
compr. limite [ $\mu\text{m}$ ]	0.065	0.037	0.046	0.039	0.040	0.040
temps caract. $\tau_c$ [ $\mu\text{s}$ ]	0.012	2.5	6.15	18.1	40.7	81.5

Tableau I-3: Ordre de grandeur pour la plage de capture, la compression limite en position des atomes, et le temps caractéristique pour cette compression. Toutes ces valeurs correspondent à un décalage en fréquence de  $\delta = -\Gamma/2$ , une fréquence de Rabi de  $\Omega = 0.707\Gamma$ , et un gradient de champ magnétique de 40 G/cm.

### I - 2 - 5 - Généralisation à des transitions plus complexes

Les pages précédentes présentaient différentes configurations du refroidissement d'atomes par laser pour des atomes possédant des transitions relativement simples qui n'ont qu'un seul sous-niveau fondamental. Dans cette partie, on va essayer de généraliser les résultats précédents au cas d'une transition  $J \rightarrow J+1$ , où  $J$  et  $J+1$  sont respectivement les moments cinétiques associés au niveau fondamental et au niveau excité de la transition. On se limitera pour l'instant à un traitement à une seule dimension spatiale des différents problèmes.

Les transitions  $J \rightarrow J+1$ , avec  $J > 0$ , sont des systèmes multi-niveaux composés de plusieurs sous-niveaux Zeeman fondamentaux et de plusieurs sous-niveaux Zeeman excités. Ces sous-niveaux sont à l'origine de mécanismes nouveaux pour le refroidissement et la compression dans les mélasses et dans les pièges. Ces mécanismes sont plus efficaces que les mécanismes Doppler et conduisent à des températures très basses. Ceux-ci sont appelés mécanismes sub-Doppler.

Ce paragraphe sera divisé en plusieurs parties. Tout d'abord, on présentera les mécanismes Doppler qui entrent en jeu pour ces transitions complexes pour le cas d'une mélasse et d'un piège magnéto-optique. Ensuite, on présentera les mécanismes sub-Doppler qui apparaissent dans une mélasse ou dans un piège. Comme dans toutes nos expériences on utilise la transition entre niveaux hyperfins  $F = 4 \rightarrow F' = 5$  de la raie  $D_2$  du césium, on notera dans la suite pour les transitions en jeu  $F \rightarrow F+1$  au lieu de  $J \rightarrow J+1$ .

## 5 - a - Mélasse Doppler

Pour calculer l'expression de la force radiative agissant sur un atome dans une mélasse, on utilise à nouveau l'équation d'évolution du système (I-17) dans le formalisme de la matrice densité. Pour une transition générale de  $F$  vers  $F+1$ , l'Hamiltonien du problème s'écrit:  $H = H_A + V_{AL}$ , avec:

$$H_A = \frac{p^2}{2m} + \sum_{m_F} \hbar \omega_{FF'} |F', m_F\rangle \langle F', m_F|, \text{ et}$$

$$V_{AL} = -d \sum_{q=0, \pm 1} \sum_{m_F, m_F'} C_{m_F}^{m_F'} [E_q e^{-i\omega_L t} |F', m_F+q\rangle \langle F, m_F| + \text{c.c.}]$$

où l'Hamiltonien d'interaction entre l'atome et le champ s'écrit en fonction des coefficient de Clebsch-Gordan  $C_{m_F}^{m_F'}$  entre les sous-niveaux des niveaux fondamental et excité.

En considérant que les intensités laser sont faibles, la force totale agissant sur l'atome dans une mélasse Doppler est la somme des deux forces de pression de radiation dues aux deux ondes  $\sigma^+$  et  $\sigma^-$ . En faisant le même calcul que pour le cas d'une transition  $J=0 \rightarrow J=1$ , et en négligeant toute cohérence entre les sous-niveaux Zeeman, on trouve l'expression pour la force radiative agissant sur un atome ayant une transition  $F \rightarrow F+1$  dans une mélasse Doppler:

$$F = \frac{\hbar k \Gamma}{2} \sum_{i=-F}^F \left\{ \left( s_+ C_{m_i}^{m_{i+1}} - s_- C_{m_i}^{m_{i-1}} \right) \Pi_i \right\} \quad (\text{I - 35})$$

Cette force s'écrit donc en fonction des paramètres de saturation  $s_{\pm}$  des ondes  $\sigma^+$  et  $\sigma^-$  qui sont donnés par l'expression (I-20), et des populations  $\Pi_i$  des sous-niveaux fondamentaux. La force résulte donc d'un déséquilibre entre les populations des sous-niveaux fondamentaux. En tant qu'exemple, la force pour une transition de  $F=1$  vers  $F'=2$  est tracée sur la figure I-9. L'expression de cette force est la suivante:

$$F_{12} = \frac{\hbar k \Gamma}{2} \left\{ \left( s_+ - \frac{s_-}{6} \right) \Pi_1 + \left( \frac{s_+}{2} - \frac{s_-}{2} \right) \Pi_0 + \left( \frac{s_+}{6} - s_- \right) \Pi_{-1} \right\} \quad (\text{I - 36})$$

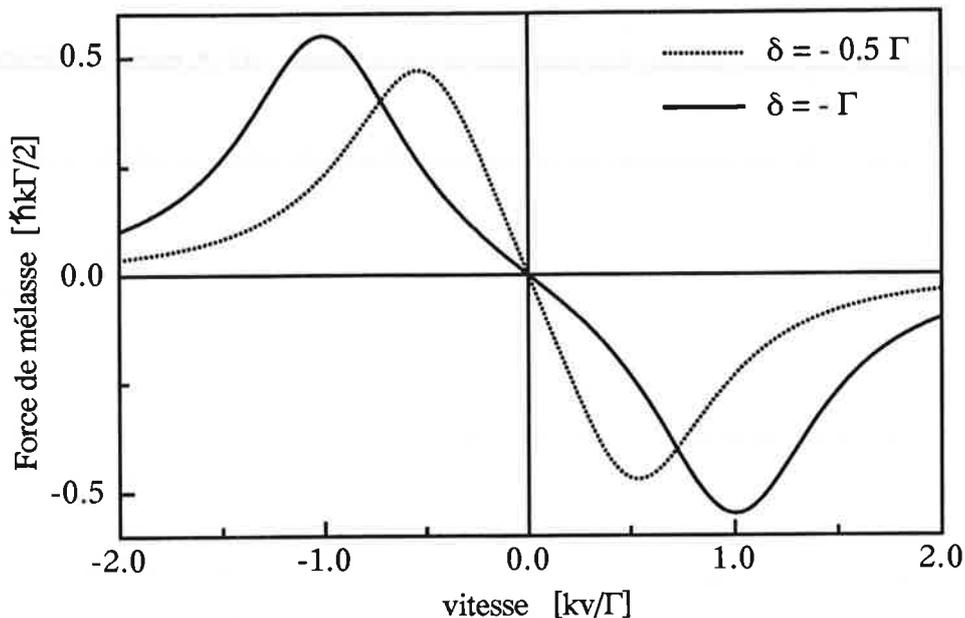


Figure I-9: Forces Doppler pour une transition  $F=1 \rightarrow F'=2$  en fonction de la vitesse pour  $\Omega = 0.707 \Gamma$  et  $\delta = -0.5 \Gamma$ ,  $\delta = -\Gamma$ .

On peut essayer d'expliquer qualitativement le mécanisme auquel est soumis un atome dans une mélasse Doppler par un déséquilibre entre les populations des sous-niveaux fondamentaux. Considérons le cas d'un atome de césium présentant la transition  $F=4 \rightarrow F'=5$  (voir figure I-10) se trouvant dans une mélasse Doppler. Cette transition est excitée par deux ondes électromagnétiques polarisées  $\sigma^+$  et  $\sigma^-$ , de même intensité, de directions opposées et de même fréquence, qui est décalée vers le rouge de  $\delta = \omega_L - \omega_0$  ( $\delta < 0$ ). Les probabilités d'absorption en dépendance du sous-niveau fondamental et de la polarisation laser sont données par la figure I-10.

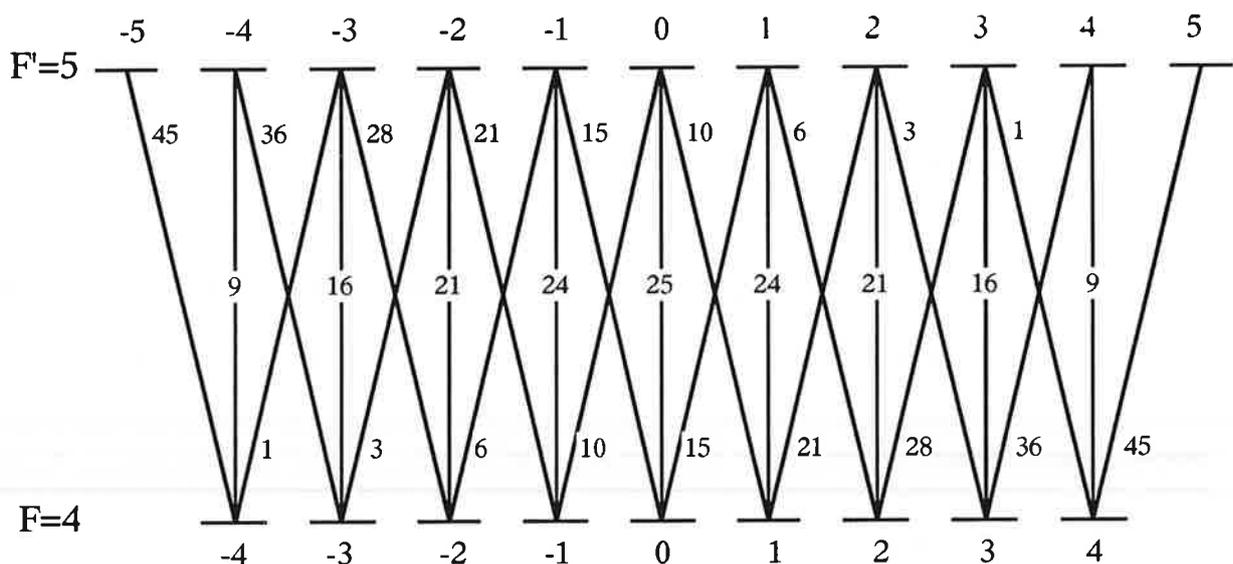


Figure I-10: Niveaux et coefficients de Clebsch-Gordan en jeu pour la transition  $F=4 \rightarrow F'=5$  du césium.

Si l'atome se trouve en présence d'une onde polarisée  $\sigma^+$  (resp.  $\sigma^-$ ), il sera pompé optiquement dans son sous-niveau fondamental  $m_F = +4$  (resp.  $-4$ ). A partir de ce sous-niveau, le système correspond au système à trois niveaux  $m_F = +4$  vers  $m_F = +3$  et  $m_F = +5$  (resp.  $m_F = -4$  vers  $m_F = -3$  et  $m_F = -5$ ). En regardant les probabilités d'absorption de la figure I-10, on voit que si l'atome est pompé dans le sous-niveau fondamental  $m_F = +4$  (resp.  $-4$ ), sa probabilité d'absorber un photon  $\sigma^+$  (resp.  $\sigma^-$ ) est 45 fois supérieure à celle d'absorber un photon  $\sigma^-$  (resp.  $\sigma^+$ ), et il aura donc tendance à cycliser sur la transition  $m_F = +4 \rightarrow m_F = +5$  (resp.  $-4 \rightarrow -5$ ).

Dans notre mélasse optique, le pompage optique se fera en fonction de la vitesse de l'atome. Si le décalage  $\delta$  est négatif, l'atome sera d'avantage en résonance avec l'onde se propageant à l'opposée de sa vitesse, à cause de l'effet Doppler. L'atome se comportera finalement comme un système à deux niveaux, système qui dépend de sa vitesse et qui est ou bien  $m_F = +4 \rightarrow m_F = +5$ , ou bien  $m_F = -4 \rightarrow m_F = -5$ , de telle manière à réduire sa vitesse par force de friction.

Remarque:

Le traitement donné ci-dessus néglige toute cohérence entre les différents sous-niveaux Zeeman d'un niveau donné dans le calcul des équations d'évolution du système. Cette approximation est tout à fait légitime, vu que les mécanismes Doppler que nous considérons ici reposent essentiellement sur des cycles dissipatifs d'absorption et d'émission spontanée. Ce sont cependant ces cohérences qui joueront un rôle essentiel pour le refroidissement dès qu'on se trouve à faible vitesse, et qui feront apparaître les phénomènes de refroidissement sub-Doppler.

### 5 - b - Piège magnéto-optique Doppler

Rajoutons au problème considéré dans la partie précédente, un champ magnétique ayant même direction que les lasers et possédant un gradient s'annulant pour  $z=0$ :  $B = \frac{\partial B}{\partial z} \cdot z$ .

Au décalage en fréquence dû à l'effet Doppler provoqué par la vitesse de l'atome vient s'ajouter le décalage dû au déplacement des sous-niveaux Zeeman par effet Zeeman dû à la présence du champ magnétique. Pour une transition entre un sous-niveau fondamental  $m_F$  et un sous-niveau excité  $m_F = m_F \pm 1$ , on trouve pour le décalage effectif en fréquence:

$$\delta_{m_F, m_F = m_F \pm 1} = \delta_L + m_F (kv + g_F \omega_B z) - (m_F \pm 1) (kv + g_{F'} \omega_B z) \quad (\text{I - 37})$$

Dans cette expression,  $g_F$  et  $g_{F'}$  sont les facteurs de Landé respectivement du niveau fondamental  $F$  et du niveau excité  $F'$ .  $\delta_L$  est le décalage entre la fréquence laser et la transition atomique, tandis que  $\omega_B$  est la pulsation Zeeman:

$$\omega_B = \frac{\mu_B}{\hbar} \frac{\partial B}{\partial z} \quad (\text{I - 38})$$

Comme dans le cas de mélasse Doppler traité auparavant, le décalage Doppler dû à la vitesse de l'atome met celui-ci en résonance avec l'onde laser dirigée en opposée à sa vitesse, et tend donc à réduire sa vitesse par force de friction. Le décalage dû au déplacement des niveaux Zeeman par le champ magnétique tend quant à lui, à mettre l'atome en résonance avec l'onde laser qui va le pousser vers le centre. Les mécanismes dans le piège vont donc amener l'atome au centre du piège, et ceci tout en le refroidissant à une vitesse nulle.

D'une manière générale, la force Doppler pour une transition de  $F$  vers  $F'=F+1$  dans un piège magnéto-optique s'écrit:

$$F = \frac{\hbar k \Gamma}{2} \sum_{m_F = -F}^{+F} \{ (s_{m_F, m_F+1} - s_{m_F, m_F-1}) \Pi_{m_F} \} \quad (\text{I - 39})$$

$$= \sum_{m_F = -F}^{+F} F_{m_F}$$

où  $\Pi_i$  représente la population du sous-niveau fondamental  $i$ , et les paramètres de saturation correspondants aux transitions de  $m_F$  vers  $m_F = m_F \pm 1$  sont données par l'expression:

$$s_{m_F, m_F \pm 1} = \frac{(C_{m_F}^{m_F \pm 1})^2 \frac{\Omega^2}{2}}{\delta_{m_F, m_F \pm 1}^2 + \frac{\Gamma^2}{4}} \quad (\text{I - 40})$$

On voit que la force Doppler dans le piège va être une somme sur tous les sous-niveaux fondamentaux d'une force  $F_{m_F}$  dépendant de celui-ci, et qui correspond à la force stationnaire s'exerçant sur un système à trois niveaux de niveau fondamental  $m_F$ .

Regardons ce qu'il se passe concrètement à l'aide d'un exemple pour l'atome de césium. Prenons le cas où un atome se trouvant à  $z > 0$  avec  $v > 0$  (voir figure I-6) est dans le sous-niveau fondamental  $m_F = -4$ . A cause de la différence des coefficients de Clebsch-Gordan et de l'effet Zeeman, cet atome aura une probabilité très grande d'absorber un photon  $\sigma^-$ . Il aura donc tendance à rester sur le sous-niveau fondamental  $m_F = -4$  et de subir la force dissipative  $F_{-4}$ . Le système à plusieurs sous-niveaux se réduit donc à un système à trois niveaux. Notre atome verra donc finalement une force  $F_{m_F = \pm 4}$ , en dépendance de sa position et de sa vitesse. Ces forces représentées sur la figure I-11 sont données par l'expression:

$$F_{m_F = \pm 4} = \pm \frac{\hbar k \Gamma}{2} (s_{\pm 4, \pm 5} - s_{\pm 4, \pm 3}) \Pi_{\pm 4} \quad (\text{I - 41})$$

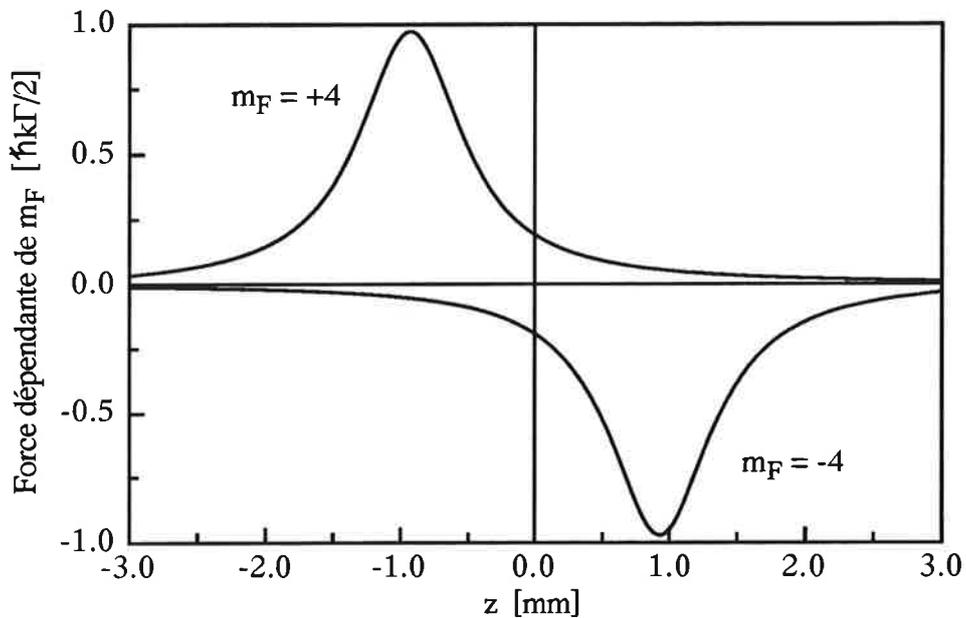


Figure I-11: Forces  $F_{m_F = \pm 4}$  en fonction de la position pour  $\delta = -\Gamma$ ,  $\Omega = 0.707 \Gamma$  et un gradient de champ magnétique de 40 G/cm.

En regardant la figure I-11, on voit que la plage de capture pour laquelle un atome est ramené vers le centre du piège tout en étant refroidi est donnée par la position où la dérivée

de la force s'annule. Cette plage de capture est donnée pour le cas du césium par l'expression

$$\text{suivante: } z_{\text{capt}} = \pm \frac{\delta - kv}{1.4 \frac{\partial B}{\partial z}} \quad (\text{I - 42})$$

où  $z$  est donné en cm,  $\delta$  en MHz, et le gradient en G/cm.

### 5 - c - Mélasse sub-Doppler

Après les premières expériences de réalisations de mélasses [CHU 85,86], qui semblaient indiquer que la limite du refroidissement était donnée par la température Doppler, le groupe du N.I.S.T. a, en 1988 [LET 88], (et d'autres groupes un peu plus tard [CHU 89], [DAL 89], [SHE 89]) mesuré dans une mélasse à trois dimensions des températures inférieures à la limite Doppler. De nouvelles théories plus complètes ont été présentées pour expliquer ces phénomènes inattendus [CHU 89], [DAL 89a,b], [WEI 89], [CAS 92]. Celles-ci prennent en compte la structure multi-niveaux de l'atome et la dépendance spatiale de la polarisation des ondes lumineuses. En prenant en compte les cohérences entre les différents sous-niveaux Zeeman, chose qu'on avait négligée jusqu'à présent, il apparaît des effets de pompage entre les différents sous-niveaux du fondamental, dont la dégénérescence est levée par l'onde électromagnétique. L'atome voit en effet un gradient de polarisation qui varie sur une dimension de l'ordre de la longueur d'onde du laser.

Il apparaît ainsi une nouvelle constante de temps d'évolution de l'état interne du système, qui est le temps de pompage entre les différents sous-niveaux Zeeman du niveau fondamental. Le temps de pompage va dépendre de la polarisation du champ électromagnétique, des coefficients de Clebsch-Gordan des sous-niveaux à considérer et de l'intensité lumineuse des faisceaux lasers servant à la mélasse. A faible intensité laser, ce temps de pompage devient plus grand que le temps de relaxation de l'état excité, et l'état interne de l'atome ne parvient plus à suivre adiabatiquement la variation du champ laser vue par l'atome en mouvement. Ceci se traduit par une nouvelle force de friction qui ne dépend pas de l'intensité laser: la force sub-Doppler. Cette force présente un coefficient de frottement plus important que la force Doppler, menant ainsi à des températures plus basses. Elle possède cependant une plage de capture en vitesse plus faible, ce qui la fait entrer en jeu que pour des températures déjà proches de la limite Doppler.

A une dimension, ce mécanisme sub-Doppler a été étudié pour le cas de deux configurations de polarisation des faisceaux lasers:  $\text{Lin} \perp \text{Lin}$  (mélasse Sisyphé) et  $\sigma^+ \sigma^-$ , pour le cas de différentes transitions atomiques [DAL 89b], [CAS 92]. Dans ce qui suit, on va se restreindre à la configuration de polarisations qui nous intéresse pour nos expériences de piège: la configuration  $\sigma^+ \sigma^-$ .

Considérons un atome au repos en un point quelconque  $z$ . Dans le champ électromagnétique créé par les lasers polarisés  $\sigma^+ \sigma^-$ , l'atome voit un champ électrique qui possède une polarisation selon un axe fixe, qu'on notera  $Oy$ , et qui varie en amplitude avec le temps. L'effet Stark dynamique déplace les sous-niveaux fondamentaux de l'atome selon l'axe de polarisation. Dans l'état stationnaire, comme cet effet Stark ne lève pas la dégénérescence en  $m_F$ , les populations des sous-niveaux fondamentaux sont réparties symétriquement par rapport au sous-niveau central  $m_F=0$ . Aucune force ne peut donc s'exercer sur cet atome.

Considérons maintenant que cet atome se déplace à la vitesse  $v$  le long de l'axe  $Oz$ . Dans cette situation l'atome voit une polarisation linéaire dans le plan  $xOy$  qui tourne autour de l'axe  $Oz$  avec une vitesse angulaire de  $\Omega = -kv$ . Il semble donc adéquat de changer de repère, dans lequel la polarisation reste fixe selon un axe, tandis que l'atome se déplace selon  $Oz$ . En faisant ce changement dans un repère tournant, on voit apparaître dans l'Hamiltonien décrivant le problème, un terme inertiel dû à la rotation. Celui-ci possède la même forme que l'Hamiltonien d'interaction de l'atome avec un champ magnétique fictif orienté selon  $Oz$ , autour duquel la précession de Larmor du moment cinétique total s'effectuerait à la pulsation  $kv$ . Ceci n'est donc rien que la traduction du théorème de Larmor. Ce champ magnétique fictif est donné par:

$$B_{\text{fictif}} = - \frac{k v}{g_F \mu_B} \quad (\text{I - 43})$$

Les nouveaux mécanismes de refroidissement proviennent de ce terme inertiel, puisque le reste de l'Hamiltonien est identique à celui décrivant une mélasse  $\sigma^+ \sigma^-$ . En effet, quand l'atome se déplace selon  $Oz$ , la polarisation laser change si rapidement que le moment cinétique total de l'atome n'arrive plus à suivre la direction de la polarisation. Les degrés de liberté internes de l'atome n'arrivent donc plus à suivre les degrés de liberté externes de celui-ci, et le terme inertiel induit finalement un couplage non-adiabatique proportionnel à  $kv$  entre les sous-niveaux fondamentaux. Ces effets non-adiabatiques créent une différence entre les populations des sous-niveaux Zeeman fondamentaux et fournissent donc une force de friction sur les atomes: la force sub-Doppler.

Le champ magnétique fictif  $B_{\text{fictif}}$  selon Oz déplace les sous-niveaux fondamentaux  $m_F$  de la quantité d'énergie  $m_F \hbar k v$  et lève donc leur dégénérescence. Sous l'action du champ électrique  $E(t)$  dirigé selon Oy' dans le repère tournant, les sous-niveaux fondamentaux sont couplés entre eux par des cycles d'absorption -émission stimulée. Ces couplages se traduisent par des termes de cohérences dans les équations d'évolution du système qui sont données par les équations de Bloch optiques. En résolvant les équations d'évolution des populations des sous-niveaux excités et des cohérences optiques en fonction des populations des sous-niveaux fondamentaux, on peut calculer la force radiative s'exerçant sur un atome dans une mélasse sub-Doppler.

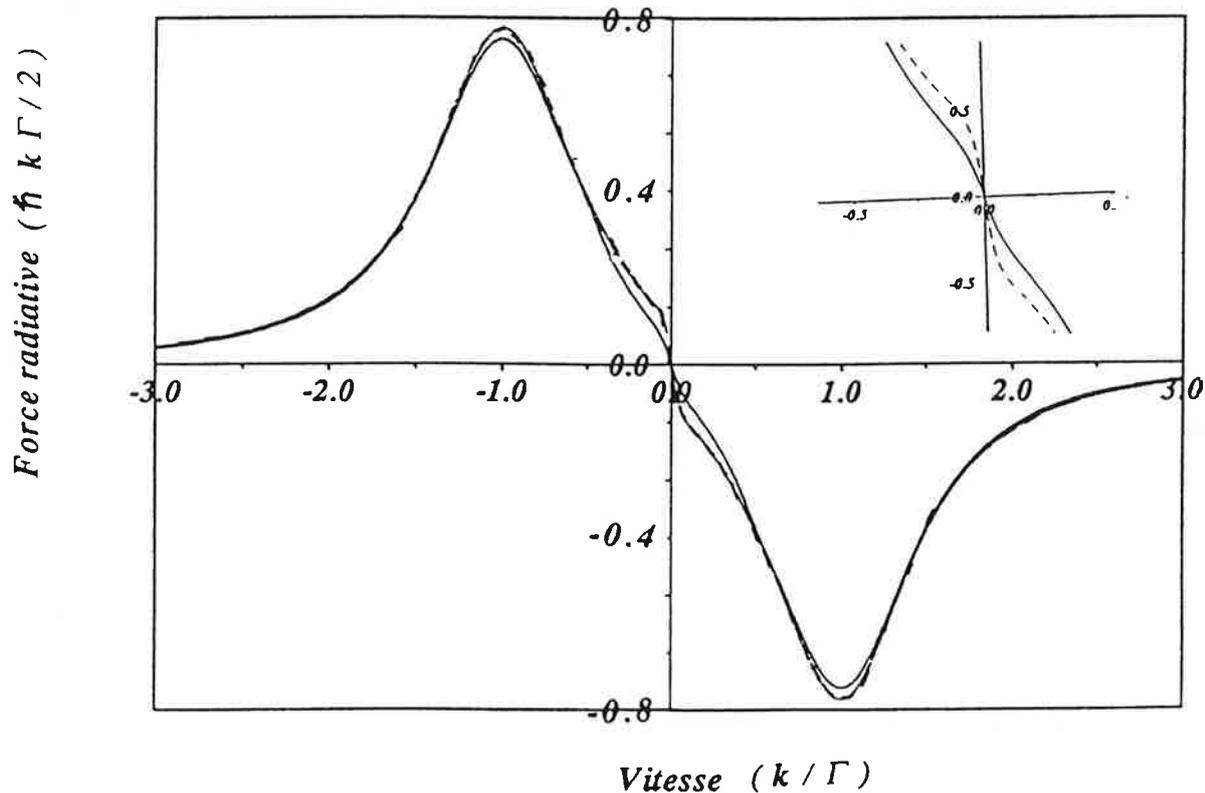


Figure I-12: Force sub-Doppler en fonction de la vitesse pour les transitions  $F=1 \rightarrow F'=2$  (trait plein) et  $F=2 \rightarrow F'=3$  (trait pointillé) et pour  $s=3$  et  $\delta=-2\Gamma$ . Ce résultat d'un calcul numérique est tiré de la référence [DJE 95].

En analysant la variation de la force Doppler en fonction de la vitesse (voir figure I-12), on voit que dans le domaine de très faibles vitesses ( $k v \ll \text{temps de pompage optique}$ ), la force est linéaire et possède un coefficient de friction plus grand que la force Doppler, qui prédomine pour les autres régimes de vitesses. La force sub-Doppler pour une transition de  $F=1 \rightarrow F'=2$  est donnée pour de très faibles vitesses par:

$$F = \frac{120}{17} \frac{-\delta \Gamma}{5 \Gamma^2 + 4 \delta^2} \hbar k^2 v \quad (\text{I - 44})$$

Le coefficient de friction lié à la force sub-Doppler ne dépend pas de l'intensité laser, contrairement au cas Doppler. De plus, le coefficient de friction augmente quand on augmente le nombre de sous-niveaux en jeu. Le refroidissement sub-Doppler devient donc de plus en plus efficace si on augmente  $F$  (voir figure I-12). Des analyses de ces mécanismes en fonction de  $F$  ont été réalisées dans la référence [STE 92b] et révèlent que le coefficient de friction sub-Doppler est à peu près 10 fois plus important pour la transition  $F=4 \rightarrow F'=5$  que l'expression (I-44) pour  $F=1 \rightarrow F'=2$ .

La température d'équilibre d'une mélasse sub-Doppler est proportionnelle à l'intensité laser et inversement proportionnelle au décalage  $\delta$ :

$$k_B T_e \approx \frac{\hbar}{8} \frac{\Omega^2}{|\delta|} \quad (\text{I - 45})$$

La température limite est, d'après des calculs traitant le problème complètement quantiquement, de l'ordre de quelques fois l'énergie de recul:

$$k_B T_{\text{sub}} \approx 20 \frac{\hbar^2 k^2}{2M} \quad (\text{I - 46})$$

Pour l'atome de césium ceci correspond à une température de l'ordre de 2 microKelvins.

### 5 - d - Piège magnéto-optique sub-Doppler

La dynamique d'un atome présentant une transition multi-niveaux dans un piège magnéto-optique est bien plus complexe que le simple cas Doppler présenté auparavant. L'interaction avec des champs de différentes polarisations peut créer, tout comme dans les mélasses, des cohérences entre les états fondamentaux [STE 92b], [GRI 93]. Ceci va être le cas pour des vitesses très faibles, conduisant à des forces de friction plus importantes et des températures plus basses.

Pour aborder le problème de forces sub-Doppler dans un piège magnéto-optique  $\sigma^+ \sigma^-$  à une dimension, on considère tout d'abord la dépendance de ces nouvelles forces sur

un champ magnétique longitudinal  $B_z$ , c'est à dire parallèle au vecteur d'onde  $k$  [VAL 92,94], [WAL 92], [YU 93]. L'onde stationnaire créée par les ondes  $\sigma^+$   $\sigma^-$  présente une polarisation linéaire qui tourne autour de l'axe  $z$  avec une période égale à  $\lambda$ . L'Hamiltonien pour cette situation prend la forme suivante dans le référentiel de repos de l'atome tournant avec la polarisation:

$$H = H_0 - \vec{d} \cdot \vec{E} - \vec{\mu} \cdot \vec{B} \quad (\text{I - 47})$$

Dans le terme d'interaction dipolaire avec le champ magnétique  $\vec{B}$  se trouvent au fait deux interactions avec deux champs magnétiques différents; le champ magnétique fictif  $B_{\text{inertiel}}$  venant du changement du référentiel de repos de l'atome dans un référentiel tournant avec la polarisation laser (à la vitesse angulaire  $\Omega = -kv$ ), et le champ magnétique réel axial  $B_z$ . Ainsi l'effet du champ magnétique va être de déplacer le zéro de vitesse de telle façon à obtenir un refroidissement autour d'une vitesse  $v_g$  au lieu de  $v=0$ , avec:

$$v_g = - \frac{g_F \mu_B B_z}{\hbar k} \quad (\text{I - 48})$$

Ainsi pour un champ magnétique donné, le mouvement de l'atome est amorti vers cette vitesse, appelée vitesse de verrouillage, qui dépend linéairement du champ magnétique [VAL 94] (voir figure I-13).

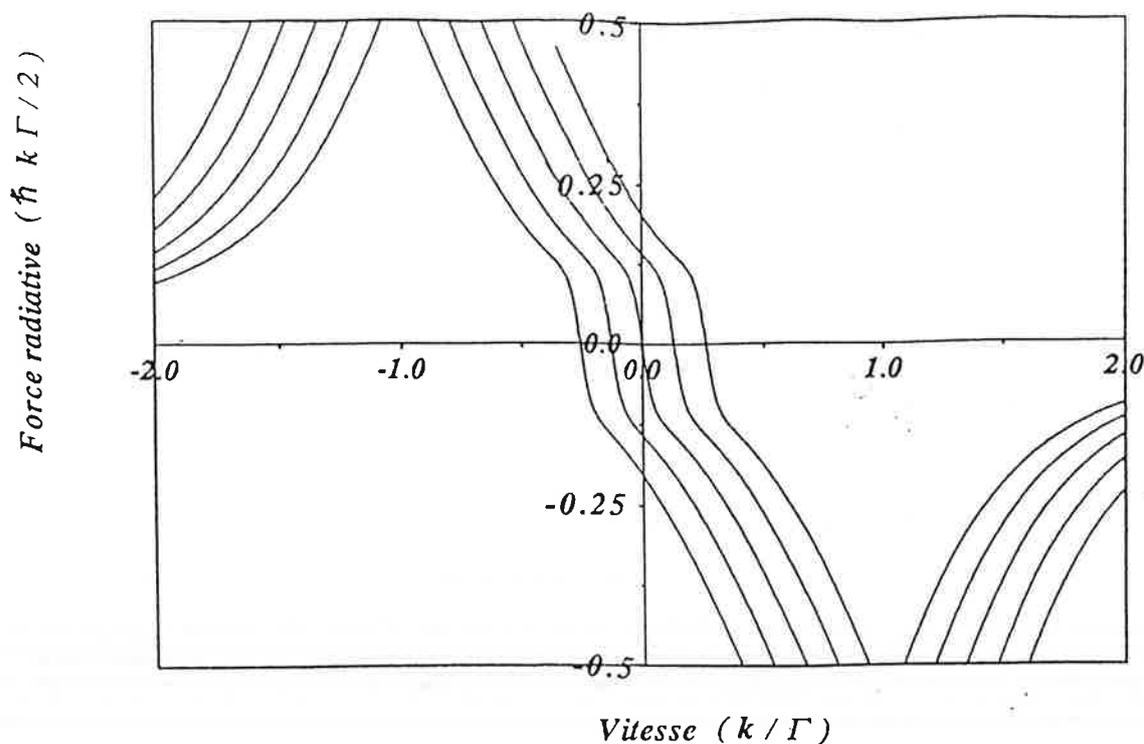


Figure I-13: Force sub-Doppler en fonction de la vitesse pour une transition  $F=2 \rightarrow F'=3$  pour les valeurs suivantes du champ magnétique statique: -4G, -2G, 0G, 2G, 4G.

Considérons maintenant le cas pour lequel un atome est placé dans un gradient de champ magnétique au lieu d'un champ axial constant. Dans ce cas, correspondant à un piège magnéto-optique, les forces de mélasse sont centrées autour d'une vitesse de verrouillage  $v_g$ , qui dépend de la position  $z$ . De la même façon, on s'attend à ce que pour une vitesse donnée la force de rappel soit centrée autour de la position:

$$z_g = \frac{\hbar kv}{g_F \mu_B \frac{\partial B}{\partial z}} \quad (\text{I - 49})$$

En résolvant les équations de Bloch optiques pour l'état stationnaire de l'Hamiltonien (I-47) on obtient l'expression de la force sub-Doppler de piégeage. En fait il existe deux régimes de fonctionnement bien distincts:

- Le régime Doppler ( $kv \gg \tau_p^{-1}$ ) où les cohérences entre différents sous-niveaux ne peuvent avoir lieu, vu l'importance de la vitesse atomique face au temps de pompage optique  $\tau_p^{-1}$  entre sous niveaux Zeeman.

- Le régime sub-Doppler ( $kv \ll \tau_p^{-1}$  et  $\omega_z \ll \tau_p^{-1}$ , avec  $\omega_z = -g_F \mu_B B$ ) où il faut tenir compte des cohérences entre sous-niveaux et où la force devient linéaire en vitesse et position avec des coefficients de friction et de rappel plus importants que pour le cas Doppler.

On trouve ainsi que pour des vitesses relativement grandes, l'effet de refroidissement sub-Doppler disparaît complètement et l'effet Doppler domine. De même pour des positions  $z$  relativement décalées du point  $B_z=0$  ( $z=0$ ), on assiste à un refroidissement pratiquement que Doppler.

Le refroidissement sub-Doppler à l'intérieur d'un piège magnéto-optique devient donc important que pour un atome se trouvant proche du centre du piège et ayant été refroidi préalablement par la pression de radiation. Pour le cas du césium, on trouve typiquement les conditions:  $v \ll 1\text{m/s}$  et  $|z| \ll 1\text{cm}$ . Pour ce régime sub-Doppler, la force s'écrit [STE 92b]:

$$F = -\alpha_{\text{sub}} v - \kappa_{\text{sub}} z \quad (\text{I - 50})$$

avec les coefficients de friction  $\alpha_{\text{sub}}$  et de rappel  $\kappa_{\text{sub}}$  sub-Doppler donnés par:

$$\alpha_{\text{sub}} = c_F \frac{\hbar k^2}{2} \frac{|\delta| \Gamma}{\delta^2 + \frac{\Gamma^2}{4}} \quad (\text{I - 51})$$

et

$$\kappa_{\text{sub}} = c_F \frac{g_F \mu_B}{2} k \frac{\partial B}{\partial z} \frac{|\delta| \Gamma}{\delta^2 + \frac{\Gamma^2}{4}} \quad (\text{I - 52})$$

où  $c_F$  est un coefficient dépendant du niveau fondamental hyperfin  $F$  impliqué dans la transition. Par exemple, pour la transition  $F=2 \rightarrow F'=3$  de  $^{87}\text{Rb}$   $c_F$  vaut 11, tandis que pour  $F=3 \rightarrow F'=4$ ,  $c_F=22.1$  [WALL 94]. Les coefficients de friction et de rappel ne dépendent donc pas de l'intensité laser, contrairement au cas Doppler.

En calculant la température d'un échantillon d'atomes soumis à cette force, on trouve une nette différence avec le cas Doppler. La température ne présente plus de minimum pour un décalage de  $\delta=\Gamma/2$  où pour le cas Doppler on trouve la température Doppler, mais la température sub-Doppler devient de plus en plus faible en augmentant le décalage  $\delta$ . Ceci vient du fait que le coefficient de friction  $\alpha_{\text{sub}}$  sub-Doppler dépend de  $\delta^{-1}$  et non de  $\delta^{-3}$  comme  $\alpha_{\text{Dop}}$  (I-29). On a donc:

$$kT = \frac{D_p}{\alpha} \text{ prop. } \delta^{-1} \quad (\text{I - 53})$$

## I - 2 - 6 - Généralisation à plusieurs dimensions

Les mécanismes Doppler qu'on a présentés pour les cas d'une mélasse et d'un piège magnéto-optique à une dimension se laissent facilement généraliser à plusieurs dimensions. Dans le régime de faibles intensités de lumière, on peut simplement additionner les forces de radiation provenant de chaque faisceau laser pour calculer la pression de radiation totale agissant sur un atome.

Le passage d'une dimension à plusieurs est relativement compliqué dans le cas des mécanismes sub-Doppler, et ceci est dû essentiellement à deux faits [MOL 91], [STE 92]. Premièrement, tandis que dans le cas d'un piège magnéto-optique  $\sigma^+\sigma^-$  à une dimension l'intensité totale de la lumière est constante en tout point de l'espace, à plusieurs dimensions une superposition de plusieurs paires de faisceaux lasers peut conduire à une importante modulation spatiale de l'intensité, dépendant de la phase relative entre les différents faisceaux. Comme deuxièmement la direction du champ magnétique n'est plus purement longitudinale par rapport aux vecteurs d'onde, on assiste à une compétition complexe entre la précession de Larmor et le pompage optique.

En gros, les mécanismes Doppler importent pour la capture d'atomes dans une mélasse ou dans un piège à plusieurs dimensions [GAJ 94], tandis qu'un mécanisme sub-Doppler, s'il se produit, peut provoquer des températures extrêmement basses, voire une super-compression.

Dans cette partie, on essayera d'expliquer les phénomènes qui entrent en jeu dans un piège magnéto-optique en passant d'une à plusieurs dimensions.

### 6 - a - Cas à deux dimensions

A deux dimensions, un piège magnéto-optique est créé à l'aide de deux ondes polarisées  $\sigma^+$  selon les directions  $+x$  et  $-y$ , et de deux ondes polarisées  $\sigma^-$  selon les directions  $-x$  et  $+y$  (voir figure I-19). A ce champ électromagnétique on superpose dans la plupart des expériences un champ magnétique quadrupolaire créant ainsi un gradient de champ magnétique aux alentours du centre, qui peut être décrit par l'expression suivante:

$$\vec{B} = b \begin{pmatrix} x \\ -y \end{pmatrix} = b (x \vec{e}_x - y \vec{e}_y) \quad (\text{I - 54})$$

A partir de ce descriptif du dispositif, on peut utiliser le formalisme de la matrice densité pour calculer l'expression de la force radiative d'un atome dans un tel piège. En négligeant les cohérences entre sous-niveaux, et donc les mécanismes sub-Doppler, on trouve pour la force Doppler agissant sur un atome se trouvant à la position  $(x,y)$  ou  $(r,\theta)$  dans le piège à deux dimensions [DJE 95]:

$$F_x = \frac{\delta kv_x + \delta \Omega_B \cos \theta}{\left(\delta^2 + \frac{\Gamma^2}{4}\right)^2} \quad (\text{I - 55})$$

$$F_y = \frac{\delta kv_y + \delta \Omega_B \sin \theta}{\left(\delta^2 + \frac{\Gamma^2}{4}\right)^2}$$

avec:  $\Omega_B = -\frac{g_F \mu_B}{\hbar} \left( \frac{\partial B}{\partial x} x - \frac{\partial B}{\partial y} y \right)$

La force totale est donc en effet une somme d'une force de rappel et d'une force de friction, et le passage d'une à deux dimension consiste simplement à sommer les forces provenant des deux dimensions distinctes.

Appliqué aux dimensions transverses d'un jet atomique, qui peut être ralenti, un piège magnéto-optique à deux dimensions permet de focaliser ce jet sur des sections très petites, augmentant ainsi considérablement sa densité. Un tel piège a été proposé pour la première fois en 1989 [NEL 89] et réalisé depuis pour différents alcalins [NEL 90], [RII 90], [YU 94]. A deux dimensions, les expériences réalisées semblent indiquer que le mécanisme dominant dans le piège magnéto-optique est la force de pression de radiation qui conduit à une température de l'ordre de la température limite Doppler. En augmentant les gradients de champs magnétiques, on trouve une valeur limite de compression qui indique qu'il ne se produit pas de compression sub-Doppler [NEL 90]. Comme celle-ci devrait se produire dans une zone où le champ magnétique est inférieur au Gauss, on voit bien que les effets de pompage optique n'ont d'importance que sur une très petite zone de l'espace. Les mécanismes prédominants pour la compression dans un piège magnéto-optique à deux dimensions sont donc les forces Doppler [NEL 90], bien que des effets sub-Doppler devraient apparaître pour des décalages en fréquence importants.

### 6 - b - Cas à trois dimensions

Un montage typique d'un piège magnéto-optique à trois dimensions, qui correspond aussi au montage expérimental que nous utilisons pour les expériences de collisions

résonnantes entre atomes de Rydberg, est décrit par la figure I-14. Sur cette figure, on voit les polarisations des six faisceaux lasers. Le gradient de champ magnétique est produit à l'aide de deux bobines en position Helmholtz parcourues en sens inverses par un courant électrique, créant ainsi un champ magnétique quadrupolaire, qui est décrit par la formule suivante:

$$\vec{B} = b \begin{pmatrix} x \\ y \\ z \end{pmatrix} = b (x \vec{e}_x + y \vec{e}_y + z \vec{e}_z) \quad (\text{I - 56})$$

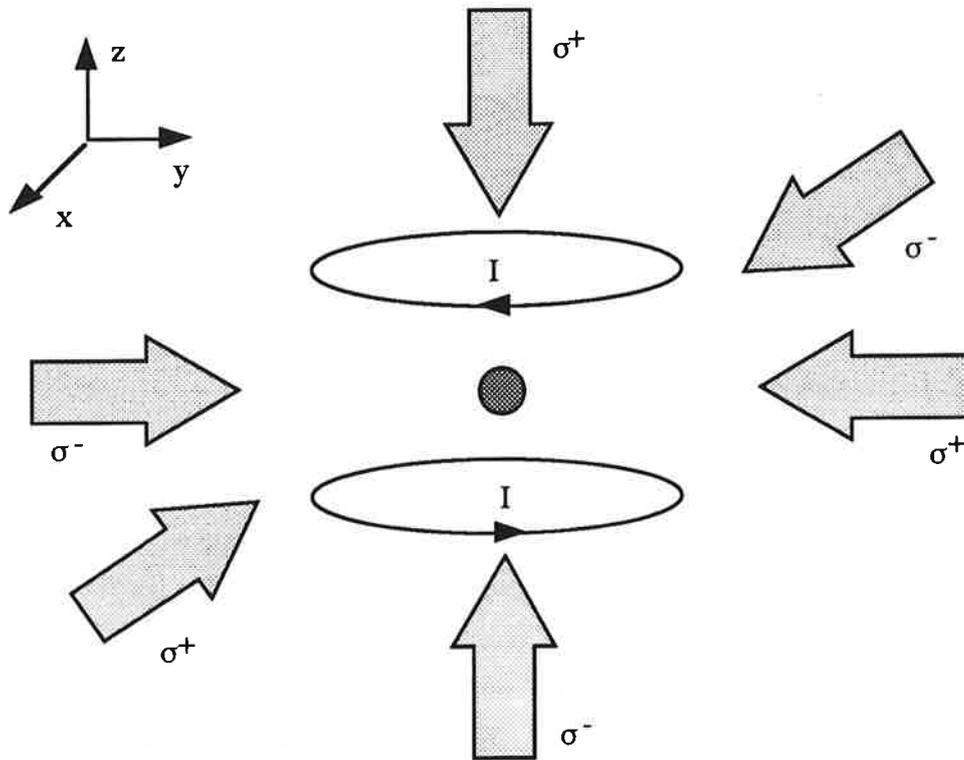


Figure I-14: Schéma d'un dispositif de piège magnéto-optique à trois dimensions, montrant les faisceaux lasers et les champs magnétiques en jeu.

En considérant un tel dispositif expérimental, il est à nouveau possible de traiter le problème d'un atome dans un piège magnéto-optique à trois dimensions à l'aide du formalisme de la matrice densité. En négligeant tout phénomène sub-Doppler, on trouve à nouveau que la force radiative totale agissant sur un atome est une somme de trois forces à une dimension. Cette force Doppler, vu sa grande plage de capture, est responsable pour tous les mécanismes de remplissage d'un piège magnéto-optique 3D. D'éventuels mécanismes sub-Doppler peuvent, sur ces atomes une fois capturés et refroidis, conduire à des températures de l'ordre de l'énergie de recul.

La présence d'effets sub-Doppler dans des pièges magnéto-optiques a été démontrée pour la première fois expérimentalement en 1991 [STE 91]. Depuis de nombreux groupes [KOH 93], [HÖP 93], [WALL 94], [DRE 94] ont trouvés des températures de piège bien plus basses que celles prédites par la simple théorie Doppler, et qui sont identiques à celles des mélasses optiques  $\sigma^+\sigma^-$  [CAS 90], [DRE 94]. Des mesures expérimentales [DRE 94] du coefficient de friction  $\alpha$  à trois dimensions ont révélé une réduction de  $\alpha$  d'un facteur 10 comparé à des calculs de piège  $\sigma^+\sigma^-$  à une dimension, restant néanmoins 10 fois plus important que le coefficient de friction Doppler. Le coefficient de friction  $\alpha$  ne dépend que très peu du décalage  $\delta$ , ce qui indique que à la fois l'effet d'orientation induit par mouvement et l'effet de refroidissement Sisyphe sont présent dans le piège. Les mêmes mesures indiquent que le coefficient de rappel  $\varkappa$  est réduit d'un facteur 100 par rapport au calcul à une dimension, ce qui laisse  $\varkappa$  comparable à un coefficient de rappel Doppler.

$$\alpha_{3D} \approx \frac{1}{10} \alpha_{1D} \approx 10 \alpha_{\text{Doppler}} \quad (\text{I - 57})$$

$$\varkappa_{3D} \approx \frac{1}{100} \varkappa_{1D} \approx \varkappa_{\text{Doppler}}$$

Ainsi, on peut dire que le mécanisme responsable pour le remplissage d'un piège magnéto-optique est essentiellement donné par la force Doppler [RAA 87], [SES 89], tandis que les mécanismes sub-Doppler deviennent importants que pour des atomes une fois capturés et refroidis à la limite Doppler. Ces mécanismes offrent la possibilité d'obtenir des températures extrêmement basses, de l'ordre de l'énergie de recul, c'est-à-dire quelques microKelvins.

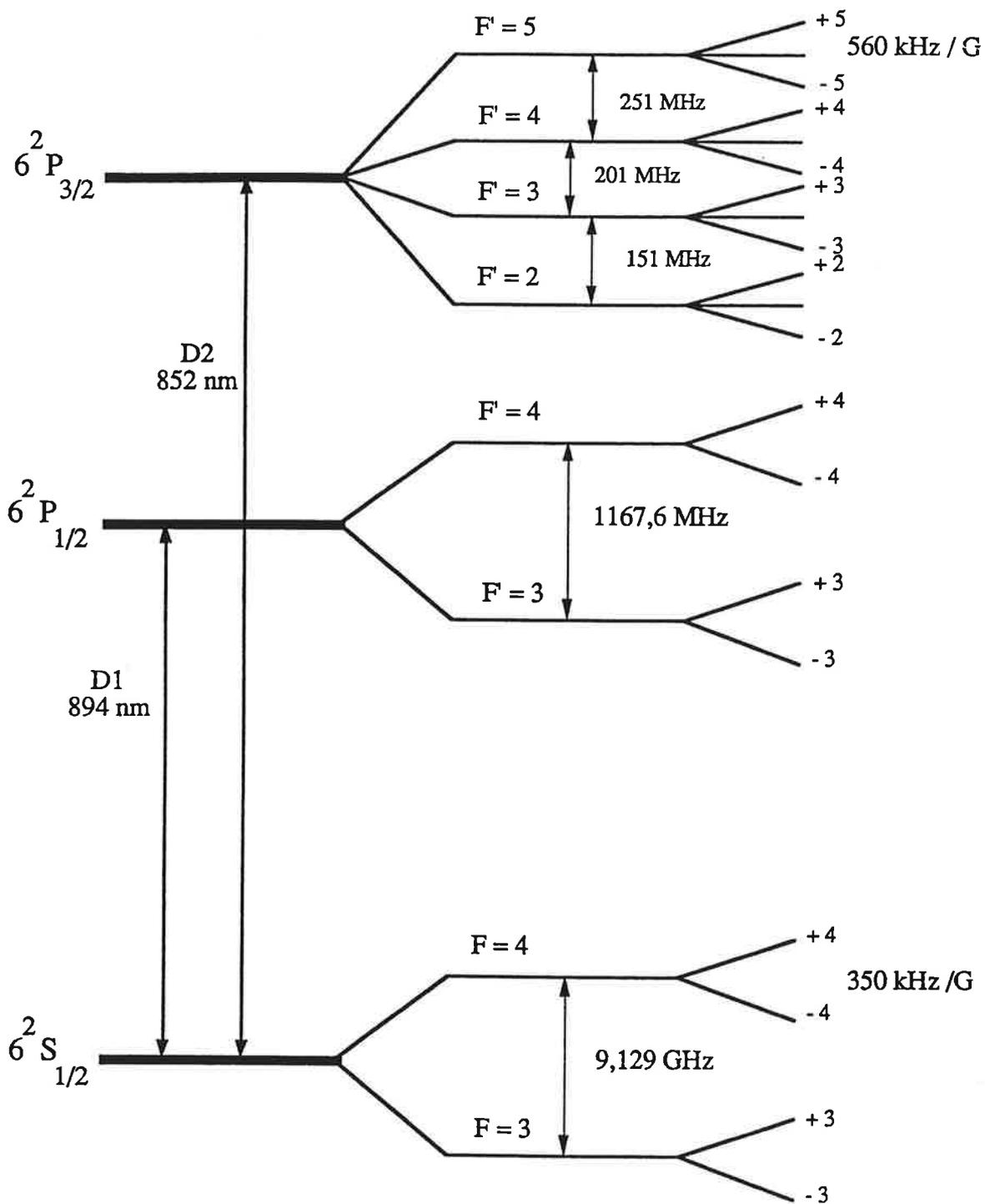


Figure I-15: Transitions atomiques du césium mises en jeu dans les processus de refroidissement.

## I - 3 - Principe de l'expérience

Dans l'expérience "dite d'entonnoir" que nous avons réalisée, on comprime un jet ralenti longitudinalement selon ses dimensions transverses à l'aide d'un piège magnéto-optique à deux dimensions [YU 94], [DJE 95]. A priori rien ne nous empêche de comprimer ce jet sans le ralentir préalablement, excepté que le temps de transit des atomes dans le piège doit être de l'ordre de quelques centaines de microsecondes pour atteindre le régime stationnaire et avoir une compression efficace. Ceci nécessiterait d'avoir un piège de plusieurs dizaines de centimètres de long.

Pour le processus de ralentissement du jet atomique, on a choisi la méthode qui consiste à balayer la fréquence du laser entre deux bornes de fréquence données correspondant à deux classes de vitesse du jet atomique [GUE 92]. Ainsi à la fin du balayage laser, toutes les classes de vitesse intermédiaires sont accumulées autour de la classe de vitesse inférieure finale. Le jet atomique est éclairé à contresens par deux lasers superposés: un laser de ralentissement et un laser dit de repompage. Ces deux lasers sont balayés simultanément par des rampes d'amplitude et de durée identiques pour compenser le désaccord Doppler. Ces rampes correspondent à un balayage de fréquence de 400 MHz en 9 ms, comme on peut le voir sur le schéma de la séquence temporelle de l'expérience. Le laser de ralentissement utilise la transition fermée  $6S_{1/2} F=4$  vers  $6P_{3/2} F'=5$  de l'atome de césium (voir figure I-15). Le laser de repompage compense les fuites par pompage optique du niveau hyperfin fondamental  $6S_{1/2} F=4$  vers l'autre niveau hyperfin du fondamental  $6S_{1/2} F=3$ , et est en résonance avec la transition  $6S_{1/2} F=3$  vers  $6P_{1/2} F=4$ .

Après avoir été ralentis, les atomes du jet monocinétique arrivent dans la zone du piège magnéto-optique. Dans cette zone ils sont éclairés par quatre faisceaux lasers, polarisés circulairement  $\sigma^+ \sigma^-$ , selon les directions transverses du jet en présence d'un gradient de champ magnétique. Selon que le champ magnétique est positif ou négatif, la polarisation du laser se déplaçant en sens contraire du mouvement de l'atome est  $\sigma^-$  ou  $\sigma^+$ . Le laser de piégeage est toujours gardé à une fréquence fixe qui est décalée vers le rouge d'une quantité de  $\delta=\Gamma$  à  $3\Gamma$  par rapport à la transition atomique  $F=4$  vers  $F'=5$ . Durant ce processus de compression, pour minimiser tout effet d'interaction parasite, le laser de refroidissement est décalé vers le bleu de  $\sim 80 \Gamma$  à la fin de la rampe de balayage. Le processus de compression nécessitant lui aussi un laser repompeur, on utilise pour cela le même faisceau repompeur du ralentissement longitudinal du jet. Ainsi à la fin de la rampe de balayage, le laser de repompage est gardé en résonance avec la classe de vitesse correspondant à la vitesse du jet monocinétique ralenti, de

manière à servir aussi de laser repompeur sur la transition  $F=3$  vers  $F'=4$  durant la compression. L'observation et l'acquisition du signal de fluorescence induite par les lasers dans le piège est déclenchée immédiatement après la rampe de balayage servant au ralentissement. On utilise pour cela une caméra CCD dont le temps d'intégration pour une image est de  $\sim 10$  ms (voir figure I-16).

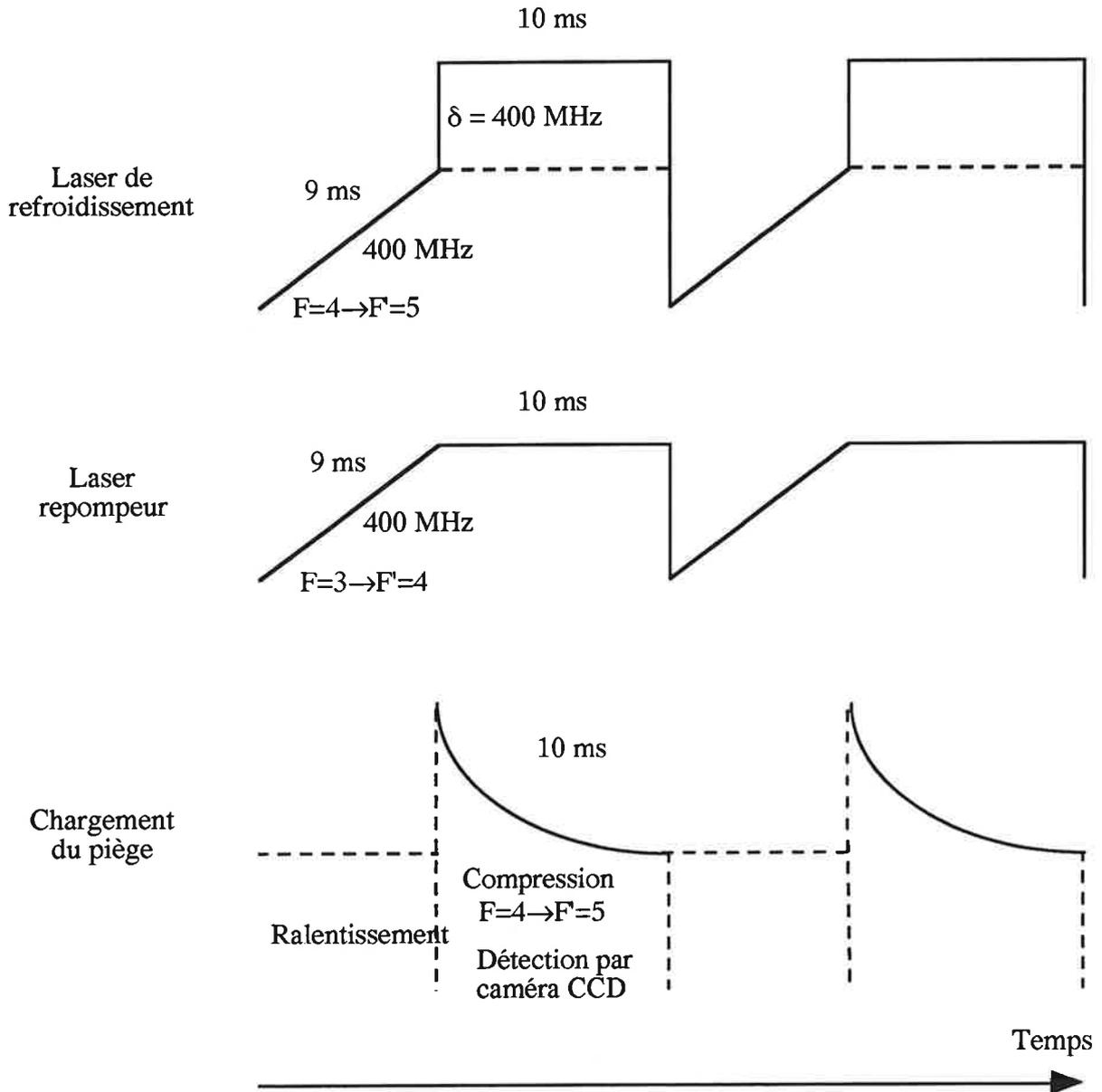


Figure I-16: Séquence temporelle de l'expérience de compression d'un jet atomique ralenti à l'aide d'un piège magnéto-optique.

## I - 4 - Montage expérimental

Pour l'expérience de piège magnéto-optique à deux dimensions où on veut comprimer un jet atomique selon ses directions transverses, on utilise un montage expérimental qui peut être divisé en gros 4 parties distinctes:

- un jet atomique,
- un gradient de champ magnétique,
- un système de lasers et d'optique,
- une détection.

Dans la suite, je vais décrire brièvement ces points, en insistant surtout sur le développement laser qui s'est fait au laboratoire durant ma thèse et qui a largement facilité les expériences de refroidissement d'atomes utilisant des diodes lasers.

### I - 4 - 1 - Le jet atomique

Le jet atomique de césium utilisé dans cette expérience prend son origine d'un four de césium et se propage à l'intérieur d'une enceinte à vide partagée en trois parties séparées par des électro-vannes et pompées individuellement. La première zone contient le four de césium et est pompée par une pompe à diffusion d'huile à un vide de  $10^{-7}$  mbar. A 8 cm de la sortie du four se trouve un diaphragme en graphite de 3 mm de diamètre qui sert à diaphragmer le jet. La deuxième zone est longue d'à peu près 80 cm et constitue la zone de ralentissement du jet, pompée également à l'aide d'une pompe à diffusion à  $10^{-7}$  mbar. Dans ces deux parties plusieurs plaques de cuivre refroidies à l'azote liquide empêchent la formation d'une cellule de vapeur de césium et garantissent un jet atomique bien défini. La troisième zone contient le piège 2D et est pompée par une pompe turbo-moléculaire à un vide de  $10^{-8}$  mbar.

#### 1 - a - Le four atomique

Le four atomique est constitué d'une pièce creuse en inox contenant un gramme de césium. Cette enceinte est chauffée à l'aide de deux câbles thermocoaxiaux traversés par un courant électrique et chauffant indépendamment le corps de l'enceinte et la buse d'où s'échappe le jet. Celle-ci est chauffée à une température légèrement plus élevée pour empêcher que celle-ci

ne se bouche. Pour éviter une trop grande divergence du jet et minimiser la consommation de césium, l'embouchure du four est constituée d'un dispositif de 31 canaux de 2.6 mm de longueur et de 200  $\mu\text{m}$  de diamètre disposés sur une surface de  $3.3 \times 1.2 \text{ mm}^2$ .

### 1 - b - Caractéristiques du jet atomique

La divergence du jet mesurée et calculée par une méthode de Ramsey [RAM 69] est comprise entre 71 et 77 mrad. La densité du jet thermique est mesurée à l'aide de mesures d'absorption laser et à l'aide d'un fil chaud de tungstène. Ces deux mesures donnent des résultats comparables à ceux d'un calcul type Ramsey [RAM 69] et donnent comme densité à l'entrée du piège, qui se trouve à une distance de 1200 mm du four, pour un four chauffé à  $200^\circ\text{C}$ ,  $n \approx 2.5 \cdot 10^7 \text{ atomes/cm}^3$ . Cette densité dépend de la distance du four en  $d^2$  et de la température de celui-ci selon la courbe de la figure I-17.

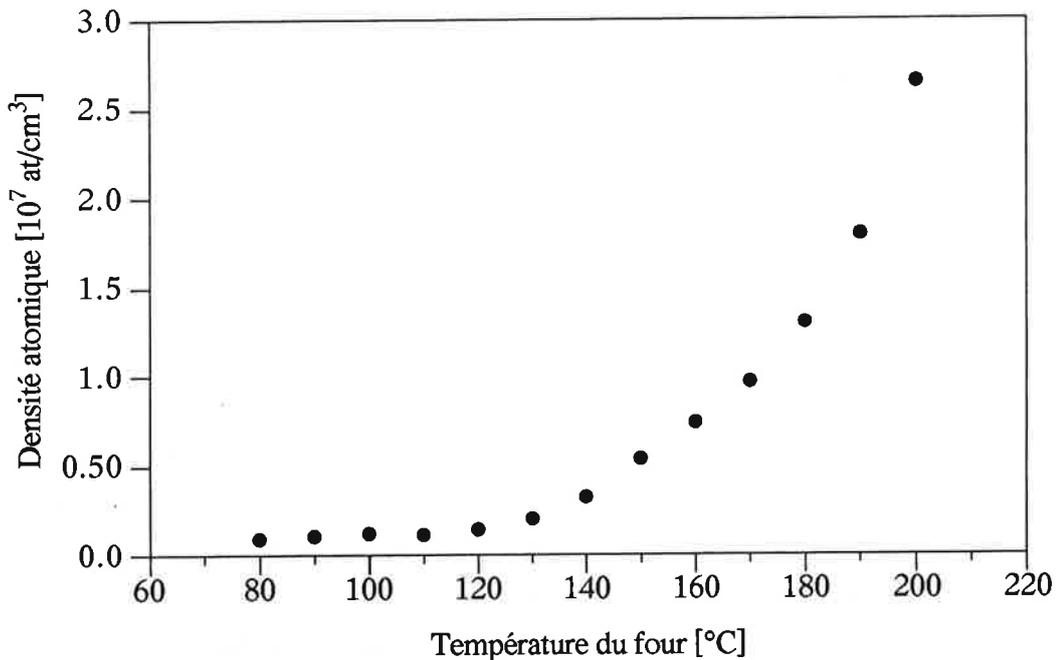
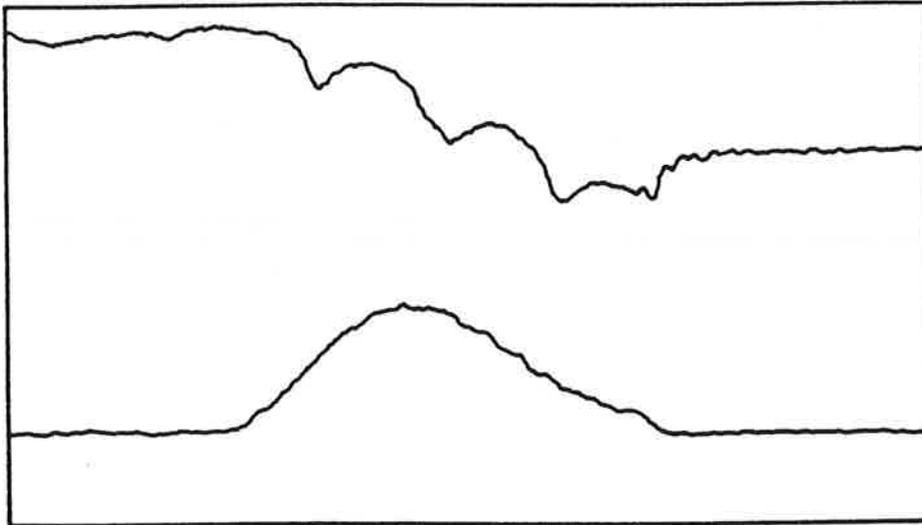


Figure I-17: Densité du jet atomique en fonction de la température du four à une distance de 120 cm de celui-ci.

Le jet thermique présente une distribution en vitesse qui est maxwellienne, comme on se trouve en présence d'un jet effusif. En effet, pour les températures du four utilisées, le libre parcours moyen d'un atome reste plus grand que le diamètre d'un canal. La distribution en vitesse dans le jet peut être mesurée à l'aide de mesures de fluorescence d'un profil Doppler

(voir figure I-18) et donne une vitesse la plus probable de 305 m/s. Un calcul se basant sur la distribution Maxwell-Boltzman dans le jet [RAM 69] donne 295 m/s pour la même vitesse avec une dépendance en  $T^{1/2}$ .



*Figure I-18: Distribution de vitesse du jet thermique déterminée à l'aide de la fluorescence atomique recueillie en fonction de la fréquence laser. La fréquence laser est déterminée à l'aide d'un spectre d'absorption saturée et la vitesse atomique calculée à l'aide de l'effet Doppler.*

#### I - 4 - 2 - Les champs magnétiques

Dans un piège magnéto-optique il est nécessaire de disposer d'un gradient de champ magnétique et d'un dispositif permettant de compenser le champ magnétique terrestre. Celui-ci est compensé à l'aide de trois paires de bobines en position Helmholtz parcourues par un courant.

Le dispositif créant le gradient de champ magnétique pour le piège magnéto-optique 2D est montré sur la figure I-19. Il est constitué de huit barres en cuivre, qui sont reliées entre elles à l'entrée et à la sortie du piège, à travers lesquelles circule un courant électrique dont le sens est indiqué par des flèches. Ces barres ont une section de  $3 \times 3 \text{ mm}^2$  et le dispositif a une longueur de 60 mm. L'entrée du dispositif possède un diamètre de 60 mm, et celui-ci se resserre pour atteindre un diamètre de 20 mm à la sortie. De ce fait, le champ quadripolaire créé par ces barres augmente le long de l'axe z du dispositif, coïncidant avec l'axe du jet atomique. Si l'axe

z est l'axe correspondant au jet atomique, on aura donc dans un plan perpendiculaire au jet xOy pour le champ magnétique quadripolaire:  $\vec{B} = b \begin{pmatrix} x \\ -y \end{pmatrix} = b(x \vec{e}_x - y \vec{e}_y)$  .

Le module de B dépend linéairement de la distance r du centre du piège où B=0, c'est donc un gradient de champ magnétique. Suivant l'axe du jet z, ce gradient de champ magnétique présente un gradient de champ selon z:  $B = dB/dz \cdot z$ . La variation de ce gradient de champ selon z est indiquée sur la figure I-20. La sortie du piège est écrantée à l'aide d'un diaphragme en mu-métal, réduisant le champ magnétique à zéro à l'extérieur du piège. A cause du courant traversant le cercle formant l'entrée du piège, un champ magnétique longitudinal parasite est créé. Pour un courant typique de 50 A, celui-ci vaut 3 Gauss à l'entrée et 0.3 Gauss à la sortie du piège.

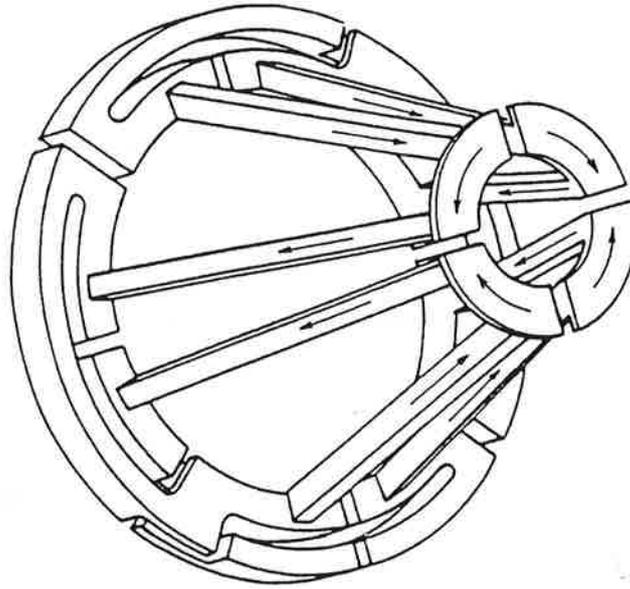


Figure I-19: Dispositif permettant de créer le gradient de champ magnétique nécessaire au piège magnéto-optique 2D.

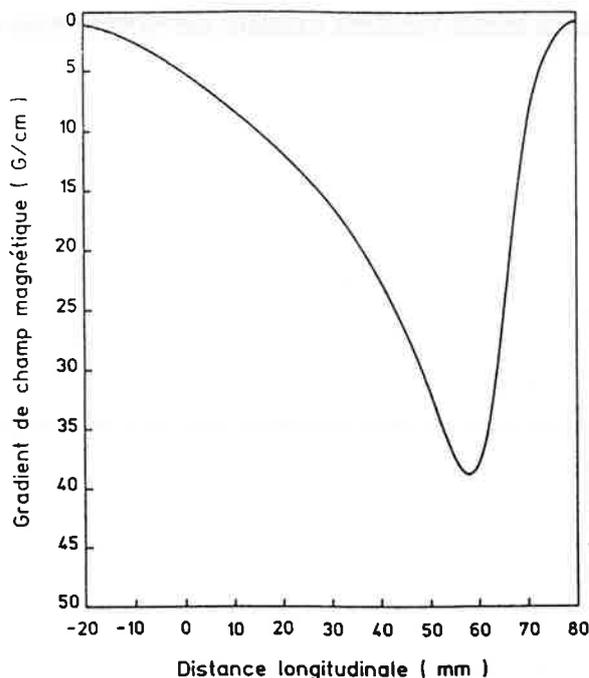


Figure I-20: Variation du gradient de champ magnétique suivant la direction de propagation  $z$  du jet atomique calculée à l'aide d'un calcul numérique. La zone de piégeage est comprise entre  $z=20$  et  $z=60$ .

Durant nos expériences, il nous arrive d'appliquer dans la zone de ralentissement et de refroidissement du jet un champ magnétique suivant l'axe du jet (voir paragraphe I-5-2-b- $\beta$ ). Pour cela l'enceinte à vide correspondante est entourée d'un solénoïde permettant d'appliquer des champs jusqu'à 1 Gauss. Le tout est écranté par du mu-métal pour réduire la majeure partie du champ magnétique terrestre dans la zone de ralentissement.

### I - 4 - 3 - Montage optique

La transition atomique du césium utilisée pour nos expériences de refroidissement met en jeu la raie  $D_2$  du césium à la longueur d'onde de 852.1 nm, dont les niveaux d'énergie sont montrés sur la figure I-15. Comme l'intensité de saturation du césium est faible ( $1.1\text{mW/cm}^2$ ) il est commode d'utiliser des diodes lasers comme sources optiques. Pour pouvoir utiliser des diodes commerciales dans nos expériences, il est préférable de les utiliser en cavité étendue couplée à un réseau de diffraction, montage dont j'expliquerai dans la suite le principe, l'utilité et les caractéristiques. Pour mieux comprendre la nécessité d'un tel système, je donnerai tout d'abord quelques explications sur le fonctionnement libre d'une diode laser. A la

fin de ce paragraphe, je décrirai finalement le montage optique, servant au ralentissement et à la compression du jet atomique, dans lequel viennent s'insérer ces systèmes de diodes lasers.

### 3 - a - Systèmes de diodes lasers à cavité étendue

En physique atomique, les diodes lasers sont devenues des outils de plus en plus répandus. Ceci est dû en majeure partie à leur étroit spectre d'émission monomode, une large plage de fréquence balayable et une possibilité de modulation à haute fréquence directe de l'émission laser. Leur puissance de plus en plus élevée et leur prix très avantageux en ont fait des concurrents sérieux pour les lasers à colorants ou les lasers solides de type Saphir:Titane. Malheureusement, les caractéristiques de la lumière émise d'une diode commerciale est loin d'être idéale, limitant ainsi son utilisation. En particulier, l'émission a une largeur spectrale typique de quelques dizaines de Megahertz et ne peut qu'être balayée que sur certaines régions limitées par des sauts de mode. Les diodes lasers ne sont donc en général pas satisfaisantes si leur application requière une grande pureté spectrale, une disponibilité d'une longueur d'onde bien déterminée ou une stabilité de la fréquence émise. Ceci sont exactement les propriétés désirées pour les expériences de métrologie, de physique atomique et de spectroscopie [CAM 85].

Toutes ces caractéristiques peuvent être largement améliorées en réinjectant une partie de sa lumière émise dans la diode laser pour contrôler la fréquence laser. La solution standard pour améliorer le spectre laser est de coupler une diode libre à une cavité externe passive [LAB 92], [SALA 79]. Plusieurs configurations ont été proposées: diode couplée à une cavité Fabry-Perot à finesse élevée par un retour optique [LAU 89], ou alors un laser à cavité étendue à l'aide d'un réseau de diffraction.

Dans nos expériences préliminaires de piège magnéto-optique à deux dimensions, on a utilisé ces deux systèmes [GUE 92], [DJE 95]. Dans la suite, j'ai été amené à réaliser de nouveaux dispositifs lasers que je vais décrire dans la partie suivante. Ces développements ont été motivés par le besoin de système lasers faciles à manier et d'une excellente stabilité. Pour accomplir cela, on a utilisé des systèmes de diodes lasers couplées à des réseaux de diffraction externes à la cavité. Ce sont les caractéristiques de ces systèmes que je décrirai dans la partie suivante.

*a) Généralités sur les diodes lasers libres*

La discussion qui suivra sera plus ou moins restreinte aux diodes lasers du type  $\text{Ga}_x\text{Al}_{1-x}\text{As}$ , comme toutes nos expériences sont réalisées avec ce matériau technologiquement très développé. Les caractéristiques d'opération d'autres diodes lasers sont néanmoins similaires à celles des diodes  $\text{GaAlAs}$  et la plupart des résultats réunis ici peuvent être appliqués directement au cas de diodes fabriquées avec d'autres matériaux. Dans la suite, je décrirai, sans trop aller dans les détails, le principe et la structure d'une diode pour terminer avec quelques considérations théoriques consacrées à l'émission laser d'une diode libre pour pouvoir comprendre les améliorations apportées par le système d'un laser à cavité étendue.

1 - Principe des diodes lasers

La différence principale entre les lasers utilisant des atomes ou des molécules comme milieu actif et les diodes lasers réside dans le fait que les niveaux d'énergie dans un semi-conducteur doivent être traités en tant que distributions continues et non en tant qu'états discrets. Ainsi la transition laser ne se fait pas entre niveaux d'énergie discrets mais entre états présentant une certaine distribution en énergie [YAR 67].

Dans un semi-conducteur, la bande de conductance est séparée de la bande de valence par un gap d'énergie  $E_g$ . Chaque bande est composée d'un grand nombre d'états très resserrés formant un quasi-continuum. Pour un semi-conducteur non-dégénéré, le niveau de Fermi se trouve dans le gap d'énergie, tel qu'à  $T = 0 \text{ K}$ , la bande de valence est complètement remplie et celle de conductance complètement vide [ASH 76]. Il se comporte donc comme un isolateur (voir figure I-21a).

L'inversion de population entre deux états d'énergie, nécessaire au fonctionnement laser, se fait entre les bandes de conductance et de valence. Des électrons, qui ont été amenés de la bande de valence dans celle de conductance par un procédé de pompage quelconque, retombent maintenant dans les niveaux les plus bas de celle-ci en un temps très court d'environ  $10^{-13}\text{s}$ . La même chose se passe pour la bande de valence; on a donc une inversion de population. Les électrons de la bande de conductance se recombinent avec les trous créés dans la bande de valence sous l'émission d'un photon (rayonnement de recombinaison) (voir figure I-21b).

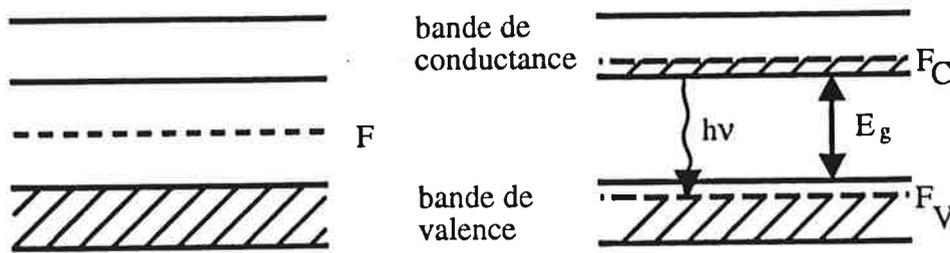


Figure I-21: Principe à la base de l'émission laser par un semi-conducteur.

En principe, on peut arriver à une inversion de population de trois manières distinctes: par pompage optique; par bombardement avec des électrons énergétiques et par l'injection de porteurs de charges minoritaires dans une transition p-n (diode laser). C'est ce dernier procédé qui est le plus couramment utilisé pour obtenir de l'émission laser.

## 2 - Structure d'une diode laser

Si on met un semi-conducteur fortement dopé n en contact avec un semi-conducteur p, on obtient une diode p-n. En appliquant une tension  $V$  d'à peu près du même ordre de grandeur que le gap d'énergie, c.à.d.  $V=E_g/e$ , dans le sens de transmission de la diode, on produit un flux d'électrons de la région n, respectivement un flux de trous de la région p, vers la jonction p-n. Il existe maintenant une étroite zone d'épaisseur  $d$ , contenant aussi bien des électrons que des trous (voir figure I-22). On a ainsi produit une zone avec une inversion de population; des ondes électromagnétiques d'une certaine plage de fréquence seront amplifiées en parcourant cette zone active.

L'épaisseur de cette zone active peut être évaluée à partir de la distance de diffusion des électrons injectés dans la région p jusqu'à une recombinaison électron-trou; on obtient ainsi  $d=1\mu\text{m}$ . La structure d'une diode laser de ce type le plus simple est montrée sur la figure I-23.

En confinant la zone active dans ses dimensions latérales ( $<10\mu\text{m}$ ), on obtient finalement une sorte de guide d'onde en tant que zone active [SIE 86]. Ceci résulte dans un abaissement du seuil du courant d'injection au-delà duquel débute l'émission laser, et dans une réduction de l'influence néfaste de l'émission spontanée sur l'émission laser et facilite donc le fonctionnement monomode de ce type de diode laser. Ces diodes lasers sont généralement du type des diodes à double hétérostructure qui peuvent être guidées par le gain ou par l'index de

réfraction de la zone active (gain-guided et index-guided heterostructure diode lasers). En réduisant d'avantage l'épaisseur de la zone active à moins de 30 nanomètres, on obtient une classe spéciale de diodes lasers; celle des diodes à puits quantiques (quantum-well lasers). Cette épaisseur est de l'ordre de la longueur d'onde de de Broglie  $\lambda=h/p$  des électrons. Les porteurs de charges injectés subissent de ce fait des effets quantiques, tout comme une particule dans un puits de potentiel. Les états d'énergie des bandes de valence et de conductance sont quantifiés. Les avantages de ces lasers sont multiples: réduction du courant de seuil, possibilité d'obtenir de hautes puissances en fonctionnement continu, haute fiabilité et long temps de vie ( $>10^5$ h) [KNE 89].

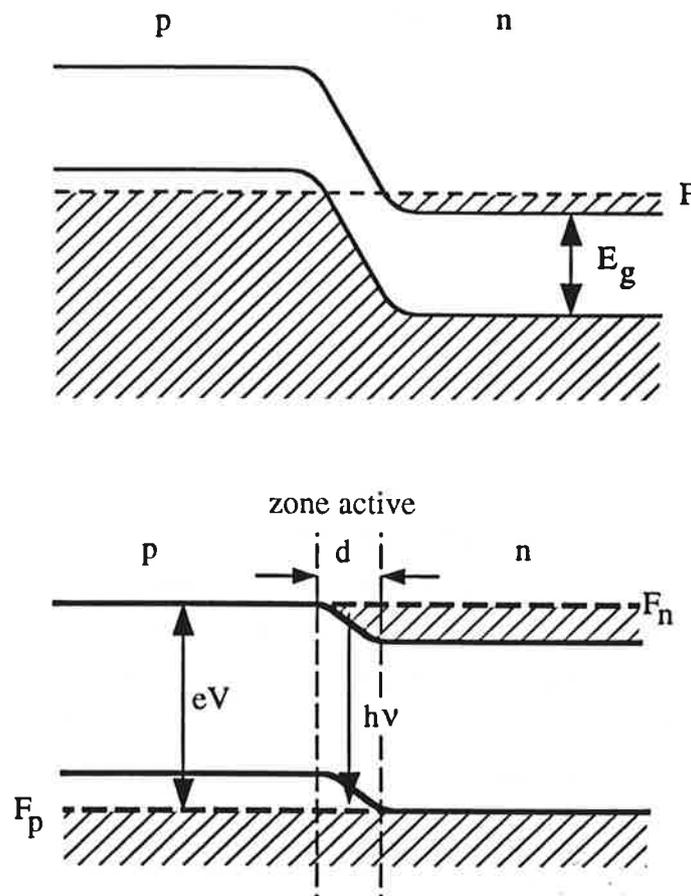


Figure I-22: Inversion de population dans un semi-conducteur par une jonction p-n.

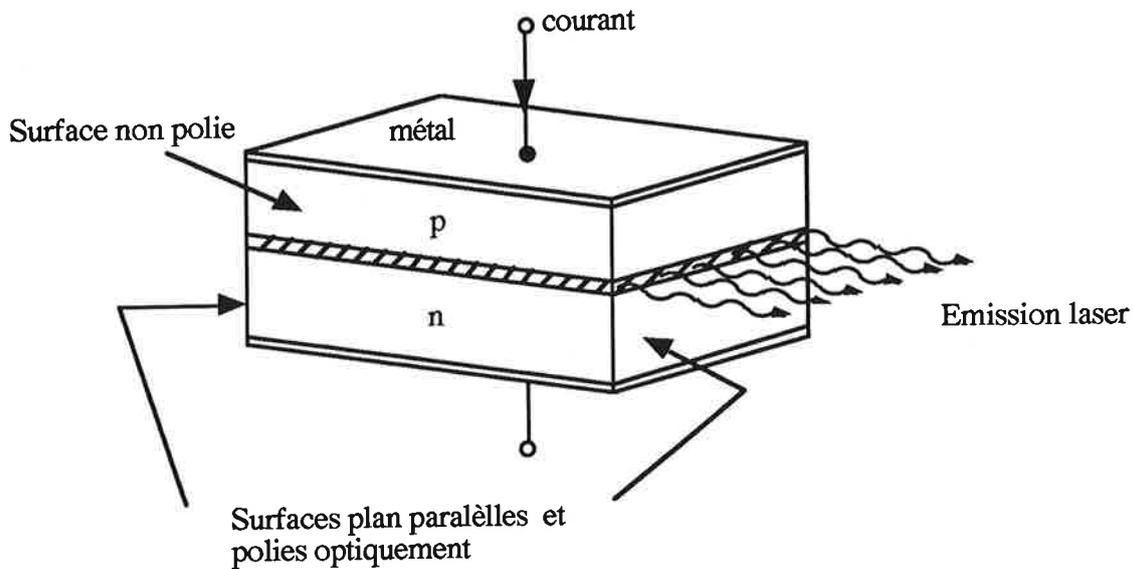


Figure I-23: Structure d'une simple diode laser à jonction p-n.

### 3 - Principe de fonctionnement

En résumé, je présente ici quelques caractéristiques typiques pour les diodes à gain par l'index, monomodes et en fonctionnement libre [LAB 92]. Le profil du gain de ces diodes lasers est typiquement d'une dizaine de nanomètres. La longueur d'onde émise est déterminée par la compétition entre les différents modes longitudinaux de la cavité laser, qui sont typiquement séparés de 100 à 200 GHz. Le laser fonctionnera sur le mode qui présentera le gain maximum. Des variations de température causent un changement de la longueur de la cavité (et donc une variation des fréquences de résonance des modes longitudinaux) et en même temps une dérive en fréquence du profil de gain. En conséquence, la longueur d'onde émise peut être changée à l'aide de la température de la diode. Cependant, durant ce processus de changement de fréquence, le gain des modes varie de telle façon, qu'à un certain point, l'émission laser saute d'un mode à un autre, ce qui entraîne un certain nombre de domaines de fréquences inaccessibles. La largeur de ces domaines accessibles en fréquence est d'une fraction du domaine spectral libre de la cavité laser, normalement de quelques dizaines de GHz, tandis que la séparation entre deux domaines voisins est en général de l'ordre du libre domaine spectral. Il existe une seconde méthode pour varier la longueur d'onde d'émission, qui est de changer le courant d'injection de la diode. Ceci provoque un changement de température correspondant et aussi un changement de la densité de charges et donc de l'indice de réfraction du semi-conducteur. La variation du courant d'injection souffre elle aussi des sauts de modes. Tandis qu'en variant la température on peut couvrir un domaine de fréquence de l'ordre de plusieurs dizaines de nm à un taux de l'ordre de 0,3 nm/K, la variation du courant d'injection

ne couvre qu'un domaine de quelques dizaines de GHz à un taux de 4 GHz/mA. Il faut cependant remarquer que le courant d'injection peut être varié beaucoup plus rapidement que la température.

#### 4 - Caractéristiques de l'émission laser

Après avoir rapidement donné un aperçu sur les principales structures des diodes lasers commerciales, je vais essayer de décrire leurs implications sur les propriétés de la lumière laser émise, et ceci surtout sur la largeur spectrale.

De nombreuses mesures expérimentales ont montrées que la largeur spectrale des diodes lasers sont de l'ordre de quelques dizaines de Megahertz, ce qui est relativement large pour une cavité laser fonctionnant en continu. Cette importante largeur spectrale est aujourd'hui bien expliquée à l'aide de théories laser standards.

La majeure source de bruit de fréquence dans les diodes lasers est due à l'émission spontanée dans le mode laser. Cette source de bruit, qui est souvent appelé bruit quantique, est inévitable dans un laser en fonctionnement libre. Une petite partie des photons émis spontanément est couplée dans le mode spatial lasant et est additionnée au hasard au champ oscillant. Chaque événement d'émission spontanée donne une petite fluctuation de phase et d'amplitude de l'onde optique cohérente émise.

On peut maintenant prendre avantage du fait que le spectre du bruit dû aux fluctuations d'amplitude diminue en amplitude (et gagne en largeur) quand on augmente le courant d'injection en fonctionnant au-dessus du seuil d'émission laser. Cet effet est dû à la saturation du gain dans la diode laser. En conséquence, la largeur spectrale d'une diode laser, excepté celles en régime au voisinage du seuil, est due à des fluctuations de phase.

Les fluctuations spontanées de phase ne sont pas modifiées par la dynamique du laser et peuvent être décrites en tant que bruit blanc en fréquence qui est simplement ajouté à l'onde optique cohérente [LAM 65], [YAR 67]. Un tel bruit conduit à un spectre Lorentzien dont la largeur spectrale est donnée par la formule de Schawlow Townes [SCH 58], [TOWN 61]:

$$\Delta\nu_m = \frac{\pi h \nu_m (\Delta\nu_c)^2}{P_m} n_{sp} \quad (\text{I - 58})$$

où: h: constante de Planck,

$\Delta\nu_c$ : largeur spectrale de la cavité Fabry-Perot (= diode laser),

$P_m$ : puissance dans le mode m,

$n_{sp}$ : nombre de photons émis spontanément dans ce mode.

Dans des diodes lasers fonctionnant au delà du seuil,  $n_{sp}$  se rapproche de l'unité.  $\Delta\nu_c$  est relié à la durée de vie des photons  $\tau_c$  dans la cavité laser, et on obtient ainsi:

$$\Delta\nu_m \equiv \frac{1}{2\pi \tau_c} = \frac{1}{2\pi} \frac{c}{\mu l} (\alpha_m 1 - \log \sqrt{R_1 R_2}) \quad (\text{I - 59})$$

Ce résultat montre clairement que la largeur spectrale associée au bruit de l'émission spontanée est inversement proportionnelle à la longueur optique de la cavité laser. Elle dépend plus précisément de la durée de vie des photons, qui est le temps de décomposition pour une onde cohérente due aux pertes dans la cavité. Malheureusement, en mesurant la largeur spectrale d'une diode libre, on s'aperçoit que celle-ci est pratiquement 50 fois plus importante que celle calculée à l'aide de la formule ci-dessus [FLE 81]. Il existe donc d'autres facteurs d'élargissement, et ceux-ci proviennent d'un couplage phase-amplitude. Cet élargissement est expliqué par les changements retardés de la phase causés par des changements instantanés de l'intensité du champ créés par l'émission spontanée. Cette corrélation phase-amplitude est caractérisée par le coefficient  $\alpha$ :

$$\alpha = - \frac{\frac{d\chi'}{dn}}{\frac{d\chi''}{dn}} \quad (\text{I - 60})$$

où  $\chi'$  et  $\chi''$  sont les parties réelles et imaginaires de l'indice de réfraction complexe, et n est la densité de charges. Une variation de l'amplitude du champ laser causée par l'émission spontanée mène à une variation de la densité de charges n, qui à son tour change la partie imaginaire, et donc aussi la réelle, de l'indice de réfraction et induit un changement de la phase du champ laser. Le spectre est maintenant composé d'un pic Lorentzien qui présente une largeur

modifiée:  $\Delta\nu = (1+\alpha^2) \Delta\nu_m$ . Des résultats expérimentaux donnent pour les diodes GaAlAs une valeur de  $\alpha$  égale à 5,4. En regardant de plus près la formule (I-59) pour la largeur spectrale d'une diode, on voit tout de suite que pour affiner celle-ci, il faut allonger la durée de vie des photons à l'intérieur de la cavité. Malheureusement, on n'arrive pas à allonger  $\tau_c$  significativement en augmentant la longueur de la cavité,  $\tau_c$  tend vers une valeur finie pour l tendant vers l'infini; ceci est dû aux pertes dans la cavité.

Comme on le verra plus tard, une des solutions est de coupler la diode à une cavité externe passive en réinjectant une petite partie de la lumière émise dans la diode.

### *β) Diodes lasers à cavité étendue*

#### 1 - Principe de fonctionnement

Beaucoup de montages étudiés pour améliorer la cohérence spectrale des diodes lasers utilisent des cavités externes [MAC 92], [RIC 95]. On pourrait en quelque sorte définir un laser à cavité étendue comme étant une diode laser traitée anti-reflet, couplée à une cavité externe passive. Sans la présence de cette cavité externe, il est clair qu'un tel système ne va pas pouvoir émettre de lumière laser. En réalité, ces traitements anti-reflet ne sont jamais parfaits, et la diode va pouvoir laser pour un courant important. Le fonctionnement en cavité étendue peut être réalisé si le seuil du laser est beaucoup plus bas que celui de la diode traitée anti-reflet en fonctionnement libre.

La caractéristique la plus intéressante du montage en cavité étendue est d'offrir à l'utilisateur de nouveaux chemins afin de contrôler l'émission laser. En plus de la température et du courant, il est maintenant possible de contrôler la longueur d'onde du retour optique intra-cavité et sa largeur spectrale en utilisant un miroir externe spectralement sélectif. Ceci permet de sélectionner la fréquence de sortie quelle que soit la position du pic de la courbe du gain. Il faut aussi noter que le nombre de modes axiaux par unité de fréquence de la cavité laser augmente avec la longueur de la cavité. On a donc besoin d'un élément spectralement sélectif si on veut obtenir un fonctionnement monomode, car, dans le cas contraire, la concurrence du mode dominant et des modes voisins sera beaucoup plus rude que dans une diode libre et on assistera pratiquement à coup sûr à un fonctionnement multimode du système.

Une méthode simple et facile pour caractériser les différents systèmes possibles pour un laser à cavité étendue consiste à les classer selon leur élément spectralement sélectif [LAB 92]. On retrouve ainsi: des cavités étendues monolithiques; des cavités étendues utilisant un filtre polariseur, qui peut être un élément électro-optique; des cavités étendues utilisant des filtres spectralement interférant, qui sont ou des interféromètres du type Michelson ou des étalons Fabry-Perot. On a aussi des cavités où un réseau ou une autre structure périodique est intégrée directement dans la diode elle-même. La classe la plus importante des cavités étendues utilise un réseau de diffraction comme élément sélectif pour le retour réinjecté dans la diode.

## 2 - Cavités étendues à réseau de diffraction

Dans la plupart de ces systèmes, l'émission de la diode est collimatée par un élément optique à grande ouverture tel qu'un objectif de microscope, et est dirigée vers le réseau de diffraction qui est monté en position de Littrow. Dans cette configuration on renvoie le premier ordre de diffraction dans la direction du faisceau incident. Les différentes longueurs d'onde émises par la diode et dispersées sur le premier ordre du réseau sont réparties perpendiculairement aux raies du réseau. Quand le réseau est correctement orienté, une petite partie de la lumière diffractée, correspondant à une étroite bande de fréquence, est focalisée par l'objectif et réinjectée dans la diode (voir figure I-24). La longueur d'onde  $\lambda$  qui correspond à la condition exacte d'autocollimation parfaite est reliée à l'angle du réseau de diffraction  $\theta$  par la relation classique:

$$\lambda = 2 p \sin\theta,$$

où  $p$  représente la période du réseau. Pour minimiser les pertes en puissance il est recommandé de choisir  $p$  entre  $\lambda/2$  et  $\lambda$  de telle façon à n'obtenir que deux ordres de diffraction sur le réseau pour la longueur d'onde  $\lambda$  donnée de la diode laser. En tournant le réseau autour d'un axe parallèle à ses traits on arrive à ajuster la longueur d'onde réfléchie dans la diode, et donc la longueur d'onde de la diode laser elle-même.

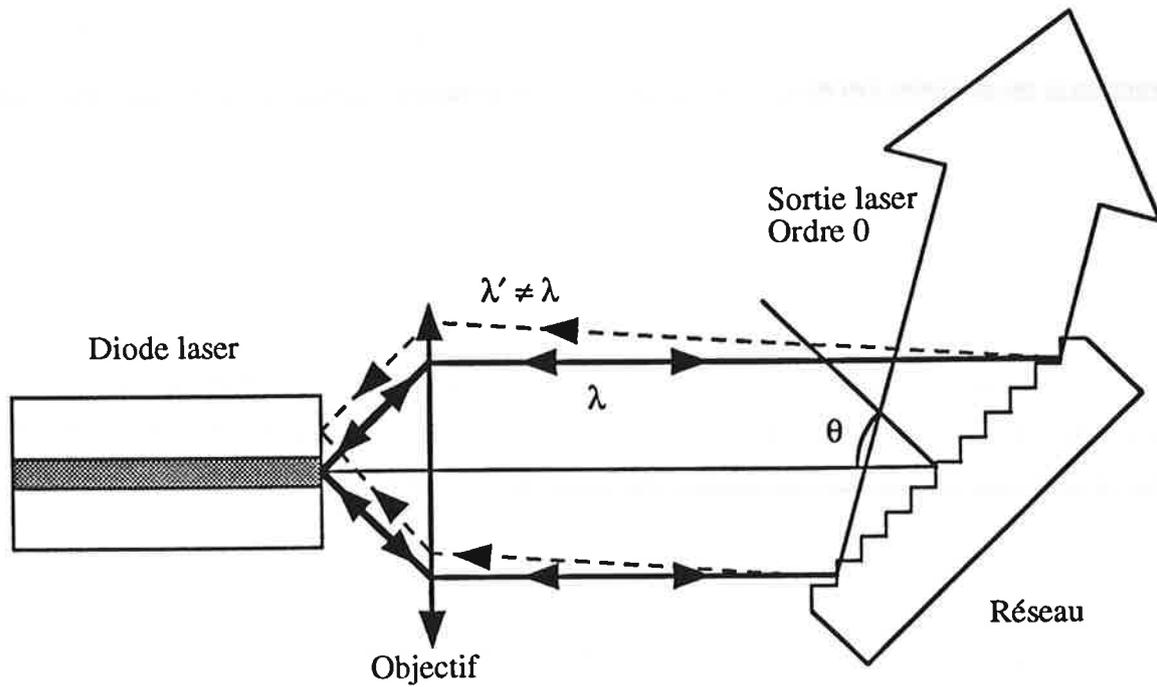


Figure I-24: Schéma du principe de fonctionnement d'un laser à cavité étendue à réseau de diffraction. L'ordre 1 du réseau est réinjecté dans la diode, tandis que l'ordre 0 constitue l'émission laser de la cavité étendue.

### 3 - Caractéristiques de l'émission laser

#### 3 - a - Accord de la fréquence

Dans un laser à cavité étendue, le réseau de diffraction sélectionne une longueur d'onde  $\lambda_r$  ayant les moindres pertes. Cependant, la fréquence émise par le laser est donnée par un des modes résonnants  $\lambda_c$  de la cavité étendue qui sont régulièrement espacés et entièrement déterminés par la longueur de cavité. Le mode laser sera donc en principe la longueur d'onde de résonance  $\lambda_c$  la plus proche de la longueur d'onde réinjectée  $\lambda_r$ .

En tournant le réseau de diffraction, on peut obtenir la longueur d'onde du mode de la cavité étendue le plus proche de la longueur d'onde désirée. En vue d'obtenir exactement la longueur d'onde désirée, la fréquence du mode doit être déplacée en variant très finement la longueur de la cavité, par exemple avec un élément piézo-électrique. On peut bien sûr varier légèrement la fréquence du mode de la cavité en changeant le courant ou la température de la

diode, comme ceci change la longueur optique de la cavité par des variations de l'indice de réfraction  $\mu$  de la diode. On a:

$$\frac{\partial \lambda_m}{\lambda} = \frac{\partial L}{L} = \frac{\partial(\mu l)}{L} = \frac{\mu l}{L} \frac{\partial \mu}{\mu} \quad (\text{I - 61})$$

On remarque que la sensibilité de la longueur d'onde en fonction des variations de l'index de réfraction de la diode est considérablement réduite comparée au cas d'une diode libre, et ceci d'un facteur égal au rapport des longueurs des deux cavités.

La plage de fréquence atteignable avec une diode à cavité étendue dépend de plusieurs facteurs. D'une part il y a bien sûr la largeur spectrale de la courbe de gain de la diode laser elle-même qui limite le domaine de fréquence du laser à cavité étendue. Ceci donne des domaines spectraux de quelques dizaines de nanomètres de larges, dépendant de la structure de la diode. Il est clair que le couplage avec le réseau doit être relativement fort pour rendre accessible une longueur d'onde éloignée du maximum de la courbe de gain. Il existe un autre facteur influençant le domaine spectral accessible de la cavité étendue qui est l'état du revêtement anti-réflexion de la diode laser. Une couche AR n'étant pas parfaite détériore sévèrement le comportement spectral d'un laser à cavité étendue. Si la réflexion résiduelle est trop élevée, l'oscillation interne au maximum de la courbe de gain peut être favorisée au lieu du fonctionnement en cavité externe si on se trouve éloigné de la longueur d'onde favorisée par la courbe du gain de la diode. Ainsi un coefficient de réflexion de l'ordre de 5% peut réduire de moitié la largeur du domaine spectral accessible au laser à cavité étendue. Pour un traitement anti-reflet parfait un laser à cavité étendue peut fonctionner sur n'importe quelle longueur d'onde dans le domaine spectral, comme les propriétés de la diode n'ont plus aucun effet sur l'émission laser. Cependant la couche anti-reflet n'est jamais parfaite et la diode laser joue le rôle d'un étalon interne modulant spectralement les pertes de la cavité étendue. Si la réflexivité résiduelle est faible (<0.1%) on observera qu'une modulation de la puissance émise avec une périodicité spectrale des modes de la diode. Si la réflexivité résiduelle est plus élevée (>1%) l'étalon va empêcher le fonctionnement laser de la cavité étendue excepté pour les fréquences proches au mode de la diode laser. Dans ce cas il est toujours possible d'atteindre n'importe quelle fréquence du domaine spectral, c'est cependant un peu plus compliqué car il faut maintenant changer le mode de la diode à l'aide d'une variation du courant ou de la température. Si la réflexivité devient trop importante on observe de la bistabilité dans la variation de la fréquence du système.

### 3 - b - Fonctionnement monomode

Pour que le système de cavité étendue soit d'une utilité quelconque, la condition primaire est d'être monomode. Il est en effet toujours possible de forcer un laser à cavité étendue à un fonctionnement monomode si l'élément sélectif en longueur d'onde présente une bande de transmission suffisamment étroite. Malheureusement en pratique il n'existe pas d'élément sélectif suffisamment étroit pour rejeter les modes voisins à celui désiré. On pourrait bien sûr utiliser deux sélecteurs de longueur d'onde, mais ceci complique fortement le montage et le contrôle du fonctionnement du système.

Fort heureusement, l'utilisation d'un seul réseau de diffraction semble généralement suffire, malgré sa faible sélectivité (on retrouve souvent plus d'une vingtaine de modes dans la bande sélectionnée par le réseau), à assurer un fonctionnement monomode. Une saturation homogène du milieu amplificateur ainsi qu'une sélectivité en longueur d'onde plus importante que dans une diode libre sont vraisemblablement responsables pour cette facilité d'obtenir un fonctionnement monomode. Cependant ce fonctionnement monomode ne semble pas dépendre que du comportement de la diode libre, des diodes libres monomodes resp. multimodes peuvent donner des lasers à cavité étendue multimodes resp. monomodes. Ceci suggère que la structure de la diode elle-même n'a pas une très grande influence sur le comportement monomode de la cavité étendue.

Une réflexivité résiduelle donnée par un traitement anti-reflet légèrement détérioré représente un facteur beaucoup plus déterminant pour le comportement monomode du système. Ainsi pour une réflexivité résiduelle de l'ordre de 5% la probabilité d'un fonctionnement multimode est relativement grande, tandis que si elle passe à 1% le comportement devient majoritairement monomode.

### 3 - c - Suppression de sauts de mode

En tournant le réseau de diffraction sans varier la longueur de la cavité la longueur d'onde du laser va sauter d'un mode à un autre. En théorie il est possible de se débarrasser des sauts de modes si la longueur d'onde résonnante  $\lambda_c$  et la longueur d'onde de moindre perte  $\lambda_r$  sont changées en même temps de telle façon à garder le mode laser dans une région de faible perte. Ceci peut être réalisé en tournant et translatant en même temps le réseau de diffraction dans un laser à cavité étendue.

### 3 - d - Modulation de la fréquence

Il est possible de moduler la fréquence d'un laser à cavité étendue par deux mécanismes. D'une part des variations de courant ou de température changent légèrement la longueur optique de la cavité et donc la fréquence du laser. En pratique la modulation du courant donne des plages de modulation de 50-100MHz à des fréquences autour de quelques centaines de Megahertz. Si on veut obtenir de plus larges plages de modulation, il est possible de varier la position du réseau de diffraction à l'aide d'une céramique piézo-électrique. Ceci permet des plages qui ne sont que limités par les sauts de modes. Cependant à cause de faible largeur de bande de l'élément piézo-électrique, la fréquence de modulation est limitée à quelques kilohertz.

### 3 - e - Réduction de la largeur spectrale

Une des propriétés les plus importantes caractéristique pour un laser à cavité étendue est la forte réduction de la largeur spectrale par rapport à une diode laser en fonctionnement libre.

La largeur spectrale d'un laser à cavité étendue due au bruit de l'émission spontanée est obtenue de même façon que celle d'une diode libre. Si la diode est parfaitement traitée anti-reflet on retrouve la formule (I-59) pour la largeur spectrale. Il faut tout simplement remplacer la longueur optique de la diode par celle de la cavité étendue, et traiter le réseau de diffraction comme un des miroirs de la cavité présentant une réflexivité  $R_g$ . On trouve ainsi:

$$\Delta\nu_m^{EC} \equiv \frac{1}{2\pi \tau_c^{EC}} = \frac{1}{2\pi} \frac{c}{\mu l + L} (\alpha_m l - \log \sqrt{R_1 R_g}). \quad (I - 62)$$

On voit que la largeur spectrale est inversement proportionnelle à la longueur de la cavité étendue. Si la diode n'est pas parfaitement traitée anti-reflet, il faut modifier la formule (I-62) pour tenir compte de la différence en puissance stockée à l'intérieur et à l'extérieur du milieu amplificateur. De nombreuses expériences ont montrées la proportionnalité inverse de la largeur spectrale en fonction de la longueur de la cavité. La réduction de la largeur spectrale sature aux environs de cavités longues d'à peu près 10 cm à une valeur de 10 kilohertz. Ceci semble être probablement dû à l'excitation de modes parasites ou de présence de bruit 1/f qui ne peut être réduit par l'opération en cavité étendue.

### 3 - f - Réduction du seuil d'émission laser

Comme on réinjecte une partie de sa propre lumière dans la diode laser, il semble relativement normal que le seuil du courant à partir duquel le laser commence à émettre de la lumière laser soit plus bas que pour la diode toute seule. Ceci est dû au fait que le réseau de diffraction présente normalement un coefficient de réflexion de l'ordre de 30% ce qui est nettement plus élevé que celui de la facette d'émission traitée de la diode qui est de l'ordre de 5%. On voit donc que pour un même courant beaucoup plus de puissance est stockée à l'intérieur de la cavité étendue que dans la diode libre.

#### *γ) Montage expérimental*

Pour notre laser à cavité étendue, nous utilisons une diode laser commerciale SDL-5412H1 ou SDL-5422H1 de puissance maximale respective en fonctionnement libre de 100 ou 150 mW. Les dimensions de sa zone active guidée par l'index est d'approximativement de 2  $\mu\text{m}$  d'épaisseur, de 4  $\mu\text{m}$  de largeur et de 600  $\mu\text{m}$  de longueur. La face arrière de la diode est traité avec un revêtement de haute réflectivité,  $R_1 = 0.95$ , et la réflectivité de la face avant est réduite à  $R_2 = 0.05$ . La largeur spectrale d'une diode en fonctionnement libre est typiquement de 15 MHz pour une puissance de 100 mW. L'alimentation de la diode laser est assuré par une alimentation en courant et en température stabilisée. Pour collimater et rendre parallèle le faisceau issu de la diode laser on utilise en tant qu'objectif une lentille à large ouverture numérique (N.A. = 0.5) de distance focale de 8 mm. On obtient ainsi un faisceau de section elliptique de largeur de 8 mm dans la direction perpendiculairement à la jonction de la diode et de 2 mm dans l'autre direction.

Comme élément dispersif on a choisi un réseau de diffraction holographique avec un angle de blaze pour 780 nm. Il est placé à une distance de 8 cm de la diode avec ses traits parallèles à la jonction et donc parallèles à la polarisation de la diode laser qui est linéaire verticale. Pour cette polarisation on obtient une fraction de 40% de lumière réfléchi sur le premier ordre du réseau, au lieu de 75% pour la polarisation linéaire perpendiculaire. Le nombre de traits de celui-ci est de 1200 traits/mm. Ceci permet une diffraction sur un seul ordre à un angle de Littrow de  $\theta_L = 30,7^\circ$ . La résolution en longueur d'onde du premier ordre d'un réseau est donnée par la formule  $|\delta\lambda| = \lambda/N$ . Le nombre de traits illuminés par la diode laser est d'à peu près  $N = 12000$ , ce qui résulte en une résolution de  $\delta\lambda = 0.071$  nm en longueur d'onde et de  $\delta\nu = 30$  GHz en fréquence. Cette résolution est suffisante pour empêcher un fonctionnement multimode sur plusieurs modes longitudinaux séparés de  $\Delta\nu = c/2\mu l = 70$

GHz. Le réseau de diffraction est monté sur un tube piézo-électrique de rayon interne de 13 mm et externe de 15 mm et de longueur 15 mm pour permettre un déplacement de celui-ci et donc une variation de la longueur de la cavité. L'ajustement fin de l'angle du réseau est possible grâce à un montage de la céramique piézo-électrique sur un support de miroir micrométrique (voir figure I-25).

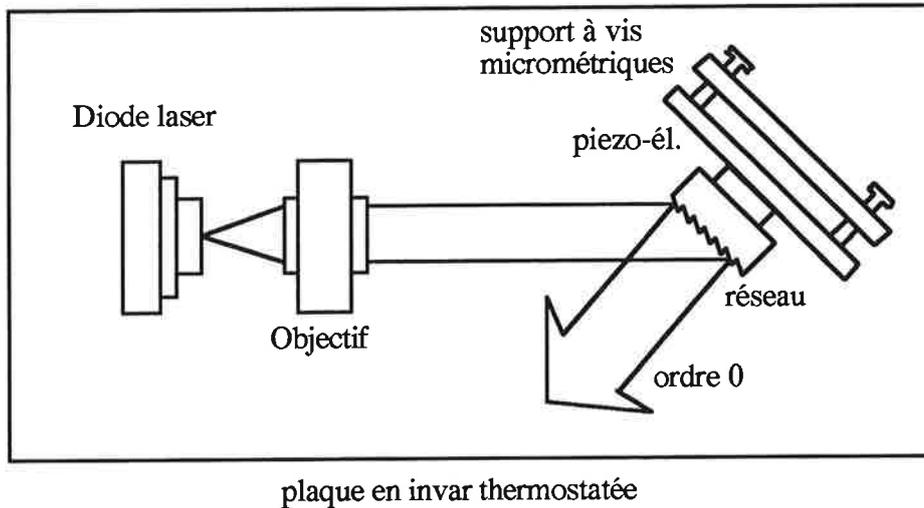


Figure I-25: Montage expérimental d'un laser à cavité étendue.

Le laser à cavité étendue est monté sur une plaque en invar. Pour améliorer la stabilité thermique de la cavité on chauffe la plaque à une température gardée constante aux environs de 35°C à l'aide d'une résistance chauffante régulée électroniquement. Une température régulée pour la cavité nous évite des micro-déformations de celle-ci causées par les changements de température durant le cours d'une journée ou entre deux saisons. Ceci permet de garder la cavité sur un mode bien déterminé sans avoir à retoucher le réseau de diffraction. La cavité est finalement enfermée dans une boîte métallique pour isoler le laser contre des courants d'air dans la salle et en même temps protéger le laser contre le bruit acoustique de faible intensité. Pour améliorer cette isolation contre le bruit acoustique ambiant, on entoure la boîte métallique thermostatée par de la mousse anti-vibration. Pour éviter au maximum le bruit causé par des vibrations mécaniques, on monte la boîte contenant le laser à cavité étendue sur quelques feuilles de caoutchouc, formant ainsi un socle anti-vibrations.

En ayant abrité le laser contre le plus gros des perturbations externes, on le stabilise à long terme sur une raie atomique du césium en utilisant un montage d'absorption saturée [HOR 83], [MAC 92]. Ceci est réalisé par une détection synchrone renvoyant un signal d'erreur sur la céramique piézo-électrique asservissant ainsi la longueur de la cavité. Les

grandes lignes de tout le montage servant à cette stabilité à long terme du système laser sont décrites dans la figure I-26.

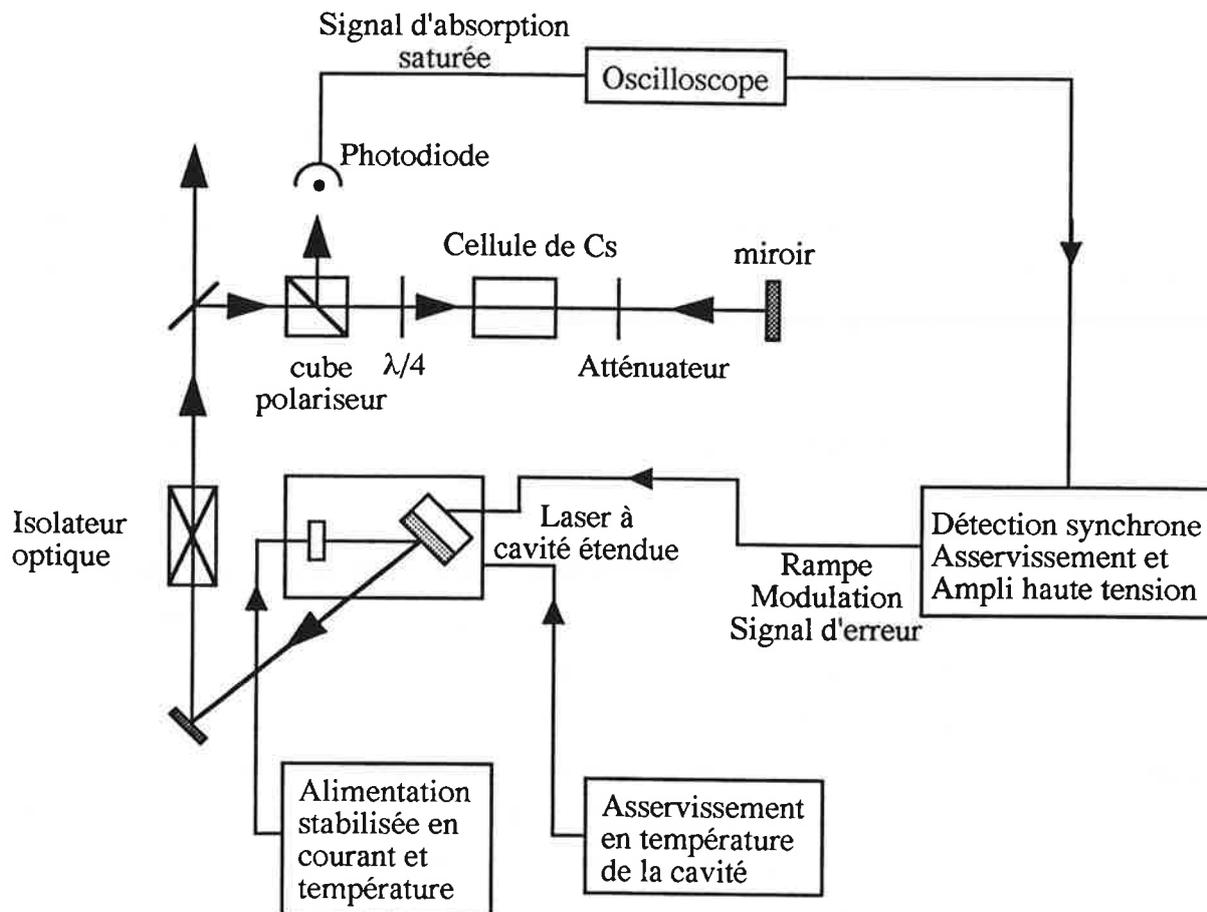


Figure I-26: Schéma du montage d'asservissement en fréquence d'un laser à cavité étendue.

On peut rapidement estimer le facteur de réduction de la largeur spectrale qui est atteint par le montage d'une cavité étendue. On a les paramètres suivant pour nos diodes lasers:  $R_1 = 0.95$ ,  $R_2 = 0.05$ ,  $l = 600 \mu\text{m}$ ,  $m = 3.6$ ,  $\alpha_m = 30 \text{ cm}^{-1}$ ,  $L = 8 \text{ cm}$  et  $R_g = 0.4$ . On trouve avec ces valeurs un facteur de  $\Delta\nu_m^{\text{EC}} / \Delta\nu_m \approx 1/3000$ . Si on prend la valeur typique de 15 MHz pour la largeur spectrale d'une diode libre fonctionnant à une puissance de 100 mW, on trouve une largeur spectrale réduite de 5 kHz pour le laser à cavité étendue donnant la même puissance en sortie. Il faut cependant noter que pour un laser à cavité étendue la puissance stockée à l'intérieur de la cavité laser est bien plus grande que pour une diode libre à cause du coefficient de réflexion bien plus élevé du réseau de diffraction par rapport à la face avant de la diode. Ainsi pour éviter d'endommager la diode, on limite la puissance de sortie du laser à cavité étendue à à peu près un tiers de la puissance maximum de la diode libre. Il faut noter que de toute façon à partir d'une certaine puissance de sortie pas beaucoup plus élevée que celle utilisée

on assiste à un passage d'un fonctionnement monomode vers un fonctionnement multimode avec des sauts de mode incontrôlable. On est donc forcé de travailler à une puissance réduite si on veut éviter un fonctionnement multimode du laser à cavité étendue.

### *δ) Mesures de caractérisations*

Pour démontrer l'utilité des systèmes développés, je vais dans la partie suivante décrire les résultats de mesures de caractérisations de ceux-ci, et comparer ces résultats aux caractéristiques offertes par des diodes lasers commerciales libres.

#### 1 - Fonctionnement en cavité étendue et réduction du seuil d'émission laser

Le couplage optimal entre le réseau de diffraction et la diode laser est obtenu par un ajustement fin de l'objectif de la diode et du réseau. En réglant l'objectif correctement on obtient un faisceau laser parallèle. Après ceci, on dirige le premier ordre de diffraction du réseau dans la diode en ajustant au mieux l'angle du réseau. L'optimisation de l'injection est réalisée en réglant le réseau autour de son axe horizontal en se plaçant à un courant d'injection de la diode légèrement en dessous du seuil. Si le couplage est bon, le seuil de la diode baisse et on obtient une lumière laser. En baissant d'avantage le courant et en réoptimisant la réinjection à l'aide de l'orientation du réseau, on obtient un couplage plus ou moins parfait. En réajustant en même temps l'objectif de la diode, on réussit à abaisser le seuil d'émission laser à un courant minimum dépendant de la diode. Dans nos expériences, la valeur de ce courant seuil peut être aussi bas que 15 mA pour une diode présentant un courant seuil de 25 mW en fonctionnement libre.

Le réglage en fréquence du laser à cavité étendue est réalisé à l'aide d'une rotation du réseau de diffraction autour de son axe vertical avec une sensibilité de  $\delta\lambda/\delta\theta = 24 \text{ nm/deg}$ . La puissance de sortie est fixée à une valeur de fonctionnement de 30 mW. On règle la fréquence de telle façon à se trouver sur la raie de résonance  $D_2$  du césium. Ceci est réalisé en tournant le réseau et en changeant la température de la diode laser tout en observant la fluorescence induite par le laser dans une cellule de vapeur de césium. Le réglage fin est effectué en modulant la longueur de la cavité par une rampe de haute tension appliquée sur la céramique piézo-électrique tenant le réseau de diffraction. Pour une amplitude de 1000 Volts, dépendant du type de céramique, on obtient un balayage en fréquence de l'ordre de 5.5 GHz. En observant ainsi le signal d'absorption saturée dans la cellule de césium, on arrive à optimiser

la position du réseau en le tournant de telle façon à avoir la plus grande plage de balayage sans sauts de modes que possible. Le signal d'absorption saturée (figure I-27) montre clairement la structure hyperfine  $6p\ ^2P_{3/2}$  de l'atome de césium. Ce signal est passé par un intégrateur et filtré en fréquence pour nous donner un signal servant à l'asservissement du laser sur une certaine fréquence souhaitée. Le bon rapport signal sur bruit observé sur les spectres résulte directement de la faible largeur spectrale de notre laser à cavité étendue.

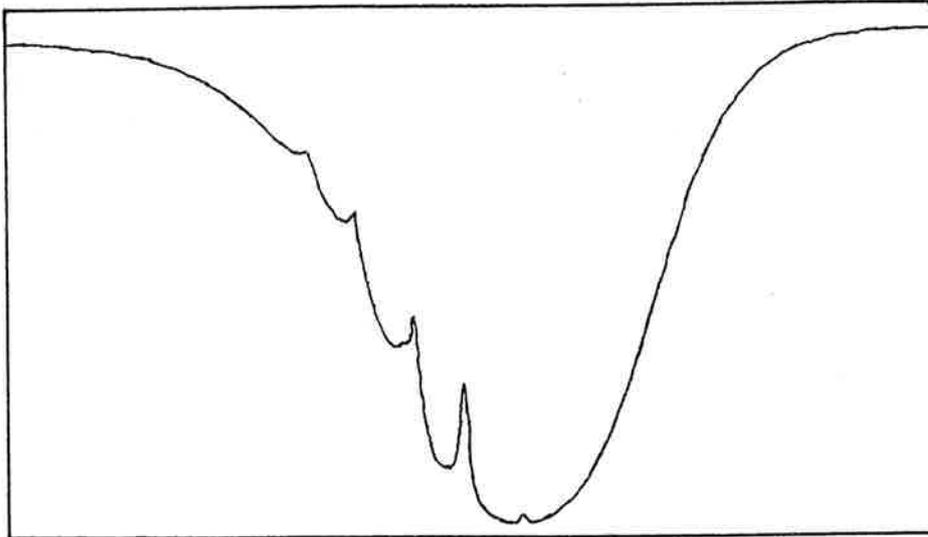


Figure I-27: Spectre atomique de la raie D2 à partir du niveau hyperfin  $F=4$  du césium obtenu par absorption saturée.

## 2 - Étude de largeur spectrale

La largeur spectrale de nos lasers à cavité étendue est étudiée à l'aide d'expériences de battements entre deux systèmes similaires. On peut écrire le champ électrique d'un laser sous la forme:

$$E(t) = A \cos \{ [\omega_0 + \delta\omega(t)] t + \phi(t) \} \quad (\text{I} - 63)$$

où  $\phi(t)$  représente la fluctuation en phase du champ laser due à l'émission spontanée. Cette fluctuation est un processus aléatoire de haute fréquence qui contribue directement à la largeur spectrale du laser.  $\delta\omega(t)$  représente la fluctuation en fréquence du laser due à des perturbations acoustiques, mécaniques et thermiques externes sur la cavité laser. Cette fluctuation est de basse fréquence et limite la stabilité de la fréquence du laser.

Pour un laps de temps relativement court on peut négliger  $\delta\omega(t)$ , et le champ laser total résultant de la superposition de deux champs lasers  $E_1(t)$  et  $E_2(t)$  pour une expérience de battements s'écrit:

$$E(t) = A \left\{ \cos [\omega_1 t + \phi_1(t)] + \cos [\omega_2 t + \phi_2(t)] \right\}, \quad (\text{I - 64})$$

où on a pris deux champs lasers de même amplitude  $A$ . Le signal de battement détecté par une photodiode rapide qui est proportionnel au courant de photons devient ainsi:

$$I \approx \overline{E^2(t)} = A^2 + 2 A^2 \overline{\cos [\omega_1 t + \phi_1(t)] \cos [\omega_2 t + \phi_2(t)]}. \quad (\text{I - 65})$$

Dans cette formule on prend la moyenne temporelle sur une période optique et on pose  $A^2 = I_0$ . On a donc pour le signal détecté:

$$I = I_0 \left\{ 1 + \cos [\Delta\omega_{1,2} t + \Delta\phi_{1,2}(t)] \right\}, \quad (\text{I - 66})$$

avec:  $\Delta\omega_{1,2} = \omega_1 - \omega_2$  et  $\Delta\phi_{1,2}(t) = \phi_1(t) - \phi_2(t)$ . La partie oscillante du signal est donc composée d'une oscillation en cosinus avec une phase changée au hasard par des variations de phase des deux champs lasers dues à l'émission spontanée. On obtient ainsi un signal de photodiode qui est semblable à celui de la figure I-28a. La fréquence des deux lasers est réglée de telle façon à ce qu'elle soit très proche l'une de l'autre, dans ce cas elles sont éloignées de 4 MHz. En prenant la transformée de Fourier du signal on obtient le spectre montré sur la figure I-28b. On voit distinctement un grand pic à la fréquence correspondant à 4 MHz qui a une largeur à mi-hauteur de 200 kHz. On peut donc ainsi estimer la largeur de chacun des deux lasers à cavité étendue à à peu près 100 kHz.

D'après les indications du fournisseur, les diodes lasers libres ont une largeur spectrale d'à peu près 15 MHz. On voit que par la mise en place d'un système de cavité étendue on peut réduire celle-ci d'au moins un facteur de cent. C'est ce fait qui représente la plus remarquable caractéristique de ce système.

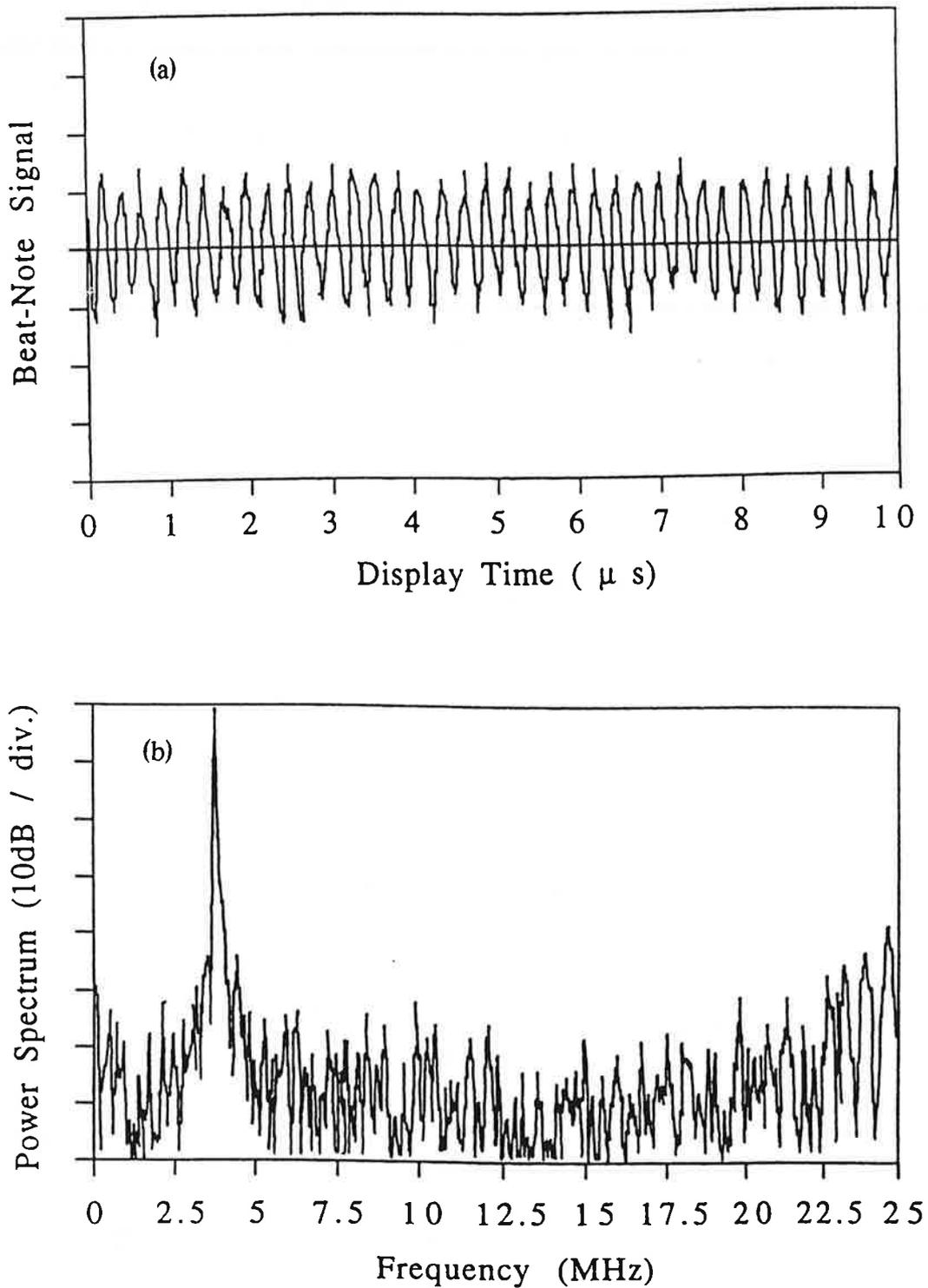


Figure I-28: a) Signal de battement entre deux diodes lasers à cavité étendue, visant à mesurer la largeur spectrale de celles-ci. b) Transformée de Fourier de ce signal de battement.

## 3 - Asservissement et stabilité à court terme

Notre laser à cavité étendue peut être asservi sur une raie de transition atomique du césium pour assurer sa stabilité en fréquence à long terme. Sur la figure I-29 on voit une description relativement détaillée de ce montage d'asservissement. L'émission du laser est légèrement modulée en fréquence par une modulation de la céramique piézo-électrique, et donc simultanément de la longueur de la cavité, à la fréquence de 20 kHz pour créer un signal d'erreur en utilisant une détection synchrone. Comme signal de référence pour asservir la fréquence du laser on utilise un montage d'absorption saturée dans une cellule de vapeur de césium atomique, comme c'est décrit sur la figure I-26. Le signal résultant est montré sur la figure I-27. Le signal fourni par la détection synchrone est proportionnel à la dérivé du signal d'absorption saturée; il s'annule donc sur toutes les raies dans le spectre d'absorption saturée, donc sur les différents niveaux hyperfins du césium. Ce signal d'erreur est renvoyé après amplification sur la céramique piézo-électrique de telle façon à ce que la fréquence du laser soit bloquée sur une raie du césium. Après un tel asservissement, le laser à cavité étendue peut rester bloqué sur une raie du césium choisie pendant pratiquement toute une journée. Pour que cet asservissement soit le plus efficace possible il est bien sûr nécessaire d'isoler le laser le mieux possible contre toute perturbation externe, qu'elle soit de nature thermique, acoustique ou mécanique.

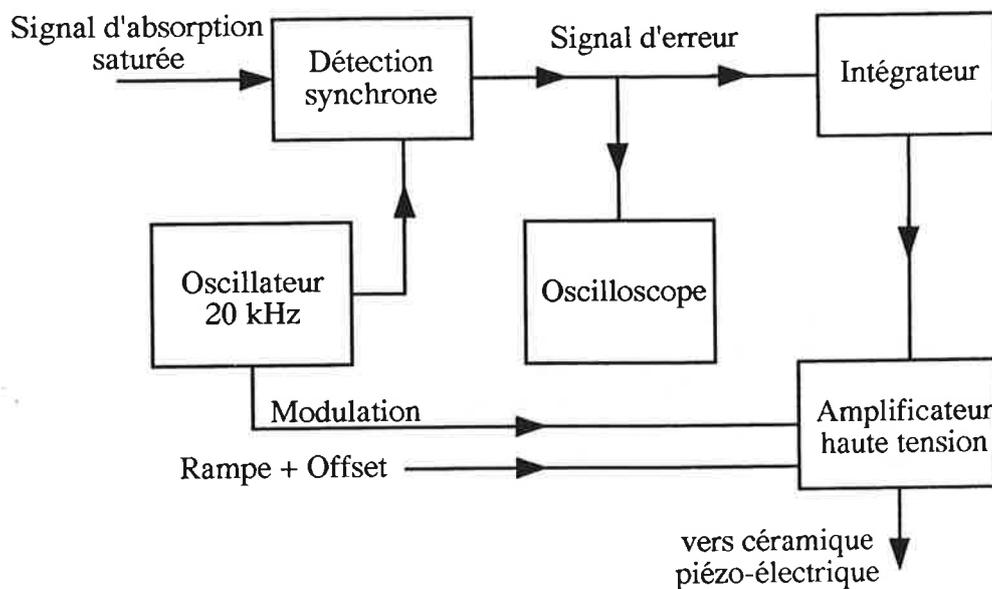


Figure I-29: Montage servant à l'asservissement en fréquence d'un laser à cavité étendue en détail.

En moyennant le signal de battement entre deux lasers dans le temps, on doit prendre en compte les fluctuations en fréquence du laser dues à des perturbations de basses fréquences. Dans ce cas on mesure donc directement la stabilité en fréquence du laser. Sur la figure I-30a on montre le signal de battement moyenné sur une seconde par un oscilloscope digital en mode répétitif. Les deux lasers sont bloqués respectivement sur deux raies hyperfines de la raie  $D_2$  du césium, les raies  $F = 4 \rightarrow F' = 4$  et  $F = 4 \rightarrow F' = 5$ . Le signal de battement présente des oscillations amorties. La transformée de Fourier du signal donne un pic situé à 225 MHz, qui est la distance entre les deux raies hyperfines utilisées, ayant une largeur à mi-hauteur d'à peu près 2 MHz. On peut donc en déduire que si on asservit un laser à cavité étendue sur une raie de résonance atomique, il présente une stabilité en fréquence de 1 MHz.

#### 4 - Plage de balayage en fréquence

Normalement un laser à cavité étendue présente une plage de balayage en fréquence relativement grande comme on l'a déjà remarqué auparavant. Malheureusement ceci n'est le cas que pour une diode laser avec un traitement anti-reflet parfait. La réflexion de la face de la diode introduit une cavité parasite dans le laser à cavité étendue. Son effet peut être considéré semblable à celui d'un étalon mince dans un laser à colorant: filtrage des modes de la cavité par sa fonction de transmission. Pour les diodes utilisées l'étalon mince parasite est défini par les paramètres suivants,  $R_1 = 0.95$ ,  $R_2 = 0.05$  et  $l = 600 \mu\text{m}$ . Ceci caractérise un étalon Fabry-Perot de finesse 1.84 et de domaine spectral libre de 70 GHz. Le mode laser émis est celui de la cavité étendue sélectionné par l'étalon mince. Quand la longueur de la cavité étendue est variée à l'aide du piézo-électrique, le mode laser change continuellement jusqu'à ce qu'il soit filtré par l'étalon mince de la diode. Le mode laser saute alors sur un autre mode qui est moins filtré. Sur la figure I-31 on observe les sauts de modes durant un balayage de la longueur de la cavité. Le spectre d'absorption saturée d'une cellule de césium y est enregistré. Chaque saut de mode est marqué par une discontinuité dans ce spectre. La structure hyperfine étant connue, ceci nous permet d'étalonner la plage de balayage sans saut de mode, donnant un intervalle de 3 GHz. Cette nette réduction de la plage de balayage sans saut de mode est entièrement due à la présence d'un revêtement anti-reflet pas tout à fait parfait de la diode laser.

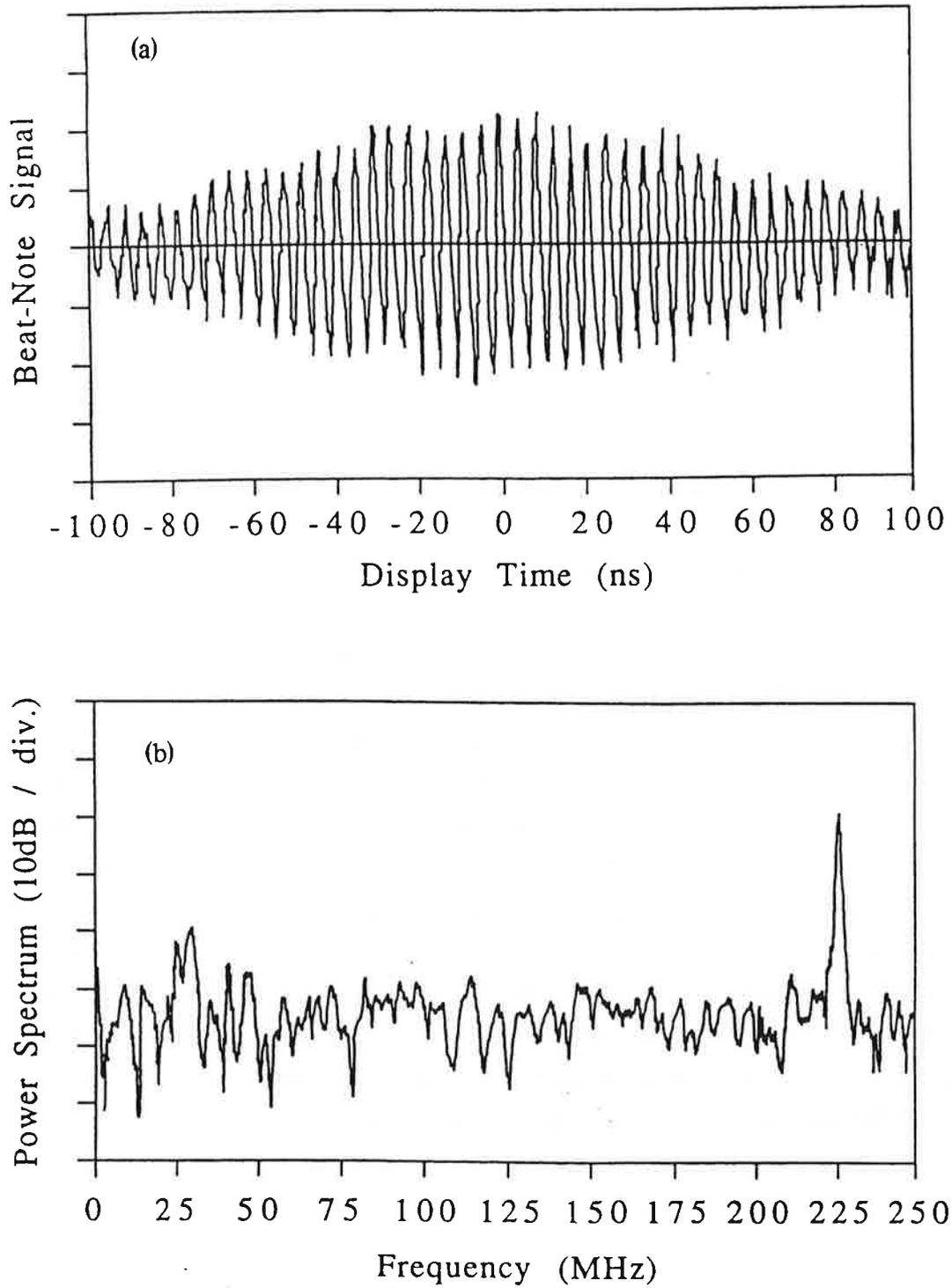
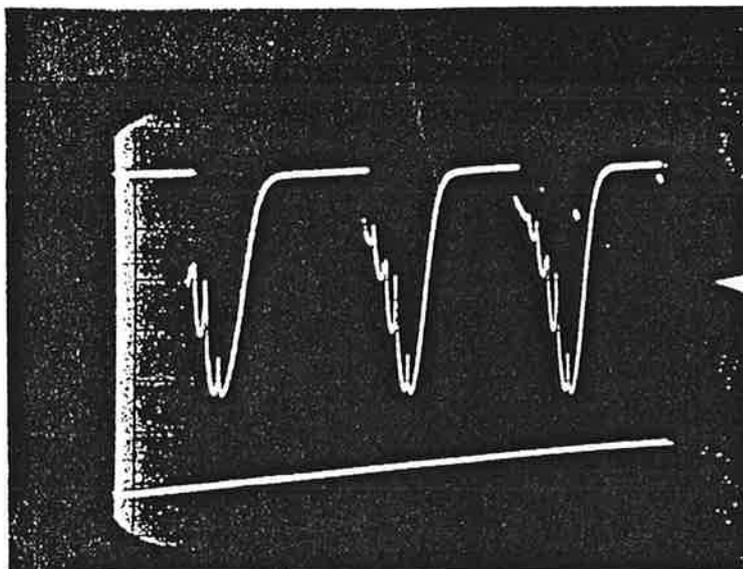


Figure I-30: a) Signal de battement moyenné sur une seconde, servant à mesurer la stabilité en fréquence du laser. b) Transformée de Fourier de ce signal de battement.



*Figure I-31: Balayages consécutifs sur la raie D2 du césium montrant la présence de sauts de modes.*

### **3 - b - Montage optique de l'expérience**

Dans l'expérience de piège magnéto-optique 2D, on utilise en principe quatre faisceaux lasers différents ayant des fonctions bien distinctes. Ceux-ci sont:

- un faisceau de ralentissement,
- un faisceau de repompage,
- un faisceau de piégeage,
- un faisceau sonde.

Dans la suite on décrira les montages et caractéristiques de ces dispositifs.

#### *a) Le faisceau de ralentissement*

Le laser utilisé pour le ralentissement du jet atomique est une diode SDL-5422 couplée à un réseau de diffraction en cavité étendue. Le faisceau utile a une puissance de

13 mW. Ce laser est balayé à l'aide d'une rampe électrique appliquée à la céramique piézo-électrique vers le bleu avec une fin de rampe aux alentours de la transition  $F=4 \rightarrow F'=5$ , déterminant la vitesse finale du jet ralenti. Un ralentissement optimal est normalement obtenu pour une rampe de 400 MHz en 9 ms. Le faisceau est étendu par un télescope de lentilles cylindriques pour donner un faisceau de diamètre d'à peu près 1 cm qui est envoyé à la rencontre du jet atomique (voir figure I-32). A la fin de la rampe de balayage, la fréquence laser peut être décalée d'environ  $\delta_{Lc}=80\Gamma=400\text{MHz}$  vers le bleu pour éviter toutes perturbations pendant le processus de compression du jet ralenti.

### *β) Le faisceau de repompage*

Pendant le ralentissement, les atomes du jet cyclant sur la transition fermée  $F=4 \rightarrow F'=5$  peuvent être pompés optiquement sur le niveau fondamental  $F=3$  et donc être perdus pour tout processus de refroidissement. Par conséquent on utilise un laser repompeur qui est balayé simultanément avec celui de ralentissement, mais sur la transition  $F=3 \rightarrow F'=4$ , de telle manière à repomper optiquement les atomes dans le niveau fondamental  $F=4$ . Comme laser de repompage on utilise une diode SDL-5412 en cavité étendue livrant un faisceau d'une puissance utile de 5.9 mW. Ce faisceau est superposé au faisceau de refroidissement par un cube mélangeur avant le passage à travers le télescope (voir figure I-32).

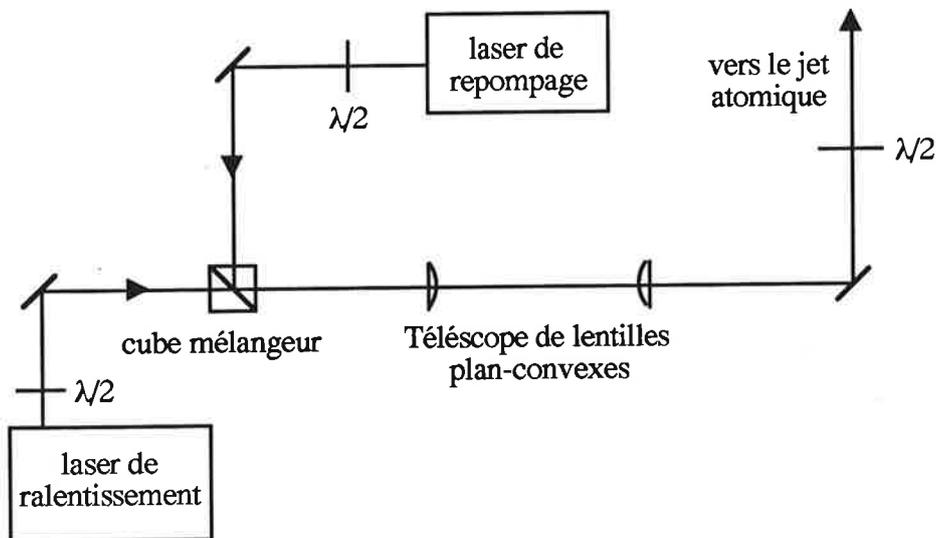


Figure I-32: Montage optique servant au ralentissement du jet atomique.

Les lasers de ralentissement et de repompage sont tous les deux asservis en fréquence en bloquant un endroit de la rampe sur un signal d'une raie du césium obtenu par absorption saturée.

*γ) Le laser de piégeage*

Les quatre faisceaux lasers nécessaires pour le piège 2D proviennent d'une diode esclave SDL-5422 à haute puissance qui est injectée par une diode maître qui est une diode SDL en cavité étendue. Le laser maître de puissance utile de 5 mW est asservi sur le signal d'absorption saturée de la transition  $F=4 \rightarrow F'=4$ . Ce faisceau est passé à travers un cristal acousto-optique, ce qui donne un décalage en fréquence sur l'ordre 1 ajustable de 150 à 250 MHz. Cet ordre 1 de l'acousto-optique est injecté dans la diode de puissance ce qui impose les caractéristiques du laser maître à la diode esclave [YU 92]. On obtient ainsi un faisceau de 100 mW de puissance, de 100 kHz de largeur spectrale, asservi et réglable en fréquence autour de la raie  $F=4 \rightarrow F'=5$  à l'aide de la fréquence appliquée sur l'acousto-optique.

Le faisceau de la diode esclave est passé à travers un isolateur optique pour éviter tout retour optique dans elle-même. Il est ensuite séparé pour donner les deux bras horizontaux et verticaux du piège à l'aide d'un cube polariseur (voir figure I-33). Les deux bras sont traités à l'aide de télescopes cylindriques pour obtenir des faisceaux de section  $6 \times 45 \text{ mm}^2$ . Chaque bras passe par une lame quart d'onde pour rendre sa polarisation circulaire, traverse l'enceinte à vide, puis passe par une deuxième lame quart d'onde pour frapper sur un miroir. La rétro réflexion repasse par la lame quart d'onde et ayant la polarisation circulaire opposée, le faisceau rétro réfléché repasse à contresens dans l'enceinte. On obtient ainsi quatre ondes lumineuses de section  $6 \times 45 \text{ mm}^2$ , se coupant à l'endroit du piège sur l'axe du jet atomique, et chacune de puissance de  $5.5 \text{ mW/cm}^2$ .

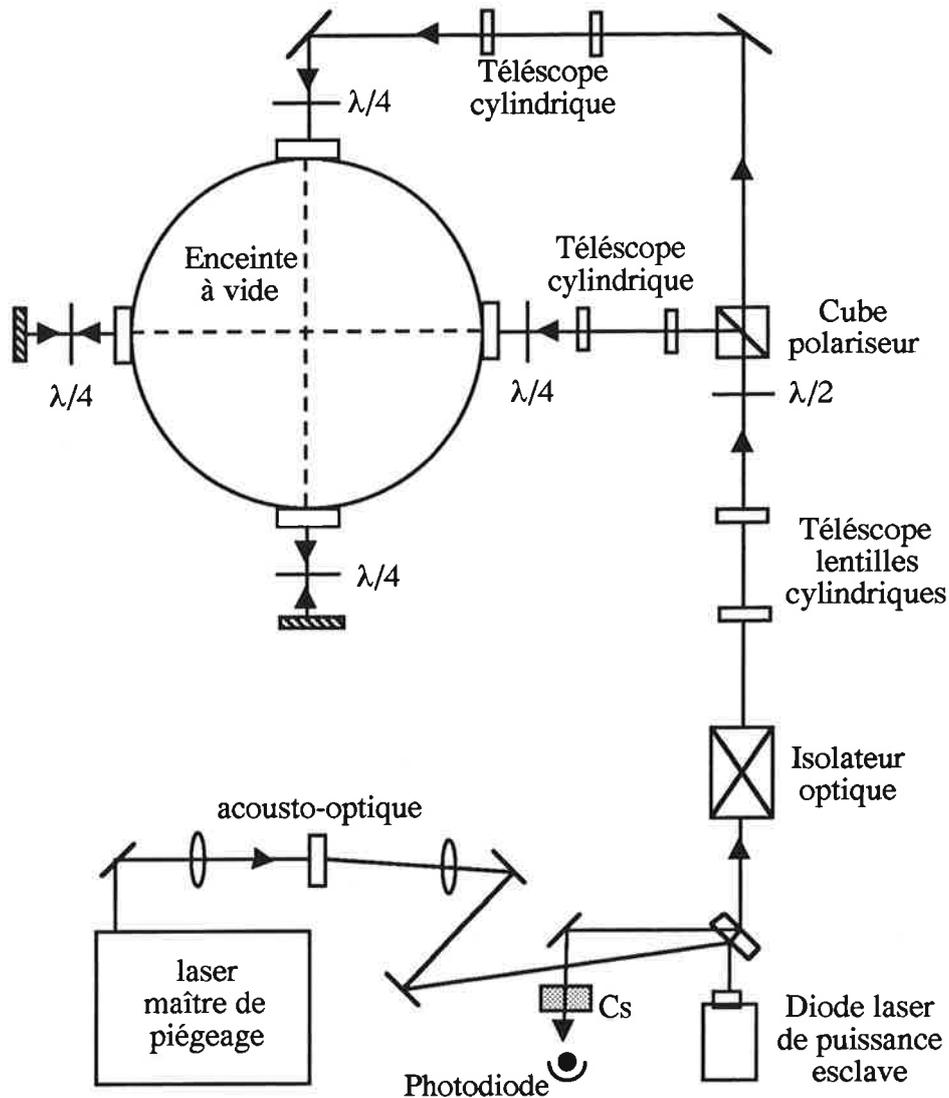


Figure I-33: Montage optique servant à la compression du jet ralenti à l'aide du piège magnéto-optique à deux dimensions.

#### δ) Le faisceau sonde

Le laser sonde est constitué d'une diode STC couplée à un réseau et permet de mesurer la vitesse longitudinale finale du jet ralenti et refroidi. La puissance est de 0.5 mW et la fréquence est balayée autour de la transition  $F=4 \rightarrow F=5$  de manière à exciter sélectivement une certaine classe de vitesse à cause de l'effet Doppler. En comparant la fluorescence induite par ce laser et récoltée à l'aide d'une photodiode installée à hauteur du piège avec le signal d'absorption saturée, on peut en déduire la vitesse des atomes fluorescents. Au cours de l'évolution de cette expérience, le laser sonde a été remplacé par commodité par une rampe identique du laser de refroidissement de durée 1 ms immédiatement après la rampe de

ralentissement. Ces deux méthodes permettent une calibration de la distribution de vitesse des atomes du jet à l'aide de sa fluorescence (voir figure I-34).

#### **I - 4 - 4 - La détection**

Pour caractériser le jet atomique ralenti et comprimé, on utilise trois méthodes complémentaires:

- un fil chaud,
- une caméra CCD,
- un laser sonde.

La dernière méthode, caractérisant la distribution en vitesse du jet a été décrite dans le paragraphe précédent, je me contenterai donc de décrire les deux autres méthodes.

##### **4 - a - Le fil chaud**

Un fil de tungstène de 0.1 mm de diamètre et de 10 mm de longueur, parcouru par un courant de 300 mA est placé à 170 cm du four de césium en bout de course du jet atomique. Les atomes du jet s'ionisent en heurtant le fil et le courant de  $\text{Cs}^+$  créé est mesuré à l'aide d'un picoampèremètre. Ceci nous permet d'obtenir le profil transverse du jet en balayant le fil et d'avoir une bonne estimation de la densité atomique du jet dans cette zone d'analyse.

##### **3 - b - La caméra CCD**

Une caméra CCD (IMC 500) fonctionnant dans le domaine spectral de 400 à 1100 nm est disposée à  $45^\circ$  par rapport aux axes  $O_x$  et  $O_y$  à hauteur du piège. Celle-ci permet d'observer la fluorescence induite par les lasers dans la zone du piège. La caméra peut être déclenchée électroniquement pour observer le piège formé juste après la rampe de balayage du ralentissement. Le temps d'acquisition minimum est de 10 ms par image. Les signaux sont traités et enregistrés à l'aide d'un micro-ordinateur.

## I - 5 - Résultats expérimentaux

On a déjà discuté des caractéristiques principales du jet atomique thermique dans le paragraphe I-3-1. Dans ce qui suivra, je décrirai les caractéristiques du jet refroidi et comprimé obtenu dans nos expériences, en commençant par le jet ralenti.

### I - 5 - 1 - Le jet ralenti

Le principe du ralentissement d'un jet atomique a été détaillé auparavant (voir paragraphe I-2-2). Dans notre expérience, on balaye la fréquence du laser de refroidissement et simultanément celle du laser repompeur, de telle manière à ralentir tous les atomes du jet vers une classe de vitesse qui est déterminée par la fin de la rampe de balayage de la fréquence laser. Les atomes qui contribuent au signal total sont ceux qui ont une vitesse comprise entre la vitesse la plus élevée, correspondante au début de la rampe de balayage, et la vitesse finale choisie pour être la vitesse du jet monocinétique. Celle-ci est déterminée par la fin de la rampe de balayage. On forme ainsi des bouffées d'atomes ralentis [GUE 92].

La durée des rampes de ralentissement et de repompage est de 9 ms sur une plage de 400 MHz et ceci à une cadence de 10 à 50 Hz.

Sur la figure I-34, on voit quelques signaux de fluorescence du jet montrant la distribution en vitesse des atomes après différentes expériences de ralentissement. Les vitesses sont calibrées à l'aide du signal d'absorption saturée où la raie  $F=4 \rightarrow F'=5$  correspond à une vitesse atomique nulle. On remarque la présence de deux pics dans les distributions de vitesse: l'un très étroit, correspondant au jet ralenti et monocinétique et l'autre plus large correspondant au reste de la distribution thermique initiale du jet. Ceci sont des atomes rapides qui n'ont jamais été concernés par le processus de ralentissement.

La surface du pic du signal du jet ralenti observé sur l'oscilloscope est proportionnelle à la densité atomique du jet ralenti. Comme la largeur du pic est pratiquement inchangée en variant la vitesse longitudinale finale du jet monocinétique, on peut considérer en bonne approximation que la densité est proportionnelle à la hauteur du pic. On trouve ainsi une variation de la densité atomique du jet ralenti en fonction de la vitesse finale selon la courbe I-35.

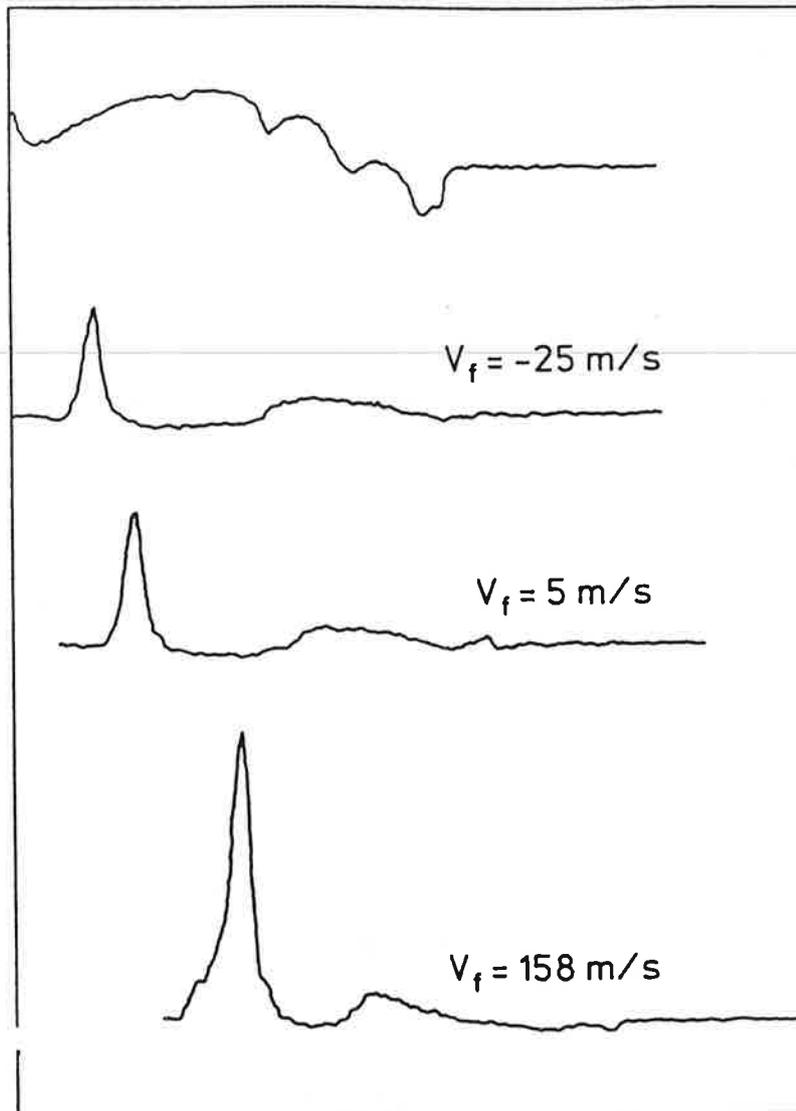


Figure I-34: Signaux de fluorescence montrant la distribution en vitesse du jet ralenti à différentes vitesses longitudinales. Le signal d'absorption saturée sert à calibrer les vitesses.

On voit que la densité du jet ralenti augmente linéairement avec la vitesse finale, passe par un maximum pour à peu près 160 m/s et décroît rapidement. La décroissance de la densité avec la diminution de la vitesse finale du jet s'explique facilement par le fait d'une divergence accrue du jet, puisque les atomes gardent leurs vitesses transversales initiales. La brusque décroissance de la densité d'atomes ralentis pour des vitesses plus élevées s'explique par le fait que, à cause de la distribution Maxwell-Boltzmann en vitesse du jet thermique, on a de moins en moins d'atomes plus rapides que la vitesse finale choisie dans le jet thermique, et donc de moins en moins d'atomes pouvant être ralentis à cette vitesse. Il faut cependant noter

que pour chaque vitesse finale du jet ralenti, le maximum du pic, et donc de la densité, dépend de plusieurs paramètres tel que la durée et l'amplitude de la rampe de ralentissement, la longueur d'interaction jet-laser, la distribution initiale du jet (température du four),...

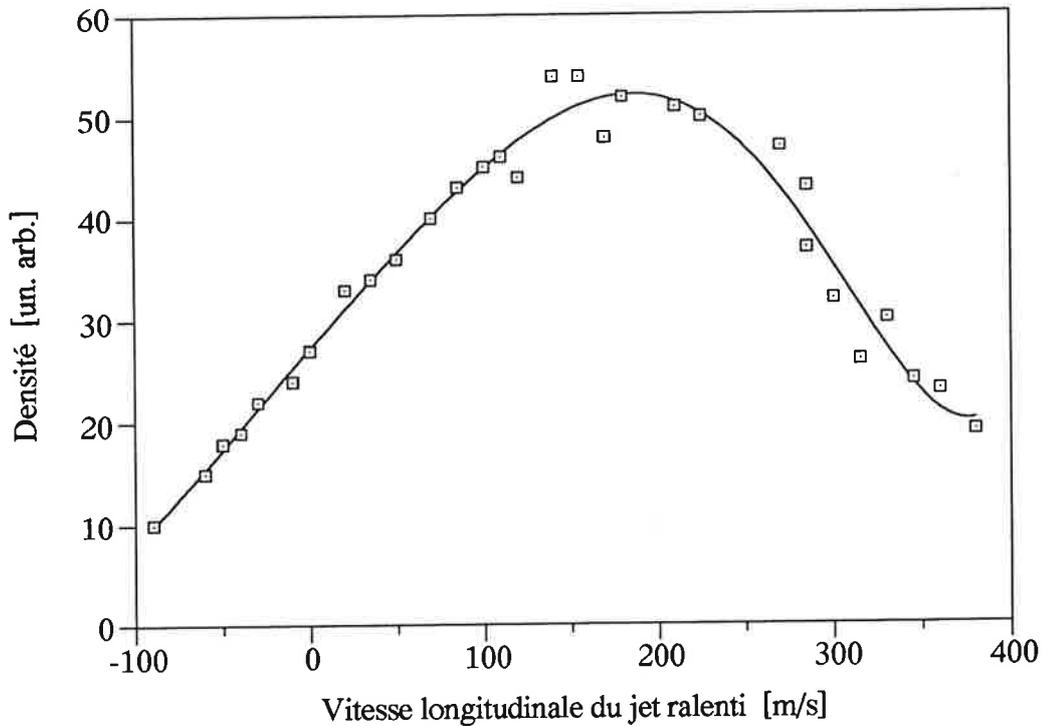


Figure I-35: Variation de la densité atomique du jet ralenti en fonction de la vitesse finale.

### I - 5 - 2 - Le piège magnéto-optique 2D

Les expériences que je décrirai dans cette partie ont pour but de comprimer transversalement le jet atomique ralenti afin d'obtenir une densité d'atomes ralentis maximale [YU 94], [DJE 95]. Cette densité maximale, qui est atteinte pour une compression du jet ralenti efficace à 100%, est donnée par le rapport entre la section du jet ralenti entrant dans le piège (en gros la taille de l'intersection des faisceaux lasers du piège) et la section du jet ralenti comprimé sortant du piège. La densité du jet comprimé augmentera donc en diminuant la taille du jet comprimé tout en gardant la même plage de capture du piège.

Dans nos expériences préliminaires, les mesures de densité du jet comprimé faites à l'aide de mesures de fluorescence, nous montrent que notre augmentation de la densité du jet à l'aide de la compression est bien inférieure au taux maximum défini par la taille du jet comprimé. On en déduit donc que notre piège n'est pas efficace à 100%; tous les atomes entrant dans le piège ne sont pas forcément refroidis et ramenés vers le centre du piège, beaucoup d'atomes ne sont pas concernés ou s'échappent avant la fin du piège. Il semble donc exister des mécanismes plus complexes, qui font qu'un atome est refroidi ou non. Ainsi, on a remarqué qu'un atome préalablement dans son état stationnaire ( $m_F = -4$ ) est refroidi plus efficacement. Pour obtenir une compression efficace il est important dans le cas du césium de mettre l'atome dans cet état, qui correspond à une orientation de son moment magnétique par rapport au champ magnétique local, avant qu'il se soit échappé du piège. C'est cet aspect "transitoire" (l'atome doit être capturé pendant son temps de transit dans le piège) qui nous a motivé à améliorer l'efficacité du piège. Dans la suite, je détaillerai les différentes expériences entreprises en ce sens et leurs résultats.

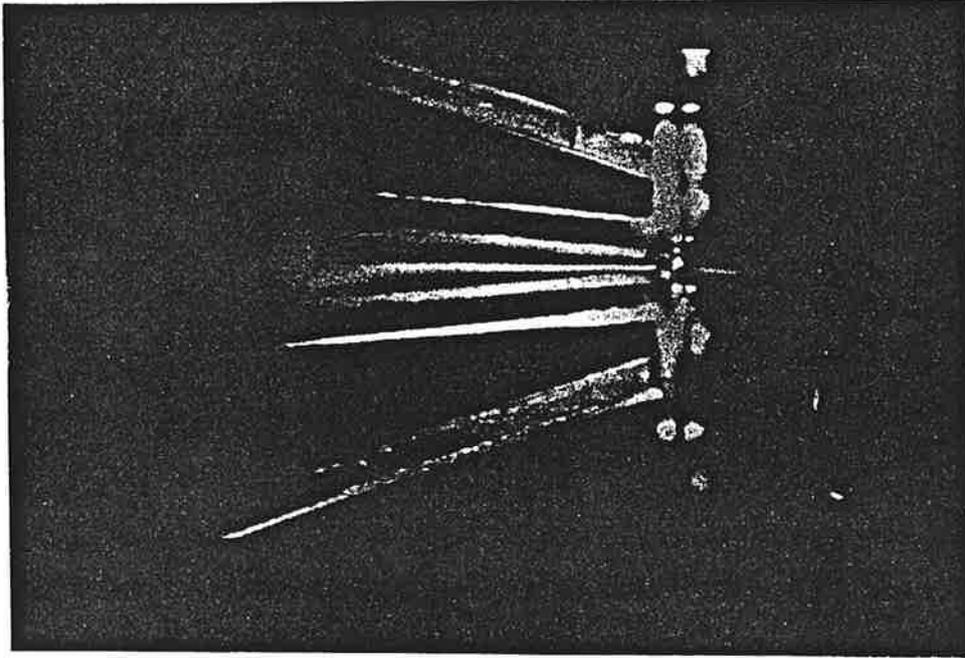
## 2 - a - Le piège préliminaire

Dans les premières expériences de compression à l'aide du piège magnéto-optique à deux dimensions, on se place dans les conditions expérimentales déjà présentées dans la section I-3 de ce chapitre. On fait passer un courant de 50 Ampères à travers le dispositif de barres créant un gradient de champ magnétique variant de 15 G/cm à l'entrée du piège jusqu'à 40 G/cm à la sortie de celui-ci. En même temps toutes les composantes du champ magnétique terrestre sont compensées à l'aide de trois paires de bobines Helmholtz orientées suivant trois directions perpendiculaires de l'espace.

Sur la figure I-36 on voit un signal typique de la compression du jet atomique ralenti observé pendant nos expériences. Cette image a été enregistrée à l'aide de la fluorescence induite par le laser de piégeage en utilisant une caméra CCD. La vitesse longitudinale du jet ralenti est de 35 m/s pour ce signal. On voit clairement entrer le jet ralenti par la gauche, être progressivement comprimé pour ressortir du piège par la droite, bien plus dense. A la sortie du piège, le faisceau comprimé est toujours refroidi par les faisceaux lasers du piège qui créent une mélasse. Ceci réduit considérablement la divergence du jet comprimé à la sortie du piège.

Pour pouvoir analyser les signaux de fluorescence observés, on définit une distance de compression [YU 94] et qui est la distance que les atomes parcourent dans le piège avant d'être focalisés. La définition précise sera donnée plus loin au paragraphe 2-a-β. A partir de

cette distance, le jet comprimé ressemble à un trait fin de diamètre et d'intensité constantes. Sur la photo, cette distance de compression  $d_p$  est égale à 25 mm, donc à peu près la moitié du piège. Le diamètre à mi-intensité de ce faisceau fin à la sortie du piège est de 200  $\mu\text{m}$ . En comparant l'intensité de la fluorescence induite du jet comprimé avec celle du jet ralenti et non comprimé, on peut déterminer la densité atomique dans ce jet comprimé. On arrive ainsi aux résultats décrits dans le paragraphe suivant.



*Figure I-36: Signal typique d'une compression transversale d'un jet atomique*

*$\alpha$ ) Mesures de densité du jet comprimé*

En comparant l'intensité de fluorescence entre le cas d'un jet comprimé et un jet non comprimé et en retranchant le bruit de fond, on déduit l'accroissement de la densité par le processus de compression et en connaissant la densité du jet ralenti, la densité du jet comprimé.

Les premiers signaux de compression nous donnent une augmentation de la fluorescence lors de la compression du jet ralenti d'un facteur 10 au maximum, ce qui nous

conduit à un accroissement de la densité d'un facteur 100 dans le meilleur des cas. La densité à la sortie du piège est pour ce cas de l'ordre de  $10^9$  atomes/cm<sup>3</sup>.

Le facteur d'accroissement de la densité attendu lors de la compression devrait être égal, comme on l'a déjà mentionné auparavant, au carré du rapport entre le diamètre initial  $d_i$  du jet non comprimé et le diamètre final  $d_f$  du jet comprimé.

$$\frac{n_f}{n_i} = \left(\frac{d_i}{d_f}\right)^2 \quad (\text{I - 67})$$

Dans le cas de ces expériences, le diamètre de jet passe d'un diamètre initial de  $d_i = 5$  mm à un diamètre de  $d_f = 200$  mm lors de la compression, ce qui nous donne un rapport d'accroissement maximal d'approximativement 600. On voit que ce facteur est plus important que ce que l'on trouve expérimentalement, il nous manque donc un facteur 6 pour la densité du jet comprimé expérimentalement. En voyant ceci, on peut donc conclure qu'une partie des atomes ne semble pas participer au processus de compression, mais traverse le piège sans en être affectée. On peut cependant imaginer des mécanismes pour améliorer l'efficacité du piège et augmenter la densité du jet comprimé.

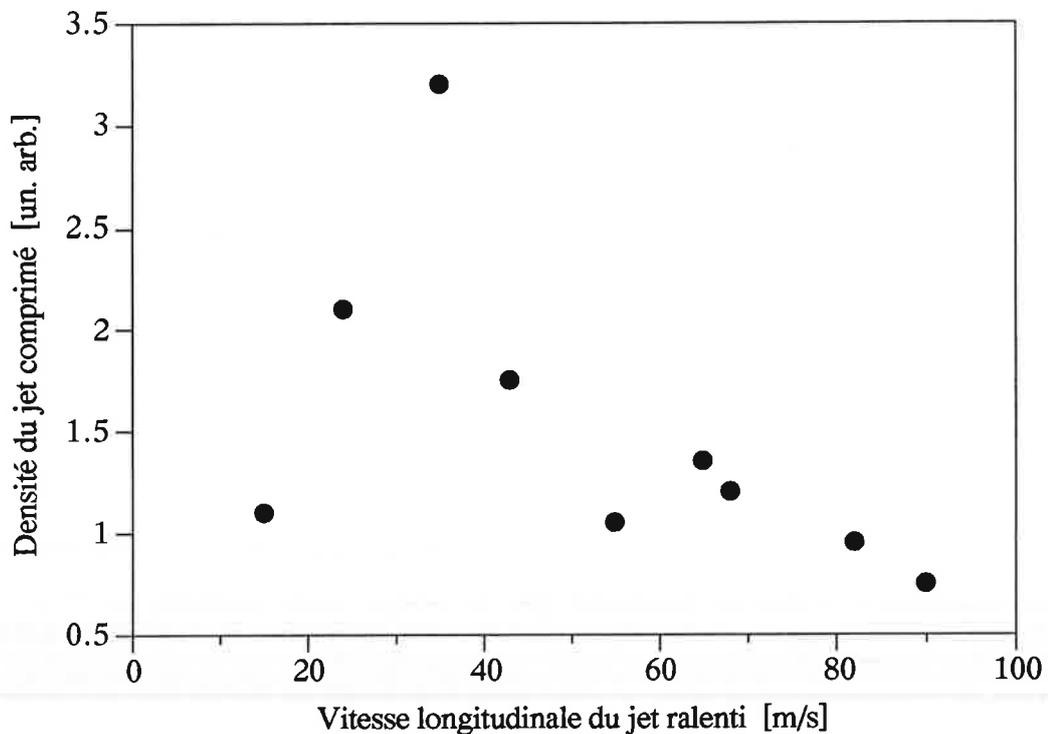


Figure I-37: Variation de la densité du jet comprimé en fonction de sa vitesse longitudinale

En faisant varier la vitesse longitudinale du jet ralenti, on observe un comportement de la densité du jet comprimé selon la courbe I-37. On voit qu'on obtient une densité maximale pour une vitesse longitudinale  $v_z = 35$  m/s. Ceci est plutôt en contradiction avec le résultat observé pour la densité du jet ralenti, qui présente un maximum à 160 m/s (voir figure I-35). Dans les expériences de piège à deux dimensions, on voit apparaître l'importance d'un autre paramètre, le temps que l'atome passe dans le piège. Si celui-ci est trop petit, le piège devient inefficace, ce qu'on observe pour des vitesses finales du jet ralenti supérieures à 35 m/s. Ce comportement démontre bien le caractère transitoire du piège magnéto-optique à deux dimensions.

### *β) Temps de compression du jet*

Dans le paragraphe précédent on a défini la distance de compression  $d_p$  en tant que distance parcourue par un atome dans le piège pour qu'il se trouve dans le faisceau comprimé. Au fait, on mesure la distance de compression à partir de l'entrée du piège jusqu'à l'endroit où le diamètre est réduit d'un facteur 20 à cause de la compression. Dans le cas d'un régime sur-amorti, un atome dans le piège suit une trajectoire en se rapprochant de l'axe selon une loi exponentielle en fonction du temps  $\exp(-t/\tau_c)$ . Un facteur de compression de 20 correspond à un facteur de  $e^3$ , ce qui correspond donc à un temps de  $\tau_{20} = 3 \tau_c$  pour atteindre cette compression du jet.

Le facteur  $\tau_c$  décrit plus haut est le temps caractéristique le plus court pour lequel un atome à trois niveaux atteint l'état stationnaire dans le piège pour un régime sur-amorti, ce qui est le cas pour notre gradient de champ magnétique utilisé. Ce temps caractéristique vaut pour nos expériences expérimentales:

$$\tau_c = \frac{2m}{\alpha} \approx 85 \mu\text{s} \quad (\text{I} - 68)$$

Dans cette formule,  $\alpha$  est le coefficient de friction défini par l'équation (I-29). Dans nos expériences nous ne mesurons pas ce temps caractéristique  $\tau_c$  mais le temps de compression  $\tau_{20}$  pour une compression du diamètre du jet d'un facteur 20, et qui vaut  $3\tau_c$ . Ce temps de compression doit donc, si notre piège fonctionne au mieux, être de l'ordre de 300  $\mu\text{s}$ .

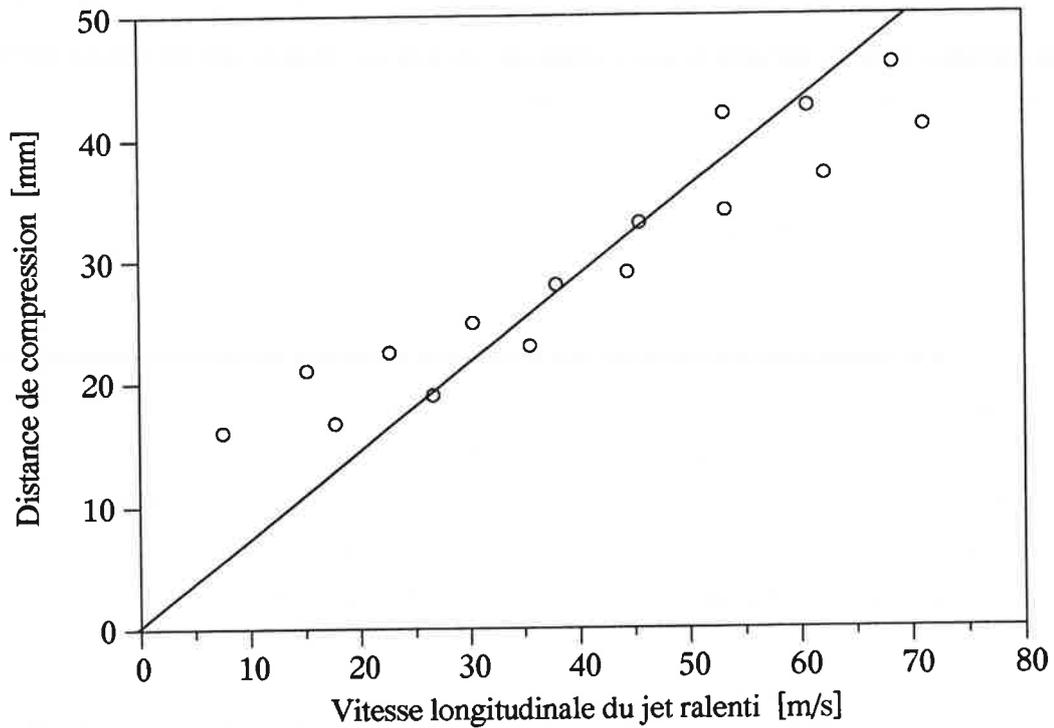


Figure I-38: Variation de la distance de compression en fonction de la vitesse longitudinale du jet ralenti.

Sur la figure I-38 on montre la variation de la distance de compression mesurée expérimentalement en fonction de la vitesse longitudinale du jet ralenti. On peut tracer une droite passant par l'origine à travers ces points expérimentaux, droite dont la pente donnera le temps de compression dans notre piège:

$$\tau_{20} = \frac{d_p}{v_z} \approx 720 \mu\text{s} \quad (\text{I} - 69)$$

Ce procédé n'a bien sûr que de la valeur si le temps de compression reste le même pour les différentes vitesses longitudinales du jet, mais en première approximation on peut affirmer que le temps de compression est le même. Les atomes les plus lents seront comprimés après des distances courtes, tandis que les plus rapides auront des distances de compression de plus en plus longues, jusqu'à sortir du piège, avant que la compression ne devienne effective.

On remarque que le temps de compression trouvé dans ces expériences est de l'ordre de 720  $\mu\text{s}$ , ce qui est nettement au-dessus du temps de compression optimum qui vaut environ 300  $\mu\text{s}$ . La compression est de ce fait limitée à des vitesses longitudinales du jet ralenti relativement faibles, au-delà d'une vitesse de 70 m/s les atomes du jet ralenti n'ont guère de chance d'atteindre le centre du piège et donc d'être comprimés.

### *γ) Analyse des résultats expérimentaux*

On remarque que pendant ces premières expériences de compression du jet ralenti quelques paramètres ne semblent pas encore être optimisés si on les compare à des calculs théoriques. Les mesures de densité atomique dans le piège montrent qu'en effet une grande partie des atomes ne semble pas être concernée par le processus de compression, et le temps de compression caractérisant notre piège est bien plus important que celui attendu, ce qui limite la compression du jet ralenti à des vitesses longitudinales relativement faibles.

Ces résultats révèlent bien le caractère transitoire du processus de compression dans un piège à deux dimensions. En effet, tous nos calculs des paramètres pour une compression idéale sont basés sur un atome à trois niveaux, donc un atome présentant une transition de  $J=0$  vers  $J'=1$ . Malheureusement notre atome de césium, qui a une transition plus complexe  $F=4$  vers  $F'=5$  ne se comporte pas comme un atome à trois niveaux. On va voir que pour être soumis à une force de rappel maximale l'atome doit se trouver dans son état stationnaire, c'est à dire dans le sous-niveau Zeeman d'énergie minimum. En d'autres termes, l'atome doit donc être orienté par rapport au champ magnétique local dans le piège pour être dans l'état stationnaire [YU 94], [DJE 95].

La force de piégeage s'exerçant sur l'atome dépend de l'état interne de celui-ci. Une description complète des processus de piégeage pour un atome présentant une transition complexe de  $F=4$  vers  $F'=5$  nécessite la prise en compte des cohérences entre les états internes et externes de l'atome. Ici on ne donnera qu'une explication plus simple qui décrit statiquement les forces de piégeage s'exerçant sur un atome dans un sous-niveau Zeeman  $m_F$  bien défini du niveau fondamental en un point donné du piège.

Deux facteurs modifient le processus de compression et rendent la force de piégeage dépendante du sous-niveau  $m_F$  dans lequel se trouve l'atome. Le premier résulte de la grande différence entre les coefficients de Clebsch-Gordan pour les transitions entre les sous-niveaux.

Ainsi pour un sous-niveaux fondamental  $m_F$  donné on assiste à une différence de probabilité d'absorption d'un photon dépendant si sa polarisation est  $\sigma^+$  ou  $\sigma^-$ . Le second facteur provient de la différence entre les fréquences de Larmor  $\Omega_L$  et  $\Omega'_L$  des niveaux  $F=4$  et  $F'=5$  qui induit une différence entre les décalages par rapport à la résonance en dépendance du sous-niveau fondamental de l'atome. Pour la transition de  $F=4$  vers  $F'=5$  du césium les fréquences de Larmor pour le niveau fondamental et excité valent:

$$\Omega_L = \frac{\mu_B}{\hbar} g_F = 2\pi \times 350 \text{ kHz/Gauss} \quad (\text{I - 70})$$

$$\Omega'_L = \frac{\mu_B}{\hbar} g'_F = 2\pi \times 560 \text{ kHz/Gauss}$$

Les décalages effectifs dépendent du sous-niveau hyperfin fondamental  $m_F$  et de la polarisation de l'onde lumineuse induisant la transition et s'écrivent de la manière suivante:

$$\delta_{m_F, m'_F = m_F \pm 1} = \delta_L + m_F (kv + g_F \omega_B z) - (m_F \pm 1) (kv + g'_F \omega_B z) \quad (\text{I-71})$$

où  $\omega_B$  est la pulsation Zeeman: 
$$\omega_B = \frac{\mu_B}{\hbar} \frac{\partial B}{\partial z} \quad (\text{I - 72})$$

Le système à plusieurs transitions  $V$  se ramène à plusieurs systèmes à trois niveaux, chaque système correspondant à un sous-niveau fondamental  $m_F$  donné. Ainsi la force stationnaire en fonction de la position et de la vitesse de l'atome pour un système à trois niveaux correspondant à un sous-niveau hyperfin fondamental  $m_F$  est donnée par l'expression:

$$F(m_F, x, v) = \frac{\hbar k \Gamma}{2} \{s_{m_F, m_F+1} - s_{m_F, m_F-1}\} \quad (\text{I - 73})$$

où  $s_{m_F, m_F \pm 1}$  sont les paramètres de saturation correspondants aux transitions du sous-niveau fondamental hyperfin  $m_F$  vers le sous-niveau hyperfin excité  $m'_F = m_F \pm 1$ . Ceux-ci s'écrivent en fonction des coefficients de Clebsch-Gordan  $C_{m_F}^{m'_F}$  des transitions de  $m_F$  vers  $m'_F = m_F \pm 1$  et sont donnés par l'expression:

$$S_{m_F, m_F \pm 1} = \frac{(C_{m_F}^{m_F \pm 1})^2 \frac{\Omega^2}{2}}{\delta_{m_F, m_F \pm 1}^2 + \frac{\Gamma^2}{4}} \quad (\text{I - 74})$$

Sur la figure I-39 on représente la force stationnaire donnée par l'expression (I-73) pour une vitesse nulle et pour le cas des différents sous-niveaux  $m_F$  fondamentaux en fonction du déplacement  $x$  par rapport à l'axe du piège. Toutes les forces à part celle pour le sous-niveau  $m_F=0$  présentent une forte asymétrie dans leurs comportements par rapport à l'origine. Un atome se trouvant à la distance de  $x=1\text{mm}$  du centre du piège tout en étant dans le sous-niveau fondamental  $m_F=-4$ , ce qui correspond à son état stationnaire, va subir une forte force attractive vers le centre du piège. Si au contraire l'atome se trouve à la même position tout en étant dans le sous-niveau  $m_F=+4$  il subit une faible force qui cette fois-ci est répulsive par rapport au centre du piège.

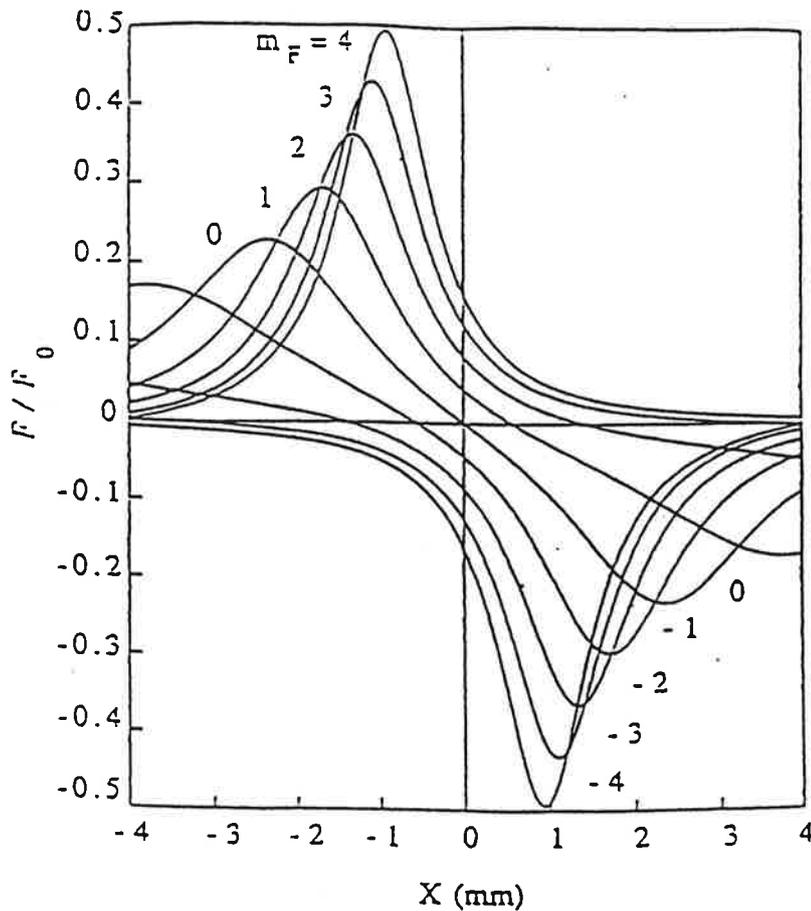


Figure I-39: Force stationnaire dans le piège pour différents sous-niveaux  $m_F$  en fonction du déplacement  $x$  par rapport au centre du piège, pour une vitesse nulle.

A l'aide de ces arguments, on voit que pour une population atomique initialement dans un mélange statistique à l'entrée du piège, la compression la plus efficace ne peut être obtenue que si tous les atomes sont pompés optiquement dans leurs états stationnaires. Dans un piège à deux dimensions ce temps de pompage optique entre différents sous-niveaux peut être important et être de l'ordre du temps de vol de l'atome à travers le piège. Il est donc clair que dans de telles conditions la compression optimale ne peut pas être atteinte dans notre piège. Pour améliorer l'efficacité de celui-ci, il semble nécessaire de préparer l'état interne des atomes avant leur entrée dans le piège. Ces expériences de piège feront le sujet de la partie qui suit.

## 2 - b - Pièges magnéto-optiques 2D améliorés

On a vu que pour rendre le processus de compression plus efficace, il faut essayer de préparer la population atomique du jet ralenti dans un état favorable qui est, au moins partiellement, orienté selon la direction du champ magnétique local du piège. Pour effectuer ceci, on réalise deux expériences utilisant des méthodes différentes pour la préparation de l'état interne initial des atomes. La première expérience est basée sur l'utilisation d'un pompage optique entre sous-niveaux Zeeman du niveau fondamental, tandis que la seconde expérience consiste à préorienter les atomes selon un champ magnétique avant l'entrée du piège, pour les orienter par suivi adiabatique sur la direction du champ magnétique local à l'intérieur du piège.

Ces deux méthodes vont être détaillées dans les parties suivantes.

### *α) Orientation de la population atomique par pompage optique*

Dans cette première expérience, on essaye de pomper optiquement l'atome dans le sous-niveau Zeeman fondamental qui correspond à l'énergie Zeeman la plus faible, donc à aligner son moment magnétique sur le champ magnétique local dans le piège.

En regardant la figure I-40 on voit que les transitions à partir des sous-niveaux décalés vers le haut en énergie par le champ magnétique sont bien plus hors résonance avec le laser de piégeage, qui est décalé vers le rouge de la transition atomique, que le sous-niveau Zeeman de plus basse énergie. Ceci implique que l'atome, une fois sur son sous-niveau de plus basse énergie cyclera longtemps sur celui-ci, tandis qu'étant sur un sous-niveau d'énergie maximale, il n'interagira pratiquement pas avec l'onde lumineuse et au cause de la dissymétrie des coefficients de Clebsch-Gordan le temps de pompage optique devient alors long. Pour

raccourcir ce temps de pompage entre sous-niveaux Zeeman il faut donc rajouter un autre laser qui est décalé vers le bleu de la transition  $F = 4 \rightarrow F' = 5$ .

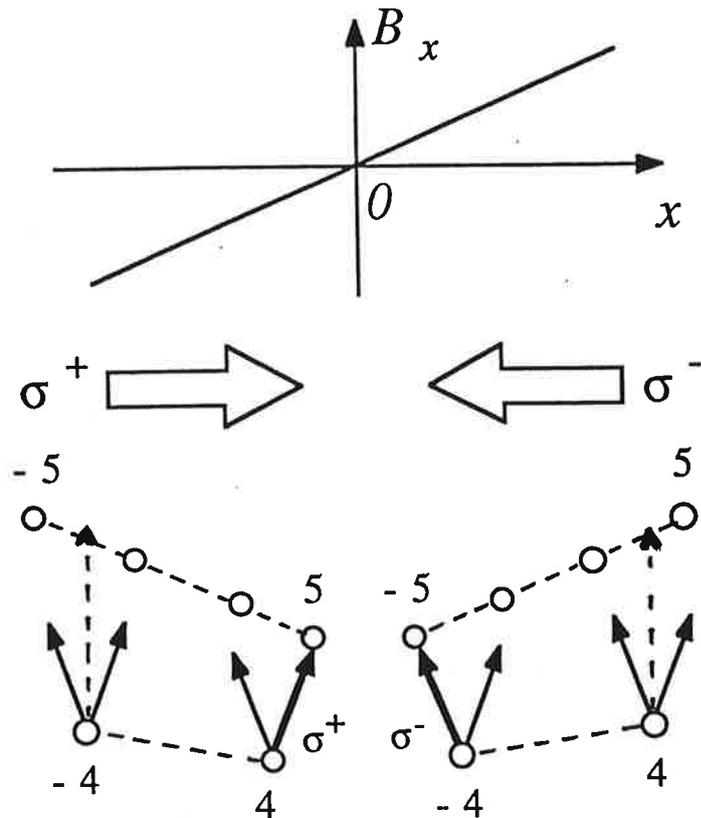
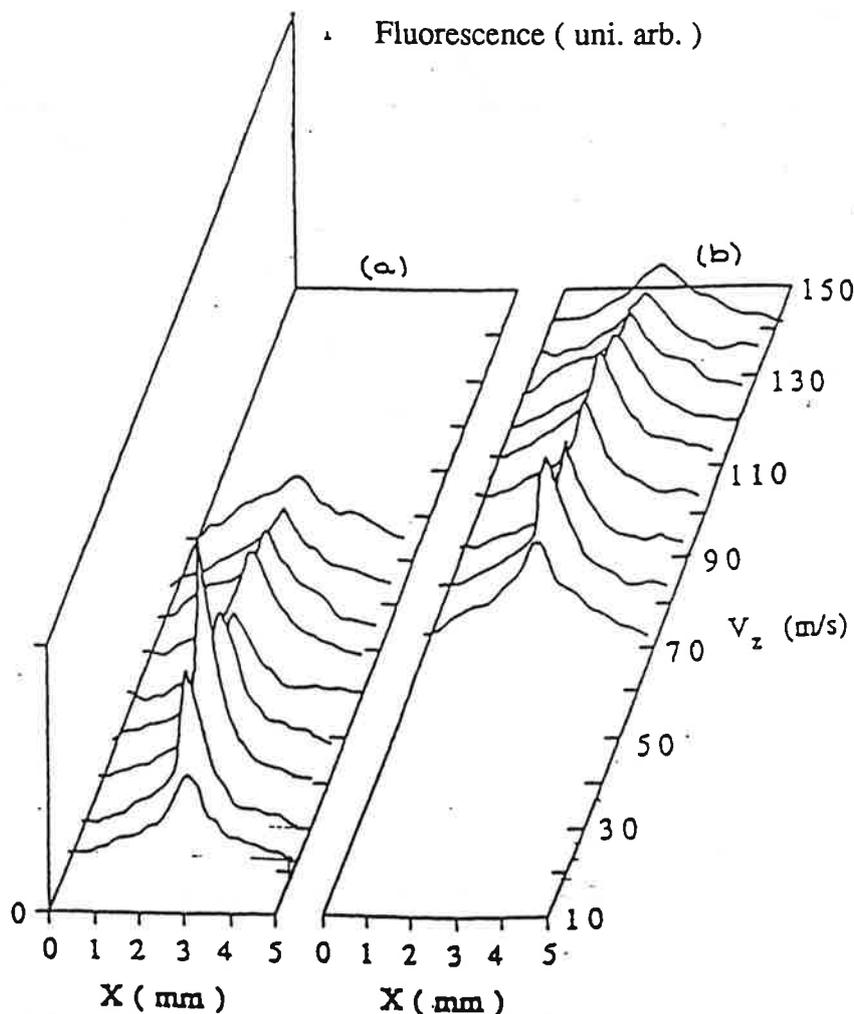


Figure I-40: Schéma indiquant la position des sous-niveaux de l'atome dans le piège et le rôle d'un repompeur Zeeman entre ces différents niveaux.

Dans notre expérience, au lieu de rajouter un autre laser ayant ce rôle de repompeur Zeeman, on utilise le faisceau du laser de ralentissement. Celui-ci n'est plus décalé largement hors de la résonance à la fin de sa rampe de balayage de façon à ne pas perturber le processus de piégeage, mais il est cette fois-ci, bien au contraire, faiblement décalé vers le bleu de la résonance d'à peu près  $+3.5 \Gamma$  pour jouer le rôle de repompeur Zeeman pendant le processus de piégeage. Ce laser conduit à un pompage optique plus rapide vers l'état stationnaire et on s'attend donc à une force de compression plus importante et des temps de compression plus courts.

L'effet de ce laser repompeur Zeeman est illustré par la figure I-41 qui montre les profils transverses de fluorescence du jet atomique comprimé en fonction de la vitesse longitudinale de celui-ci, et ceci avec et sans pompage optique entre les sous-niveaux du

fondamental. On voit que dans l'expérience utilisant le pompage optique, on obtient une efficacité maximum de la compression pour une vitesse longitudinale du jet ralenti aux alentours de 100 m/s et qu'on arrive à comprimer le jet pour des vitesses allant de 70 m/s à 170 m/s. Ceci indique que le temps de compression est devenu plus court, permettant de comprimer des jets plus rapides. L'inefficacité du piège à des vitesses plus faibles que 70 m/s s'explique par le fait que la diffusion transverse due au pompage optique devient de plus en plus importante à cause d'une augmentation des temps d'interaction.



*Figure I-41: Profils transverses du jet comprimé pour différentes vitesses longitudinales (a) sans et (b) avec pompage optique entre les sous-niveaux du fondamental.*

En traçant la distance de compression  $d_p$  définie auparavant en fonction de la vitesse longitudinale du jet ralenti et ceci pour le cas des expériences sans et avec pompage optique entre les sous-niveaux, on remarque que le temps de compression, donné par la pente des droites passant par les points expérimentaux, est beaucoup plus court dans le cas utilisant le pompage optique (voir figure I-42). En utilisant le pompage optique, on trouve un temps de

compression  $\tau_{20}$  qui devient à peu près de l'ordre de grandeur que le temps calculé auparavant pour un atome à trois niveaux:

$$\tau_{20} = 260 \mu\text{s} \approx 3 \tau_c \approx 300 \mu\text{s}$$

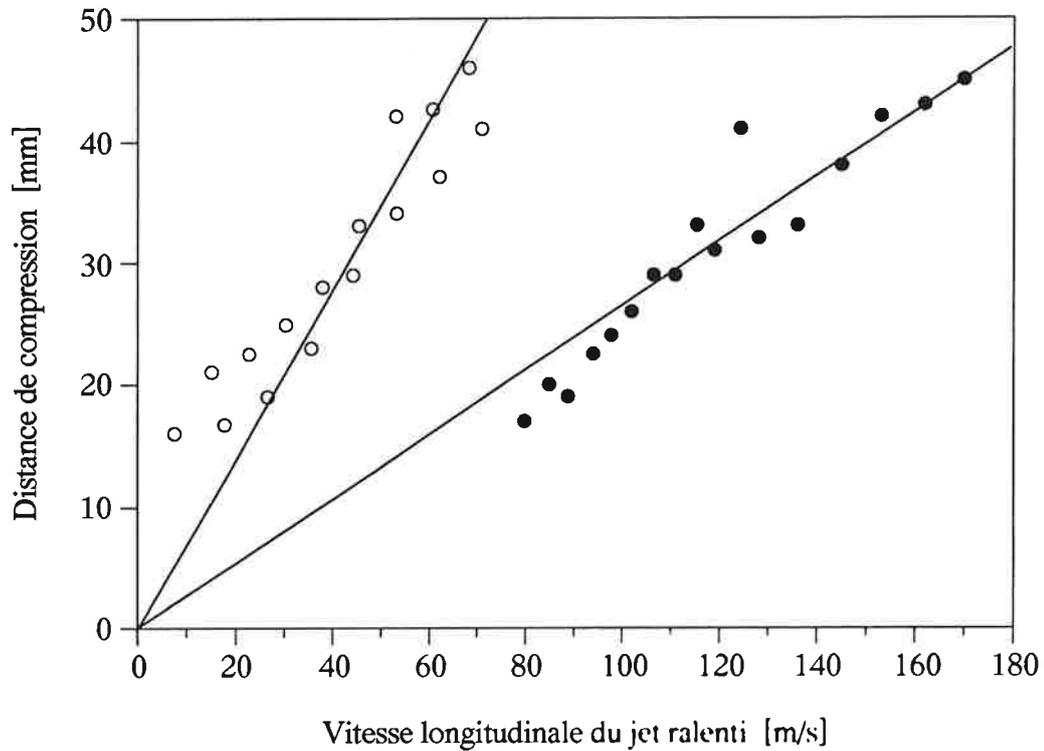


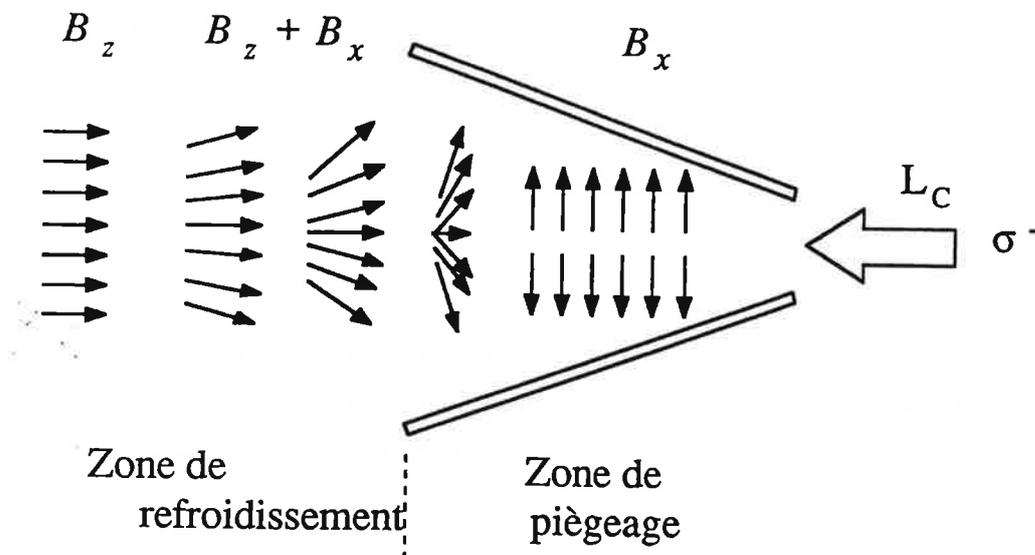
Figure I-42: Distance de compression en fonction de la vitesse longitudinale du jet ralenti (a) sans et (b) avec pompage optique entre les sous-niveaux fondamentaux.

En faisant des mesures de densité pour les jets comprimés en utilisant le pompage optique, on remarque que la densité du jet comprimé est sensiblement la même que celle obtenue sans pompage optique. La méthode pour préparer la population atomique avant le processus de piégeage basée sur l'utilisation d'un pompage optique entre sous-niveaux Zeeman, ne permet donc pas d'améliorer la densité du jet comprimé, mais réduit considérablement le temps de compression, permettant ainsi la compression de jets présentant des vitesses longitudinales jusqu'à 170 m/s.

*β) Orientation de la population atomique par suivi adiabatique des lignes de champs magnétiques*

Le but de cette expérience est de préparer les atomes de telle façon à ce que leurs moments magnétiques soient orientés suivant le champ magnétique local dans le piège. On essaye de mettre tout les atomes dans le sous-niveau fondamental de plus basse énergie, qui est le niveau  $m_F = -4$  en prenant l'axe de quantification selon la direction du champ magnétique local.

Pour cette expérience, on applique un petit champ magnétique longitudinal de l'ordre de 1 Gauss selon l'axe Oz du jet pendant le processus de ralentissement (voir figure I-43). En polarisant le laser de ralentissement  $\sigma^-$  ou  $\sigma^+$  on arrive à aligner les moments magnétiques des atomes pendant le processus de refroidissement selon l'axe Oz. Ainsi un atome se retrouvera dans un état  $m_F = -4$  ou  $m_F = +4$  selon que la polarisation du laser de ralentissement soit  $\sigma^-$  ou  $\sigma^+$ . Cette orientation est préservée à l'aide du champ magnétique longitudinal, en prenant soin de blinder le champ magnétique terrestre par du mu-métal dans la zone de ralentissement. Après chaque rampe de balayage, le laser de ralentissement est à nouveau décalé loin au bleu de la résonance atomique de manière à minimiser son influence sur le processus de piégeage.



*Figure I-43: Schéma du principe de l'orientation atomique par suivi adiabatique de la direction du champ magnétique.*

Les atomes préparés de cette manière pénètrent ensuite dans le zone du piège magnéto-optique, où règne un champ magnétique selon des directions différentes. L'orientation de la population atomique est à ce moment transférée dans la direction transverse du gradient de champ magnétique du piège en suivant adiabatiquement les lignes de champ. Pour que ce transfert se fasse effectivement, il faut réaliser la condition de passage adiabatique pour les champs magnétiques et qui est [ABR 61]:

$$f_L \gg \frac{1}{\tau} \quad (\text{I - 75})$$

Dans cette expression  $f_L$  est la fréquence de précession de Larmor pour l'atome se trouvant dans le champ magnétique longitudinal et  $\tau$  le temps de transit pour l'atome de la zone dominée par le champ magnétique longitudinal à celle dominée par le gradient de champ transverse. Dans le cas de nos expériences où  $v_z = 35$  m/s et la distance de transition est à peu près de 1 cm, on trouve que le champ magnétique longitudinal doit être de l'ordre de quelques milliGauss. La condition de transfert adiabatique est donc toujours garantie dans nos expériences.

En regardant les profils de fluorescence transverses du jet comprimé pour une vitesse longitudinale de 35 m/s à la sortie du piège (voir figure I-44), on remarque une nette différence entre le fait de polariser le laser de ralentissement selon  $\sigma^+$  ou  $\sigma^-$ . Quand le laser est polarisé  $\sigma^-$ , les atomes sont préparés dans leur état stationnaire et sont piégés efficacement, tandis que pour une polarisation  $\sigma^+$  du laser, l'efficacité du piège est réduite par le fait qu'il faut pomper optiquement les atomes dans leur état stationnaire avant de les piéger.

Les mesures de densité du jet comprimé en utilisant ce mécanisme d'orientation nous donnent des densités à peu près trois fois plus importantes (pour une polarisation  $\sigma^-$  du laser) que dans les expériences précédentes. Le facteur de compression ainsi obtenu est donc de l'ordre de 300 et commence à se rapprocher du facteur optimum espéré qui vaut 600.

Remarque:

L'orientation atomique selon le champ magnétique transverse peut être partiellement détruite par la présence de champs parasites si ceux-ci sont du même ordre de grandeur. Malheureusement dans notre piège magnéto-optique on assiste à la présence d'un tel

champ longitudinal, qui est créé par l'entrée du piège reliant les barres créants le gradient de champ. On soupçonne que c'est ce fait qui empêche une orientation parfaite de la population atomique et qui donc peut causer une diminution du facteur de compression de moitié par rapport à l'optimum espéré.

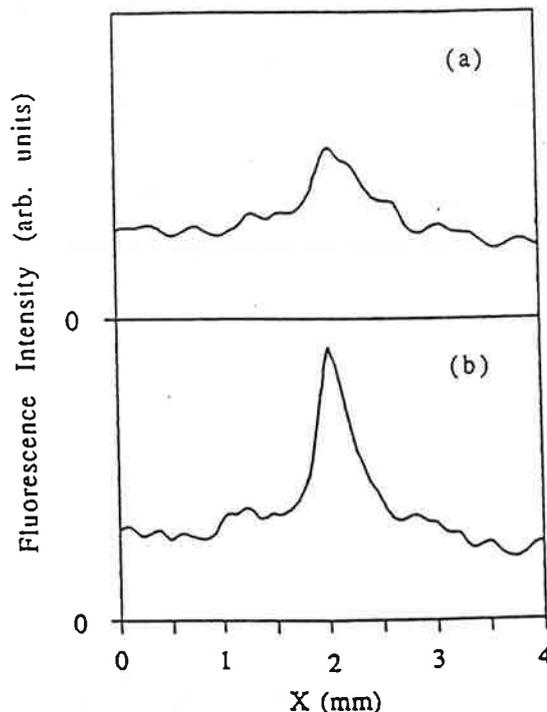


Figure I-44: Profils de fluorescence transverses du jet comprimé pour une vitesse longitudinale de 35 m/s et différentes polarisations du laser de ralentissement: (a)  $\sigma^+$ , (b)  $\sigma$ .

#### *$\gamma$ Interprétation à l'aide de simulations Monte-Carlo*

Ces résultats expérimentaux et les considérations théoriques fort simples tentant d'expliquer les phénomènes observés, ont motivés une étude théorique plus détaillée du processus de piégeage à l'aide d'une simulation Monte-Carlo des trajectoires des atomes dans le piège [DJE 95]. Le principe de cette simulation est de tirer au hasard les instants d'absorption et d'émission pour un atome se trouvant dans le piège. Ainsi, un atome au départ sur un sous-niveau fondamental quelconque absorbe un photon à un instant aléatoire en effectuant une transition vers un sous-niveau excité choisi par un tirage au sort tenant compte des différents coefficients de saturation associés aux différents lasers. En conséquence la vitesse de l'atome change en fonction de la polarisation et la direction du photon absorbé. Cet atome réémet un photon par émission spontanée après un temps aléatoire et ceci vers un sous-niveau fondamental tiré au sort en considérant les coefficients de Clebsch-Gordan. A la suite de ce

processus, la vitesse de l'atome change à nouveau, et tout le processus recommence depuis le début.

Les premiers calculs ont été effectués pour un atome présentant une transition de  $J=0$  vers  $J'=1$  qui est placé dans un piège magnéto-optique à une dimension possédant un gradient constant selon  $z$ . Le résultat d'un tel calcul pour les trajectoires atomiques est montré sur la figure I-45. Sur cette figure, on voit que les atomes suivent, pour le cas de paramètres utilisés dans les expériences, des trajectoires sous-amorties et oscillent autour du centre du piège avant d'être efficacement comprimés. D'autre part, comme la longueur du piège est de 40 mm, on voit que la plage de capture de ce piège est inférieure à 5 mm.

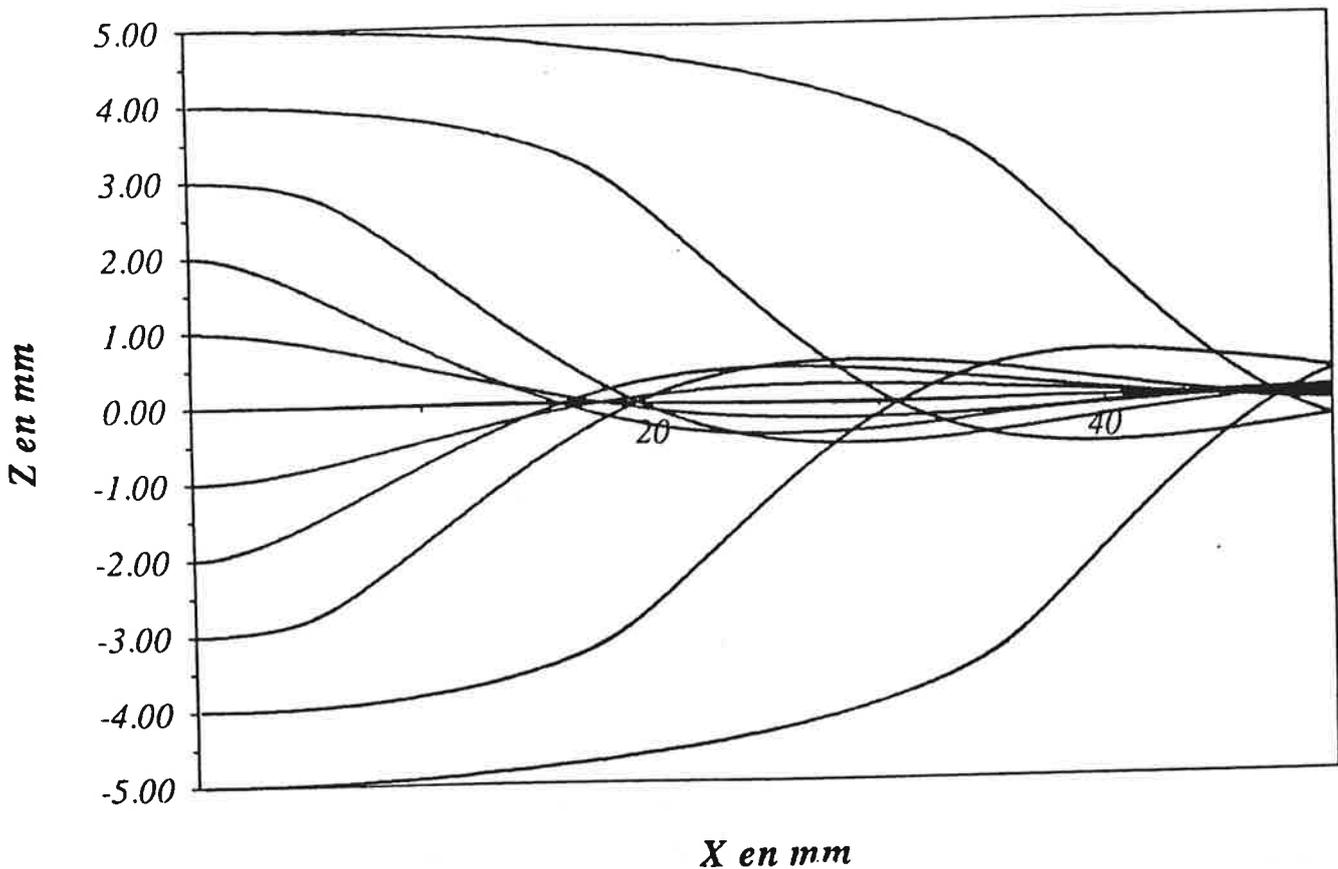


Figure I-45: Simulation numérique du piège magnéto-optique à une dimension pour un système  $J=0$  vers  $J'=1$ , à un gradient de  $40 \text{ G/cm}$ ,  $s_0=3$ , un décalage de  $-2\Gamma$ , et une vitesse longitudinale de  $35 \text{ m/s}$ .

Le même cas de figure a été étudié pour un atome possédant une transition plus complexe de  $F=4$  vers  $F=5$ , qui est celle du césium. Sur le tracé des trajectoires montré sur la figure I-46, on voit que le régime change, en augmentant le nombre de sous-niveaux, d'un

régime sous-amorti vers un régime sur-amorti, ce qui représente un meilleur fonctionnement du piège. La plage de capture quand à elle ne semble pas être modifiée.

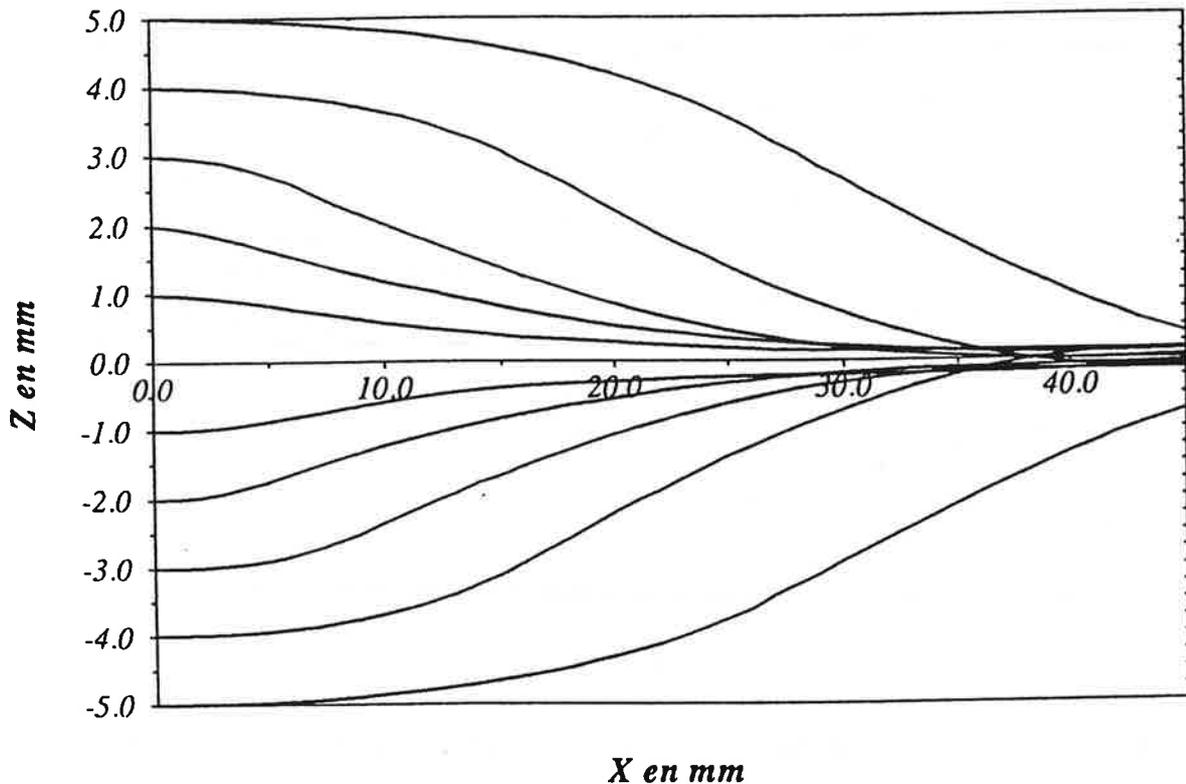


Figure I-46: Moyenne sur 5 simulations Monte-Carlo de trajectoires atomiques dans un piège magnéto-optique à une dimension, pour un gradient de champ de 40 G/cm,  $s_0=3$ ,  $\delta=-2\Gamma$ ,  $v=35$  m/s, et pour un sous-niveau initial  $m_F=-4$ .

L'étape suivante fut de mettre notre atome de césium dans un piège magnéto-optique à une dimension ayant un gradient de champ magnétique non constant selon le jet atomique. Ceci représente donc une simulation réaliste de notre piège à une dimension. Sur la figure I-47, qui décrit les trajectoires atomiques dans ce cas, on remarque que la compression est bien plus efficace qu'auparavant. On arrive ainsi à obtenir simultanément une large plage de capture, qui diminue en augmentant le gradient, tout en ayant une compression relativement forte sur un faisceau de petite taille, ce qui n'est le cas que pour de forts gradients.

En regardant de plus près les trajectoires des atomes en fonction du sous-niveaux fondamental sur lequel il se trouvent à l'entrée du piège, on remarque qu'effectivement les atomes préorientés sur le niveau  $m_F=-4$  sont bien plus efficacement piégés que ceux sur  $m_F=4$ . Sur la figure I-48, on remarque, en regardant les trajectoires dans ces deux cas, qu'il s'avère nécessaire de préorienter les atomes avant leur entrée dans le piège pour augmenter l'efficacité du piège, comme on l'observe au cours de nos expériences.

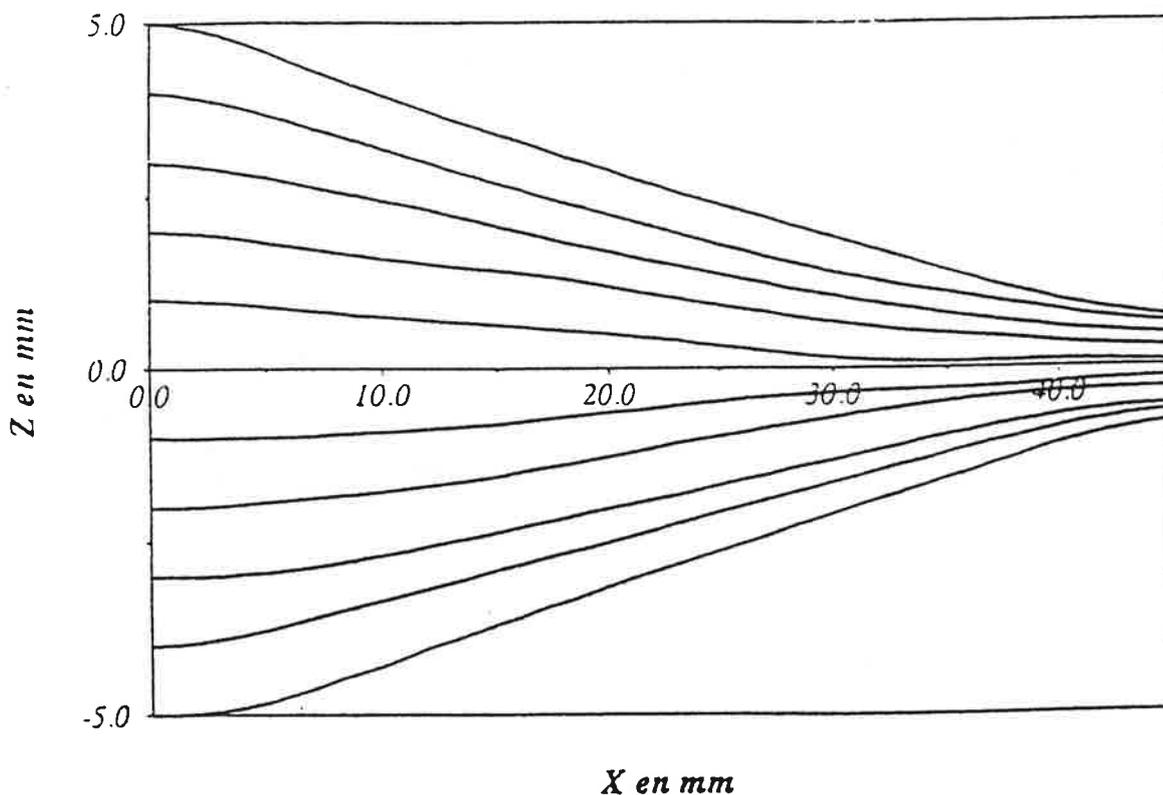


Figure I-47: Moyenne sur 5 simulations de trajectoires dans un piège magnéto-optique à une dimension pour  $\delta=-2\Gamma$ ,  $s_0=3$ , gradient de champ magnétique variant de 15 G/cm à l'entrée jusqu'à 40 G/cm pour  $z=40$  mm,  $v=35$  m/s et  $m_F=-4$ .

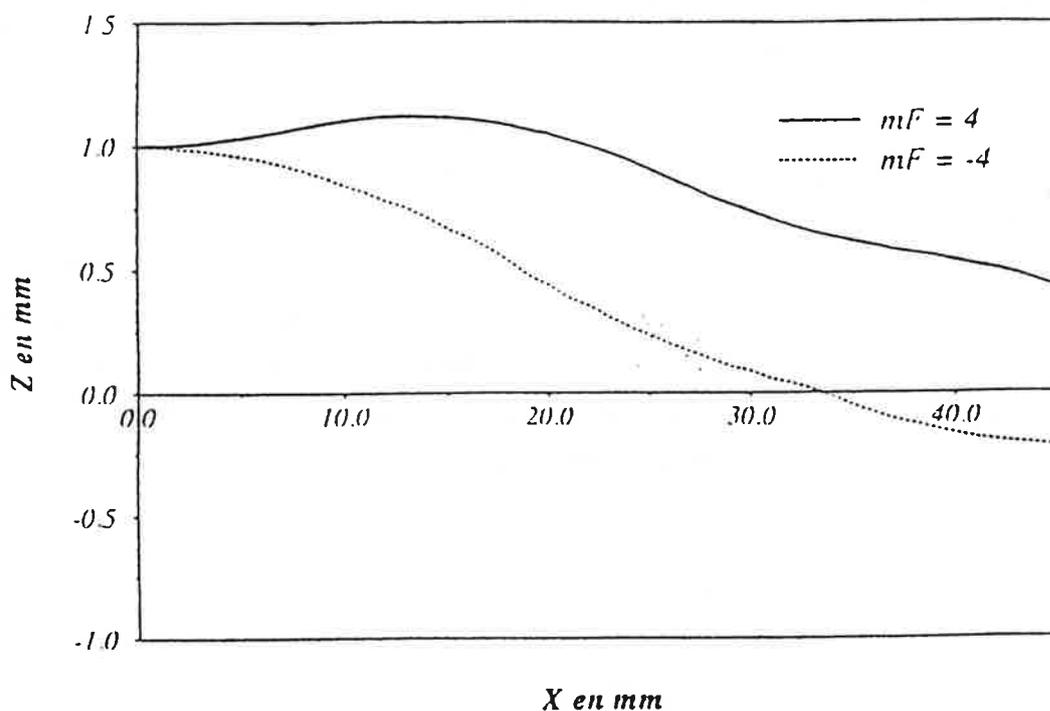


Figure I-48: Simulation de trajectoire pour  $\delta=-3.5\Gamma$ ,  $s_0=3$ ,  $v=35$  m/s, et  $m_F=-4$  (trait plein), et  $m_F=4$  (tirets).

En passant d'une dimension à deux dimensions, on remarque à l'aide de la figure I-49, que l'efficacité du piège augmente visiblement. La plage de capture passe au-delà de 7.5 mm, pour laquelle on obtient un faisceau comprimé d'à peu près 300  $\mu\text{m}$  de diamètre. Un piège à deux dimensions semble donc bien plus efficace qu'à une dimension.

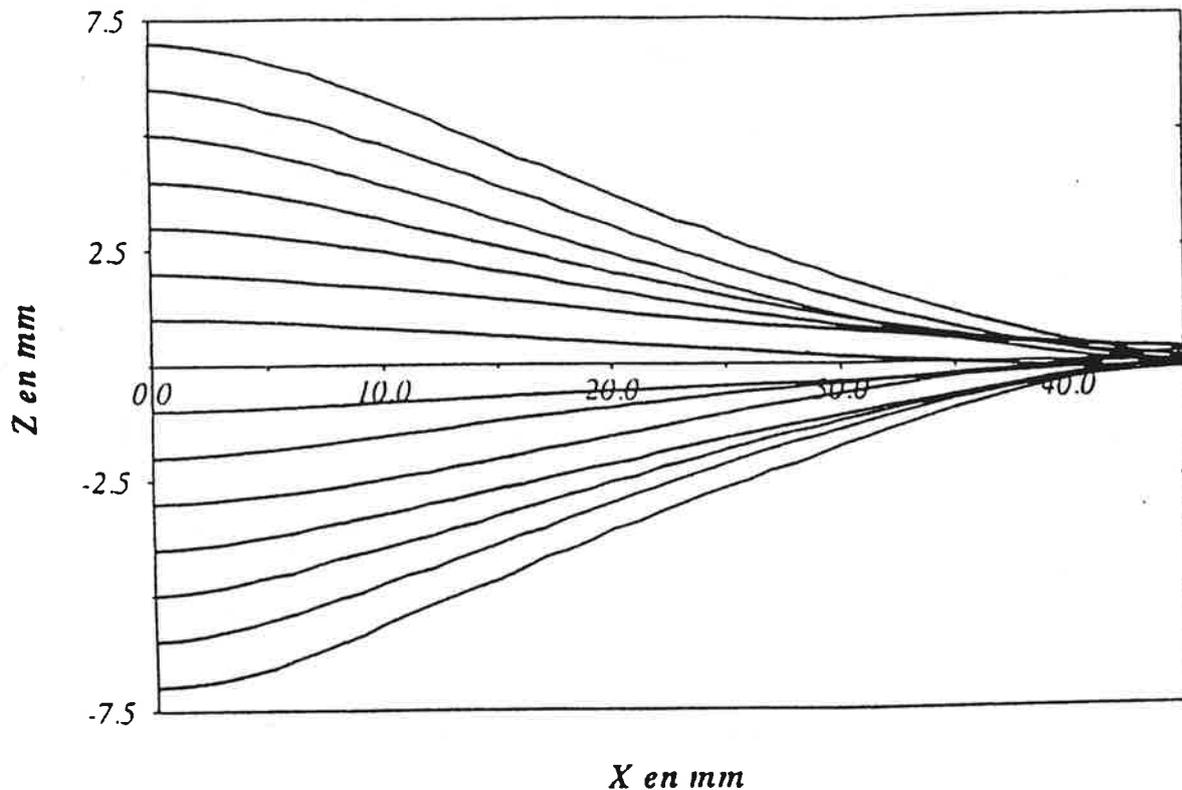


Figure I-49: Simulation Monte-Carlo d'un piège magnéto-optique à deux dimensions pour  $\delta=-2\Gamma$ ,  $s_0=3$ ,  $v=35$  m/s, gradient variant selon  $z$  et  $m_F=-4$ .

En examinant cette fois-ci la différence de comportement du piège 2D en fonction du sous-niveau fondamental initial de l'atome, on remarque que la différence entre un atome préorienté sur  $m_F=-4$  et un atome sur  $m_F=4$  est moins nette qu'à une dimension (voir figure I-50). L'effet de préorientation n'est observable que pour des coefficients de saturation de l'ordre de 1, tandis que pour  $s=3$ , ce qui est le cas de nos expériences, aucun effet n'est observable. Ce fait relativement surprenant, en contradiction avec l'expérience, peut être expliqué à l'aide de deux arguments: D'abord, il faut remarquer que cette simulation n'est en fait que valable pour le cas de faibles intensités laser ( $s<1$ ), ce qui n'est pas le cas de nos expériences. Deuxièmement, dans notre piège les lasers ne forment une zone de piège à deux dimensions que sur une zone de 5 mm de diamètre, vu la taille de ceux-ci. Comme on vient de le voir, la plage de capture donne des zones d'à peu près 10 mm de largeurs, pour le cas d'une dimension. Sur les deux bras du piège magnéto-optique, on forme donc des pièges à une dimension sur la zone voisine à la zone de recouvrement des faisceaux lasers, pièges qui

alimentent le centre du piège 2D s'ils sont efficaces. Comme dans ces zones la compression à une dimension est relativement sensible au sous-niveau fondamental peuplé, on peut augmenter son efficacité en préorientant les atomes en les mettant sur leur sous-niveau fondamental  $m_F = -4$ . Cette étude des processus à l'intérieur d'un piège magnéto-optique à deux dimensions à l'aide d'une simulation Monte-Carlo, montre donc qu'une préorientation des atomes est nécessaire pour avoir une compression efficace.

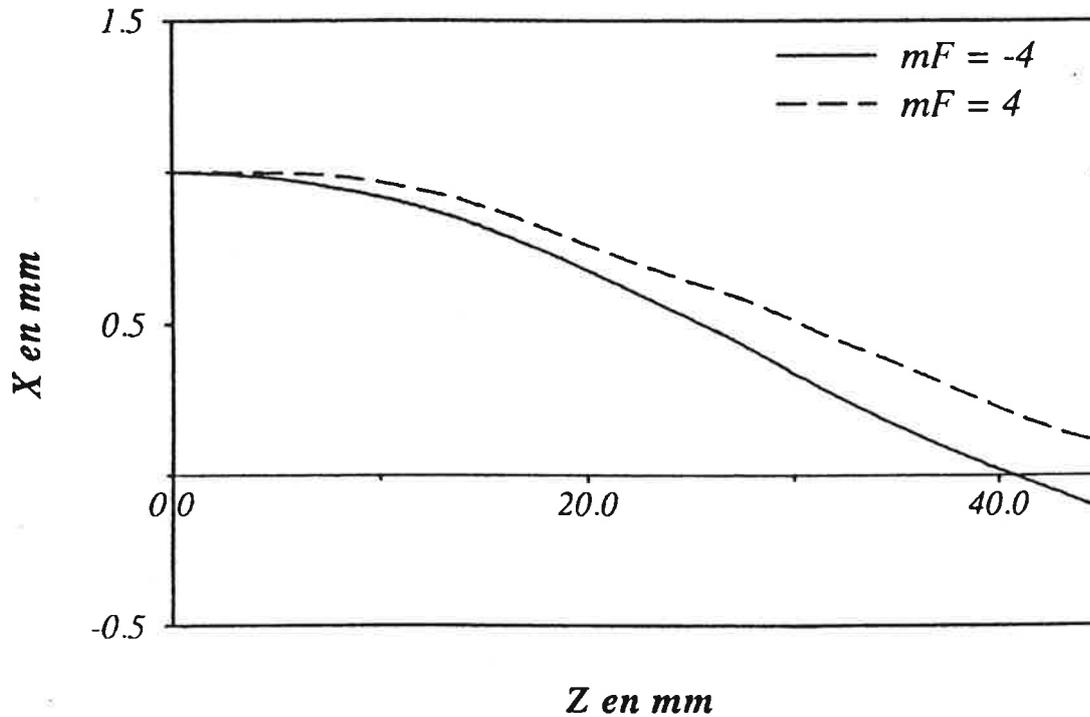


Figure I-50: Simulation de trajectoires atomiques dans un piège 2D pour  $s_0=1.5$ ,  $\delta=-2\Gamma$ , et  $v=35$  m/s.

### I - 5 - 3 - Filamentation dans un piège 2D

Au cours de plusieurs de nos expériences de compression du jet ralenti à l'aide du piège magnéto-optique à deux dimensions on observe que le processus de compression et le jet comprimé en résultant ne se trouve pas exactement sur l'axe du piège, donc pas tout à fait sur l'axe de champ magnétique nul. Le même genre de phénomène fut également déjà observé et étudié pour le cas d'un piège magnéto-optique à trois dimensions [STE 92], [GRI 92]. Ainsi le piège magnéto-optique se forme à un endroit différent de  $z=0$  où le champ magnétique est non nul s'il existe une différence en intensité entre deux faisceaux lasers se propageants en contresens.

Examinons le cas de notre piège magnéto-optique à deux dimensions. Si tous les faisceaux piège ont la polarisation circulaire correcte et des intensités identiques, la force de piégeage va toujours confiner les atomes vers le zéro de champ magnétique. Si on ajoute un petit champ magnétique perturbateur au dispositif, le piège va tout simplement se déplacer pour se former autour du point de champ nul. Considérons une paire de faisceaux ayant différentes intensités  $I_+$  et  $I_-$ . On peut définir un paramètre  $w$  qui caractérise le degré de différence d'intensité sur les deux faisceaux lasers [STE 92]:

$$w = \frac{I_+ - I_-}{I_+ + I_-} \quad (\text{I - 76})$$

$$\begin{aligned} \Rightarrow I_+ &= (1 + w) \frac{I_+ + I_-}{2} \\ I_- &= (1 - w) \frac{I_+ + I_-}{2} \end{aligned}$$

Écrivons la force qui règne dans le piège donnée par la théorie Doppler:

$$F = \frac{\hbar k \Gamma}{2} \left[ \frac{\frac{I_+}{I_{\text{sat}}}}{\frac{\delta_-^2}{\Gamma^2} + \frac{1}{4}} - \frac{\frac{I_-}{I_{\text{sat}}}}{\frac{\delta_+^2}{\Gamma^2} + \frac{1}{4}} \right] - \frac{\hbar k \Gamma}{2} \frac{(I_+ - I_-)}{\frac{\delta_-^2}{\Gamma^2} + \frac{1}{4}} \quad (\text{I - 77})$$

Le premier terme de cette expression est la force Doppler de piégeage pour deux faisceaux de même intensité, tandis que le deuxième terme provient de la différence d'intensité des deux faisceaux. Essayons de réécrire cette force totale sous une autre forme. On néglige pour cela toute dépendance en position et en vitesse de la force de déséquilibre ce qui équivaut à considérer  $\delta_-^2 = \delta_+^2 = \delta^2$ . En remplaçant l'expression de la force Doppler du premier terme par la formule I-28, on trouve pour la force totale dans le piège:

$$F = -\alpha v - \kappa z - \frac{\hbar k \Gamma}{2} \frac{(I_+ - I_-)}{\frac{\delta^2}{\Gamma^2} + \frac{1}{4}} \quad (\text{I - 78})$$

En utilisant la forme suivante pour la force de déséquilibre:

$$F_{\text{dés}} = -\frac{\hbar k \Gamma}{2} \frac{\frac{\Omega^2}{2}}{\delta^2 + \frac{\Gamma^2}{4}} w \quad (\text{I - 79})$$

et en remplaçant  $k v$  par:  $k v = \frac{\mu_B B}{\hbar}$  on trouve l'expression suivante pour la force Doppler (à une dimension) dans un piège déséquilibré:

$$F = -\alpha \frac{\mu_B}{\hbar k} B - \alpha \frac{\mu_B}{\hbar k} \frac{\partial B}{\partial z} z - \frac{\hbar k \Gamma}{2} \frac{\frac{\Omega^2}{2}}{\delta^2 + \frac{\Gamma^2}{4}} w \quad (\text{I - 80})$$

En résolvant l'équation pour laquelle cette force s'annule, on trouve que le piège va se former à un endroit  $z \neq 0$  où le champ magnétique est non nul. Ce champ et cette position sont donnés par:

$$\begin{aligned} B &= \frac{\hbar \Gamma}{\mu_B} \frac{\delta^2 + \Gamma^2/4}{2\delta\Gamma} w \\ z &= \frac{\hbar \Gamma}{\mu_B} \frac{\delta^2 + \Gamma^2/4}{\partial B / \partial z} w \end{aligned} \quad (\text{I - 81})$$

Dans notre piège on utilise des faisceaux lasers qui font un aller-retour sur chaque bras du piège. Il est clair que la rétro-réflexion sera moins intense que l'aller, et ceci peut être une cause pour le déséquilibre remarqué. On estime la perte en intensité de la rétro-réflexion causée par le double passage à travers un hublot de l'enceinte à vide et une lame  $\lambda/4$  et par la réflexion sur un miroir à peu près 10% au maximum. Dans ce facteur de pertes, on peut aussi inclure les pertes en intensité des faisceaux lasers qui sont dues à la diffusion sur le dispositif utilisé pour créer le gradient de champ magnétique. Un tel déséquilibre conduit à ce que le piège se forme au point où le champ magnétique vaut 200 milliGauss. Ceci correspond à un décalage

en position  $r = \sqrt{x^2 + y^2}$  de  $200 \mu\text{m}$  à l'entrée et de  $75 \mu\text{m}$  à la sortie du piège. Sur la figure I-51, on a tracé la trajectoire du centre du piège pour le cas de notre piège 2D pour différents déséquilibres en intensité.

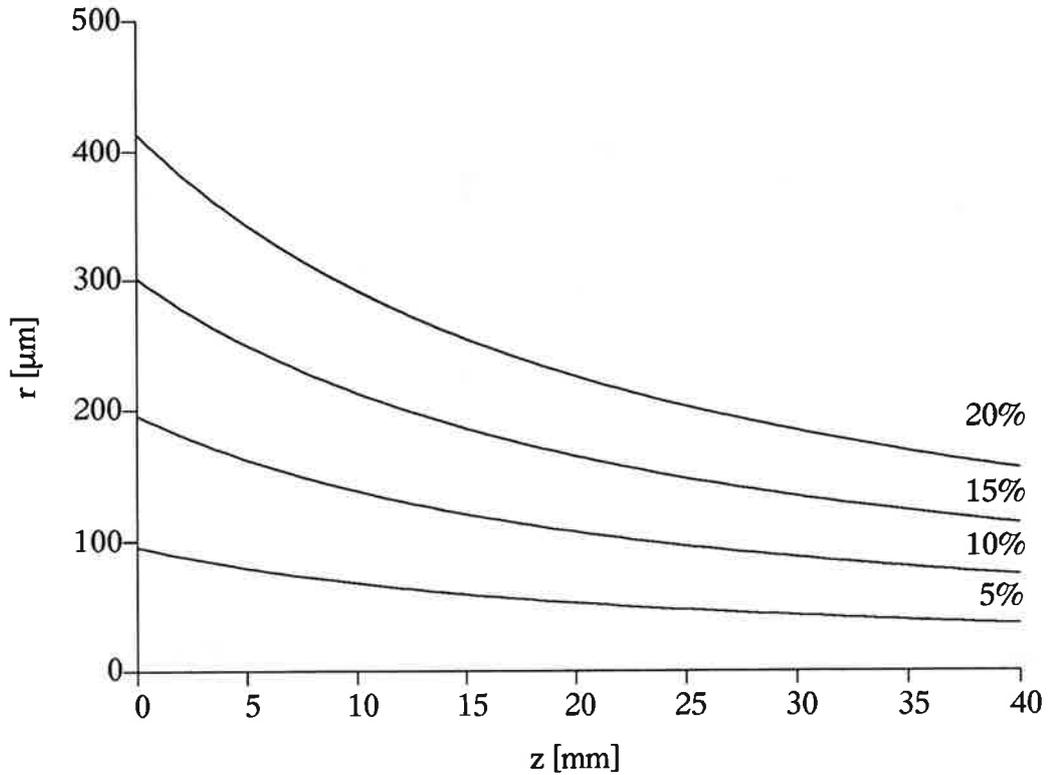


Figure I-51: Trajectoire du centre du piège pour différents déséquilibres en intensité des faisceaux aller-retour.

Un tel déséquilibre en intensité des faisceaux de piégeage peut être accentué ou alors en partie compensé par un petit désalignement d'un ou de plusieurs des faisceaux pièges. Examinons l'effet d'un désalignement d'un des faisceaux selon un angle  $\alpha$ , comme c'est indiqué sur la figure I-46. Les intensités des quatre faisceaux du piège sont considérées comme identiques pour mieux distinguer l'effet résultant. En effectuant un calcul rapide tout à fait similaire à celui effectué auparavant on trouve que pour la configuration de la figure I-52, le centre du piège va se déplacer vers l'endroit se trouvant à:

$$x = -C \frac{1 - \cos \alpha}{1 + \cos \alpha} \quad (\text{I - 82})$$

$$y = C \frac{\sin \alpha}{2 + \sin \alpha}$$

avec:

$$C = \frac{\hbar\Gamma}{\mu_B \delta B / \delta x} \left( \delta^2 + \frac{\Gamma^2}{4} \right) / 2\delta\Gamma$$

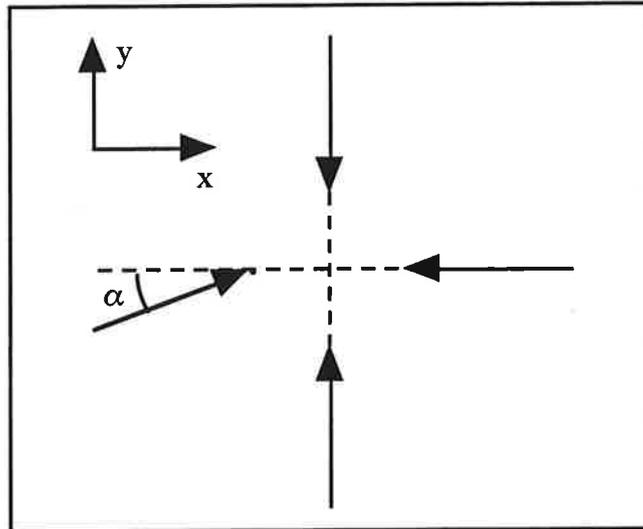


Figure I-52: Schéma montrant la disposition des faisceaux lasers présentant un désalignement d'un angle  $\alpha$ .

Sur la figure I-53 on a indiqué l'endroit vers lequel se dirige le centre du piège en fonction du désalignement d'un des quatre faisceaux du piège. Cet endroit a été calculé pour une valeur du gradient de champ magnétique de 15 Gauss/cm et correspond donc à l'entrée du piège. On voit bien qu'à l'aide d'un tel désalignement de faisceau on peut accentuer ou diminuer l'effet d'un déséquilibre en intensité des faisceaux.

Les observations d'un jet se comprimant à un endroit différent que le centre du piège magnéto-optique (voir figure I-54) peuvent donc s'expliquer à l'aide d'un bilan des forces Doppler dans celui-ci par des déséquilibres en intensité des différents faisceaux et par de petits désalignements de ceux-ci. La compression peut cependant être forcée à s'effectuer au centre du piège, en désalignant convenablement les quatre faisceaux lasers formant le piège.

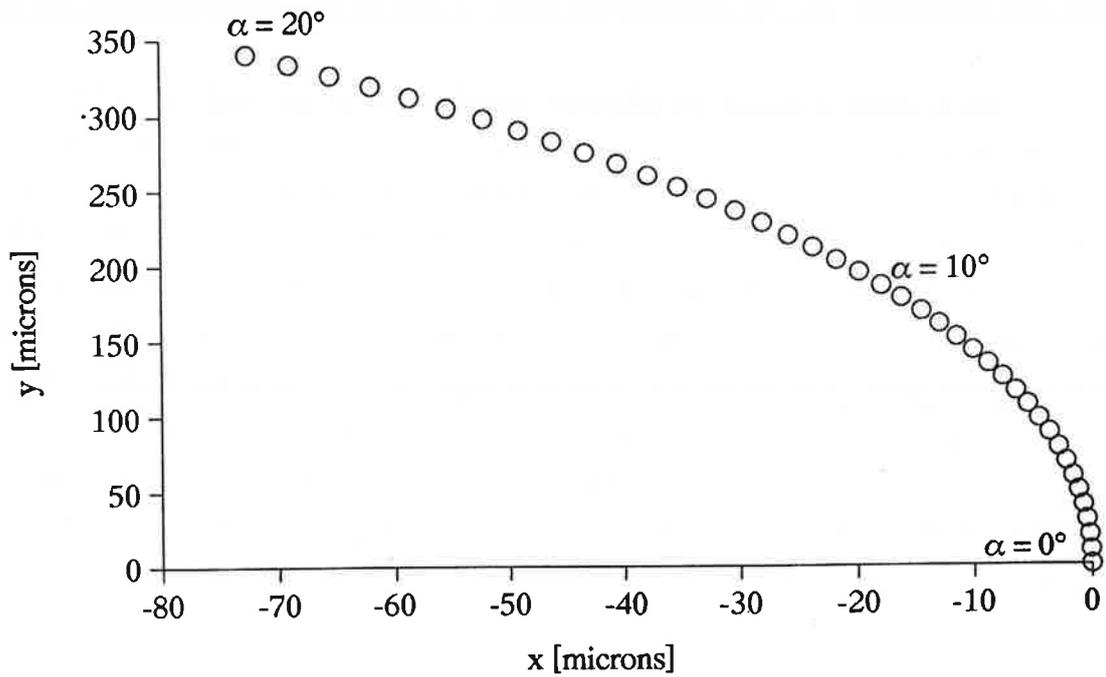


Figure I-53: Endroit vers lequel se déplace le centre du piège magnéto-optique 2D pour un gradient de 15 Gauss/cm en fonction d'un désalignement d'un des faisceaux selon un angle  $\alpha$ .

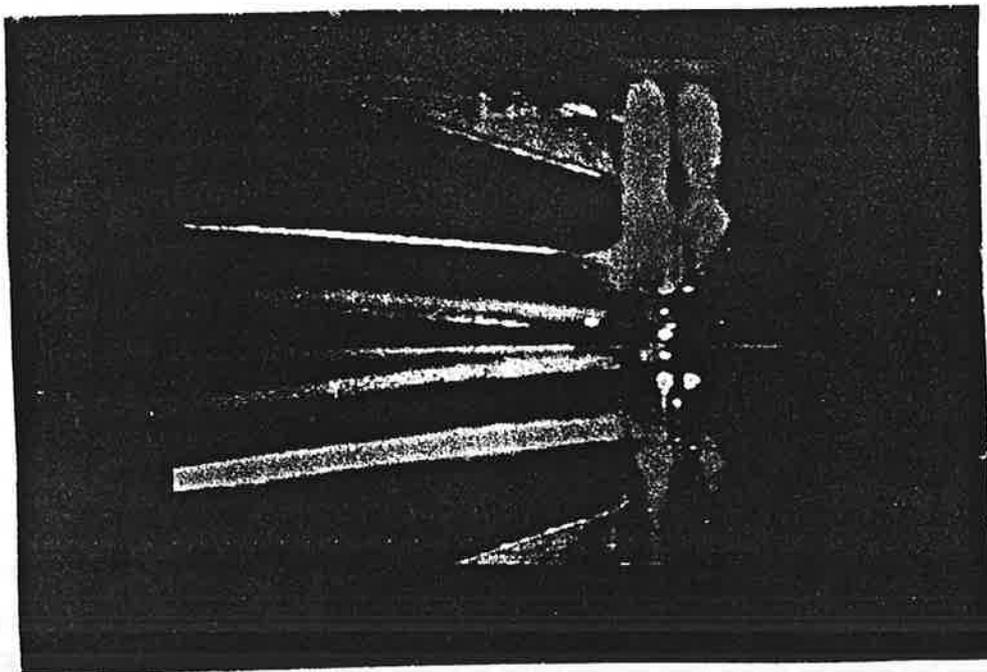


Figure I-54: Image d'un piège magnéto-optique à deux dimensions où la compression ne s'effectue pas au centre de celui-ci.

## I - 6 - Conclusion

On a réussi à mettre en place un dispositif de piège magnéto-optique à deux dimensions, servant à compresser selon ses dimensions transversales, un jet de césium ralenti par laser. Les premières expériences de piège donnent une compression d'un jet ralenti d'un diamètre de 5mm à 200  $\mu\text{m}$ , en nous livrant un gain en densité d'un facteur 100. Ces expériences préliminaires de compression livrent leurs meilleurs résultats pour des jets ralentis autour d'une vitesse de 35 m/s. La densité obtenue semble indiquer qu'une partie des atomes dans le piège ne participent pas au processus de compression. De simples modèles théoriques expliquent ce fait par une force agissant sur les atomes qui dépend de leur état interne et peut en dépendance de celui-ci être une force de répulsion au lieu d'une force de rappel. Il s'agit donc de mettre les atomes dans leur état interne de telle façon à ce qu'ils voient une force de rappel et soient piégés efficacement.

Dans le but de vérifier ces hypothèses, on a entrepris deux expériences ayant pour but d'améliorer l'efficacité du piège en jouant sur l'état interne des atomes avant leur entrée dans le piège. La première utilise un pompage optique afin de mettre les atomes dans leur sous-niveau Zeeman de plus basse énergie, ce qui correspond à leur état stationnaire. En utilisant dans ce but le laser de refroidissement, on a réussi à compresser des jets ayant des vitesses longitudinales aussi élevées que 170 m/s, indiquant une nette réduction du temps de compression. La deuxième expérience utilise une technique d'alignement adiabatique du moment magnétique des atomes sur le champ magnétique local. Cette expérience a nettement amélioré le gain en densité du processus de compression passant d'un facteur d'augmentation en densité de 100 à un facteur de 300, se rapprochant ainsi d'un facteur maximum théorique de 600.

En comparant nos expériences avec celles réalisées pour le cas du sodium, on remarque que le fait que le nombre de sous-niveaux augmente change notablement le fonctionnement du piège. Les considérations théoriques développées à ce sujet sont cependant relativement sommaires et traitent un problème dynamique à l'aide de forces considérées statiques. Des simulations Monte-Carlo ont été entreprises pour comprendre en plus de détails tous les processus présents dans le piège. Ces calculs ont ainsi démontrés que le fait de préorienter les atomes avant leur entrée dans le piège pouvait améliorer l'efficacité du piège, bien que cet effet semble être plus net dans les expériences que dans les simulations.

Certaines améliorations peuvent être apportées à notre dispositif expérimental tel qu'il a été décrit dans ce chapitre. Ainsi un nouveau dispositif créant un gradient de champ magnétique en évitant soigneusement tout champ axial parasite, pourrait mener à l'observation de phénomènes sub-Doppler et ainsi donner des faisceaux comprimés présentant des diamètres de l'ordre du micron. Le développement de nouveaux systèmes lasers a effectivement conduit à une obtention d'un piège magnéto-optique facile à mettre en route et relativement stable dans le temps. L'utilisation de diodes lasers DBR, où le réseau de diffraction est intégré dans la structure même de la diode, permettrait de continuer dans cette direction, en impliquant cependant un coût plus élevé.

La mise en place du piège magnéto-optique permet d'obtenir un jet monocinétique de césium ralenti à des vitesses longitudinales allant de 10 à 150 m/s, et ayant une densité atomique de  $10^8$  à quelques  $10^9$  atomes par  $\text{cm}^3$ . Un tel jet atomique froid et dense représente donc un outil précieux pour des expériences de métrologie ou de collisions entre atomes froids. Un des buts de la mise en place de ce dispositif consiste en effet dans l'utilisation de celui-ci pour l'étude de collisions résonnantes entre atomes de Rydberg froids.

L'étude détaillée des processus de piègeage et le développement de nouveaux systèmes lasers ont finalement contribué à la mise en place d'un piège magnéto-optique à trois dimensions en cellule de césium. Ce dispositif représente également un outil idéal pour étudier des collisions entre atomes froids.

## Références du chapitre I

- [ABR 61] A. Abragam, *The Principles of Nuclear Magnetism*, (Clarendon Press, Oxford, 1961).
- [ASH 76] N.W. Ashcroft, N.D. Mermin, *Solid State Physics*, New York, (1976).
- [BAL 79] V.I. Balykin, V.S. Letokhov, V.I. Mushin, *JETP Lett.* **29**, 560, (1979).
- [CAM 85] J.C. Camparo, *Contemp. Physics* **26**, 443, (1985).
- [CAS 90] Y. Castin, K. Molmer, *J. Phys. B* **23**, 4101, (1990).
- [CAS 92] Y. Castin, Thèse de Doctorat de l'Université Paris VI, (1992).
- [CHU 85] S. Chu, L. Hollberg, J.E. Bjorkholm, A. Cable, A. Ashkin, *Phys. Rev. Lett.* **55**, 48, (1985).
- [CHU 86] S. Chu, L. Hollberg, A. Ashkin, A. Cable, *Phys. Rev. Lett.* **57**, 314, (1986).
- [CHU 89] S. Chu, Y. Shevy, D. Weiss, P. Ungar, in *Atomic Physics 11*, (1989).
- [DAL 84] J. Dalibard, S. Reynaud, C. Cohen-Tannoudji, *J. Phys. B* **17**, 4577, (1984).
- [DAL 86] Jean Dalibard, Thèse d'Etat à L'Ecole Normale Supérieure (Paris), (1986).
- [DAL 89a] J. Dalibard, C. Salomon, A. Aspect, E. Arimondo, R. Kaiser, N. Vansteenkiste, C. Cohen-Tannoudji, in *Atomic Physics 11*, (1989).
- [DAL 89b] J. Dalibard, C. Cohen-Tannoudji, *J. Opt. Soc. Am. B* **6**, 2023, (1989).
- [DAV 95] K.B. Davis *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **74**, 5202, (1995).

- [DJE 95] Jouda Djemaa, Thèse de Doctorat de l'Université Paris XI, (1995).
- [DRE 94] M. Drewsen, Ph. Laurent, A. Nadir, G. Santarelli, A. Clairon, Y. Castin, D. Grison, C. Salomon, *Appl. Phys. B* **59**, 283, (1994).
- [ERT 85] W. Ertmer, R. Blatt, J.L. Hall, M. Zhu, *Phys. Rev. Lett.* **54**, 996, (1985).
- [FLE 81] M.W. Fleming and A. Mooradian, *Appl. Phys. Lett.* **38**, 511, (1981).
- [FRI 33] O.R. Frisch, *Zs. f. Physik* **86**, 42, (1933).
- [GAJ 94] M. Gajda, J. Mostoroski, *Phys. Rev. A* **49**, 4864, (1994).
- [GRI 92] Delphine Grison, Thèse de Doctorat de l'Université Paris VI, (1992).
- [GRIM 93] R. Grimm, J. Söding, Y.B. Ovchinnikov, A.I. Sidorov, *Opt. Comm.* **98**, 54, (1993).
- [GUE 92] Saïda Guellati, Thèse de Doctorat à l'Université Paris XI, (1992).
- [HÄN 75] T.W. Hänsch, A. Schawlow, *Opt. Comm.* **13**, 68, (1975).
- [HÖP 93] A. Höpe, D. Haubrich, G. Müller, W. Kaenders, D. Meschede, *Europhys. Lett.* **22**, 669, (1993).
- [HOR 83] H. Hori, Y. Kitayama, M. Kitano, T. Yabuzaki, T. Ogawa, *IEEE J. Quant. Electr.* **19**, 169, (1983).
- [KET 93] W. Ketterle, K.B. Davis, M.A. Joffe, A. Martin, D.E. Pritchard, *Phys. Rev. Lett* **70**, 2253, (1993).
- [KNE 89] F.K. Kneubühl, M.W. Sigrist, *Laser*, (Teubner Studienbücher, Stuttgart, 1989).
- [KOH 93] P. Kohns, P. Buch, W. Süptitz, C. Csambal, W. Ertmer, *Europhys. Lett.* **22**, 517, (1993).

- [LAB 92] M. de Labachellerie, C. Latrasse, P. Kemssu, P. Cerez, J. Phys. III (France) **2**, 1557, (1992).
- [LAM 65] W.E. Lamb, Jr., in *Quantum Optics and Electronics*, Les Houches Summer School Lectures 1964, eds. C. DeWitt, A. Blandin, C. Cohen-Tannoudji (Gordon and Breach, New York, 1964).
- [LAU 89] Ph. Laurent, Thèse obtenue à l'Université Paris XI, (1989).
- [LET 88] P. Lett, R. Watts, C. Westbrook, W.D. Phillips, P. Gould, H. Metcalf, Phys. Rev. Lett. **61**, 169, (1988).
- [LET 89] P. Lett, W.D. Phillips, S.I. Rolston, C.E. Tanner, R.N. Watts, C. Westbrook, J. Opt. Soc. Am. B **6**, 2084, (1989).
- [MAC 92] K.B. MacAdam, A. Steinbach, and C. Wieman, Am. J. Phys. **60**, 1098, (1992).
- [MET 89] H. Metcalf, J. Opt. Soc. Am. B **6**, 2206, (1989).
- [MOL 91] K. Molmer, Phys. Rev. A **44**, 5820, (1991).
- [MOL 94] K. Molmer, J. Phys. B **27**, 1889, (1994).
- [MON 90] C. Monroe, W. Swann, H. Robinson, C. Wieman, Phys. Rev. Lett. **65**, 1571, (1990).
- [NEL 89] J. Nellessen, J.H. Muller, K. Sengstock, W. Ertmer, J. Opt. Soc. Am. B **6**, 2149, (1989).
- [NEL 90] J. Nellessen, J. Werner, W. Ertmer, Opt. Comm. **78**, 300, (1990).
- [PET 95] W. Petrich, M.H. Anderson, J.R. Ertmer, and E.A. Cornell, Phys. Rev. Lett. **74**, 3352, (1995).
- [PHI 82] W.D. Phillips, H. Metcalf, Phys. Rev. Lett. **48**, 596, (1982).

- [PIC 76] J.L. Picqué, J.L. Vialle, *Opt. Comm.* **16**, 166, (1976).
- [PRE 88] M. Prentiss *et al.*, *Opt. Lett.* **13**, 452, (1988).
- [RAA 87] E. Raab, M. Prentiss, A. Cable, S. Chu, D. Pritchard, *Phys. Rev. Lett.* **59**, 2631, (1987).
- [RAM 69] N.F. Ramsey, *Molecular Beams*, Oxford University Press, (1969).
- [RAT 94] L.P. Ratcliff *et al.*, *J. Chem. Phys.* **101**, 2638, (1994).
- [RIC 95] L. Ricci, M. Weidemüller, T. Esslinger, A. Hemmerich, C. Zimmermann, V. Vuletic, W. König, T.W. Hänsch, *Opt. Comm.* **117**, 541, (1995).
- [RII 90] E. Riis, D.S. Weiss, K.A. Moler, S. Chu, *Phys. Rev. Lett.* **64**, 1658, (1990).
- [SALA 79] R.P. Salathé, *Appl. Phys.* **20**, 1, (1979).
- [SAL 88] C. Salomon, J. Dalibard, *C. R. Acad. Sci. Paris*, Vol. 306 II, 1319, (1988).
- [SAL 90] C. Salomon, J. Dalibard, W.D. Phillips, A. Clairon, and S. Guellati, *Europhys. Lett.* **12**, 683, (1990).
- [SCH 58] A. Schawlow, C.H. Townes, *Phys. Rev* **112**, 1940, (1958).
- [SES 89] D. Sesko, T. Walker, C. Monroe, A. Gallagher, C. Wieman, *Phys. Rev. Lett.* **63**, 961, (1989).
- [SHE 89] Y. Shevy, D.S. Weiss, P.J. Ungar, S. Chu, *Phys. Rev. Lett.* **62**, 1118, (1989).
- [SIE 86] A.E. Siegman, *Lasers*, (Oxford University Press, New York, 1986).
- [STE 91] A. Steane and C. Foot, *Europhys. Lett.* **14**, 231, (1991).

- [STE 92] A. M. Steane, M. Chowdhury, and C. J. Foot; *J. Opt. Soc. Am. B* **9**; 2142; (1992).
- [STE 92b] A.M. Steane, G. Hillenbrand, C.J. Foot, *J. Phys. B* **25**, 4721, (1992).
- [TOW 96] C.G. Townsend, N.H. Edwards, K.P. Zetic, C.J. Cooper, J. Rink, C.J. Foot, *Phys. Rev. A* **53**, 1702, (1996).
- [TOWN 61] C.H. Townes, in *Advances in Quantum Electronics*, ed. by J.R. Singer (Columbia University Press, New York, 1961).
- [VAL 92] C. Valentin, M.-C. Gagné, J. Yu, P. Pillet, *Europhys. Lett.* **17**, 133, (1992).
- [VAL 94] Constance Valentin, Thèse de Doctorat à l'Université Paris XI, (1994).
- [WAL 92] M. Walhout, J. Dalibard, S.L. Rolston, W.D. Phillips, *J. Opt. Soc. Am. B* **9**, 1997, (1992).
- [WALK 90] T. Walker, D. Sesko, and C. Wieman, *Phys. Rev. Lett.* **64**, 408, (1990).
- [WALL 94] C.D. Wallace, T.P. Dinneen, K.Y.N. Tan, A. Kumarakrishnan, P.L. Gould, J. Javanainen, *J. Opt. Soc. Am. B* **11**, 703, (1994).
- [WEI 89] P.J. Weiss, E. Riis, and S. Chu, *J. Opt. Soc. Am. B* **6**, 2058, (1989).
- [WER 92] J. Werner, H. Wallis, W. Ertmer, *Opt. Comm.* **94**, 525, (1992).
- [WIN 75] D. Wineland, H. Dehmelt, *Bull. Am. Phys. Soc.* **20**, 637, (1975).
- [WIN 79] D. Wineland, W. Itano, *Phys. Rev. A* **20**, 1521, (1979).
- [YAR 67] A. Yariv, *Quantum Electronics* (John Wiley and Sons, Inc., New York, 1967).

- [YU 91] J. Yu, S. Guellati, M.-C. Gagné, A. Clairon, J.-L. Picqué, *Opt. Comm.* **82**, 301, (1991).
- [YU 92] J. Yu, M.-C. Gagné, C. Valentin, R.L. Yuan, P. Pillet, *J. Phys. III (France)* **2**, 1615, (1992).
- [YU 93] J. Yu, M.-C. Gagné, C. Valentin, S. Guellati, J. Djemaa, R. Yuan, P. Pillet, *IEEE Trans. Instr. Meas.* **42**, 109, (1993).
- [YU 94] J. Yu, J. Djemaa, P. Nosbaum, P. Pillet, *Opt. Comm.* **112**, 136, (1994).







# **Chapitre II: Spectroscopie de croisements évités dans une multiplicité d'états de Rydberg du césium**

## **II - 1 - Introduction**

Les atomes de Rydberg qui sont des atomes dans des états énergétiques de nombre quantique principal  $n$  important, sont des atomes dont les propriétés physiques sont exagérées par rapport à celles des atomes faiblement excités. Après avoir joués un certain rôle pour la spectroscopie atomique à la fin du siècle passé, les premières expériences s'intéressants à ces atomes furent du domaine de l'astrophysique [DAL 83], les atomes de Rydberg étant présents dans les milieux interstellaires peu denses et même dans les plasmas [HUM 88], [JACO 76]. L'événement faisant resurgir l'intérêt sur les atomes de Rydberg fut le développement des lasers à colorants [HÄN 72], qui permet d'exciter un large nombre d'atomes dans un état de Rydberg bien défini. Cette possibilité permet d'étudier une gamme très variée de propriétés en détail. Beaucoup de propriétés, qui nous sont familières pour les états faiblement excités, telles que par exemple la durée de vie radiative ou les section efficaces de collisions, suivent des extrapolations avec le nombre quantique principal prévisibles [BET 57]. Un autre aspect tout aussi intéressant est livré par les propriétés particulières, qui sont propres aux atomes de Rydberg. Un bon exemple d'une telle propriété est donné par l'effet d'un champ électrique externe sur un atome de Rydberg. Tandis que l'effet fut observé depuis relativement longtemps dans des spectres optiques, il ne fut pas totalement compris, principalement parce qu'on y voyait pas de raison urgente. Les champs électriques ne produisent non seulement des effets dramatiques sur les atomes de Rydberg, mais ils offrent de nouvelles techniques pour la détection et la manipulation de ceux-ci [DUN 83]. Pour pouvoir complètement exploiter ces techniques, il a fallu finalement étudier systématiquement les effets statiques et dynamiques des champs électriques [VIA 79], [JEY 80].

D'autre part, en profitant de leurs propriétés exagérées, on peut mener des expériences avec les atomes de Rydberg qui seraient impensables avec d'autres systèmes. L'interaction entre un atome et un champ électromagnétique en est un bon exemple. Ainsi à faible intensité, les atomes de Rydberg présentent un système idéal pour tester l'interaction d'un atome avec le vide, en particulier le vide structuré produit par une cavité résonante [MES 85], [BRU 87]. A l'autre extrême, dans des champs lasers intenses, l'intensité des champs devient de l'ordre du champ coulombien, ce qui en fait un sujet très intéressant [HUI 82], [FRE 87].

Récemment ces atomes de Rydberg ont donc été le sujet d'études intenses, devenant ainsi le terrain de test pour quelques problèmes de mécanique quantique. Ce chapitre aura pour but de se familiariser avec les principales propriétés des atomes de Rydberg, ainsi que de montrer les résultats de quelques expériences spectroscopiques avec pour but d'étudier celles-ci expérimentalement.

Dans une première partie je donnerai un aperçu sur les principales propriétés des atomes de Rydberg. Dans une seconde partie, j'approfondirai les propriétés de ces atomes en présence d'un champ électrique externe, propriétés très importantes pour les aspects expérimentaux touchant les atomes de Rydberg. Dans une troisième partie je détaillerai finalement des expériences spectroscopiques visant à étudier ces propriétés.

## II - 2 - Propriétés de base d'atomes de Rydberg

Les premières expériences mettant en jeu des états de Rydberg, furent les expériences spectroscopiques sur l'hydrogène donnant des raies dans le visible suivant une série bien régulière: la série Balmer. Un peu plus tard, Rydberg [RYD 90] commença à classifier les spectres atomiques, surtout d'alcalins, en séries de raies bien distinctes. Il remarqua qu'on pouvait écrire pour les nombres d'onde correspondants aux raies de ces séries:

$$\nu = \nu_{\infty} - \frac{R_y}{(n - \delta)^2} \quad (\text{II - 1})$$

où les constantes  $\nu_\infty$  et  $\delta$  sont respectivement la limite vers laquelle tend la série et son défaut quantique. La constante  $R_y$  est une constante universelle, aujourd'hui appelée constante de Rydberg et qui vaut  $109737 \text{ cm}^{-1}$ .

## II - 2 - 1 - Niveaux d'énergie et fonctions d'onde

La signification physique du nombre  $n$  n'était pas vraiment claire, jusqu'à ce que Bohr propose son modèle de l'atome d'hydrogène en 1913. A la base du modèle atomique de Bohr se trouve l'idée d'un électron sur une orbite circulaire classique autour d'un coeur ionique. A cette vision de physique classique, Bohr ajouta deux notions: le moment angulaire est quantifié en multiples entiers de  $\hbar$ , et l'électron n'émet pas de radiation continûment, mais n'émet qu'en faisant des transitions entre états énergétiques bien définis.

Pour les états très excités, le problème très difficile de trouver les états énergétiques d'un système de  $N+1$  électrons en interaction avec le coeur atomique est beaucoup simplifié. Dans ce cas la séparation du problème en un coeur de  $N$  électrons et un électron distant (électron de valence) devient logique à cause de la grande différence entre leurs énergies de liaison. Ainsi le problème devient majoritairement un problème à un seul électron. Puis, comme le coeur est limité à une petite région de l'espace, le potentiel effectif vu par l'électron de valence est principalement un potentiel Coulombien.

Ainsi, à première approximation, les états de Rydberg apparaissent comme de simples états hydrogéniques excités pour lesquels les énergies et les fonctions d'onde sont connues. De plus, comme on travaille avec des nombres quantiques élevés, on s'approche de la limite classique de la mécanique quantique. En conséquence, des images semi-classiques ou même classiques peuvent apporter une description correcte d'états très excités en termes d'orbites électroniques et livrer des images physiques simples.

### 1 - a - Approximation hydrogénique

L'approximation en premier ordre pour la description des états Rydberg est de supposer que le recouvrement des fonctions d'onde du coeur et de l'électron de valence est négligeable. Pour commencer, on considère l'équation de Schrödinger pour l'atome d'hydrogène qui s'écrit en unités atomiques:

$$\left( -\frac{\nabla^2}{2} - \frac{1}{r} \right) \psi = E\psi \quad (\text{II - 2})$$

où  $r$  est la distance entre l'électron et le proton, dont la masse est considérée infinie, et  $E$  l'énergie électronique. La fonction d'onde de l'atome d'hydrogène qui résout cette équation est connue analytiquement et [BET 57] s'écrit sous la forme suivante:

$$\psi_{nlm}(\theta, \phi, r) = Y_{lm}(\theta, \phi) \frac{f(n, l, r)}{r} \quad (\text{II - 3})$$

La fonction d'onde est donc un produit d'une fonction angulaire et d'une fonction radiale qui sont toutes les deux normalisées. Pour les énergies propres associées à ces fonctions d'onde, on retrouve l'expression familière:

$$E = -\frac{1}{2n^2} \quad (\text{II - 4})$$

Classiquement, l'électron se déplace sur une orbite elliptique qui devient très excentrée pour de faibles valeurs de  $l$  [FAB 80]. Un électron peu lié est, en première approximation, uniquement caractérisé par son moment cinétique  $l$  lorsqu'il se trouve près du noyau (il suit l'orbite parabolique d'énergie nulle). En revanche, il est principalement caractérisé par son énergie et non son moment cinétique lorsqu'il se trouve très loin du noyau. Ceci est dû au fait que pour  $r$  petit le potentiel centrifuge qui ne dépend que de  $l$  est le potentiel dominant, par contre pour  $r$  tendant vers l'infini, c'est le potentiel coulombien, indépendant de  $l$ , qui l'emporte. On peut donc analyser un état de Rydberg en tant que collision à faible énergie entre un électron externe et le noyau, présentant un paramètre d'impact fixé par  $l$  et une fréquence de collisions par  $n$ .

Il est évident que ce modèle considérant un coeur ponctuel n'est qu'une grossière approximation pour le cas des atomes de Rydberg alcalins. Au fait si le moment cinétique  $l$  est assez faible, l'électron externe va entrer en collision avec le noyau à chaque révolution, et ceci quelle que soit son énergie  $n$ , tout en affectant fortement les propriétés atomiques. On doit donc distinguer entre les orbites pénétrantes (petites valeurs de  $l$ ) et les orbites non-pénétrantes (grandes valeurs de  $l$ ) pour lesquelles le modèle hydrogénique est justifié.

### 1 - b - Effets à longue portée

Considérons pour l'instant les orbites non-pénétrantes de l'électron de valence. Celles-ci correspondent à des nombres quantiques angulaires  $l$  supérieur à une valeur donnée  $l_0$ , où  $l_0$  est en général un petit nombre entier ( $l_0=1$  pour Li, 2 pour Na et K, 3 pour Rb et Cs). Dans ce cas, les fonctions d'onde du noyau et de l'électron externe ne se recouvrent pratiquement pas. Le noyau peut donc être considéré comme une source d'un potentiel électrostatique  $V(r)$  qui diffère d'un potentiel Coulombien et peut être développé en termes multipolaires:

$$V(r) = -\frac{1}{r} + \delta V(r) \quad (\text{II - 5})$$

où  $\delta V(r)$  contient surtout les contributions dipolaires et quadripolaires induites [FRE 76]. Ce terme peut être traité en tant que perturbation du potentiel Coulombien et les corrections des énergies propres en suivent immédiatement. On trouve ainsi:

$$E_{nl} = -\frac{1}{2(n - \delta_l)^2} \quad (\text{II - 6})$$

On doit donc corriger le nombre quantique principal  $n$  dans la formule de Balmer par un petit défaut quantique  $\delta_l$ , qui décroît rapidement avec  $l$

### 1 - c - Les effets de courte portée

Le problème devient plus compliqué pour les orbites pénétrantes qui interagissent fortement avec le noyau et sont donc plus sensibles aux détails de la fonction d'onde de celui-ci. Une théorie permettant de décrire ces séries de Rydberg a été développée surtout par Seaton [SEA 83]: la méthode du défaut quantique.

Cette théorie réside sur le point suivant: L'interaction entre le coeur et l'électron de valence est limitée à une petite partie de l'espace de rayon  $r_0$  autour du noyau. Pour la région extérieure à celle-ci, le potentiel est Coulombien. Par conséquent la fonction d'onde pour  $r > r_0$  est connue: c'est une fonction d'onde Coulombienne qui satisfait les conditions de bord pour  $r=r_0$  et  $r \rightarrow \infty$ . La valeur de la fonction d'onde à la frontière  $r=r_0$  est déterminée par les propriétés

de l'interaction à courte portée entre l'électron et le noyau. De plus, en supposant quelques conditions simples de régularité pour cette interaction de courte portée, on trouve une fonction d'onde qui s'écrit en fonction des fonctions Coulombiennes analytiques régulières et irrégulières [GAL 94]:

$$\psi(\theta, \phi, r) = Y_{lm}(\theta, \phi, r) \frac{[f(n, l, r) \cos \pi\delta_l - g(n, l, r) \sin \pi\delta_l]}{r} \quad (\text{II - 7})$$

Les niveaux d'énergie sont donnés par la formule de Rydberg:

$$E_{nl} = - \frac{1}{2(n - \delta_l)^2} \quad (\text{II - 8})$$

où le défaut quantique  $\delta_l$ , défini empiriquement par Rydberg, prend une signification physique simple et très précise. Le défaut quantique apparaît comme un déphasage des oscillations de la fonction d'onde à l'extérieur du noyau. C'est le même déphasage que celui dans des théories de collisions, confirmant ainsi le lien étroit entre un état de Rydberg et une collision à basse énergie d'un électron avec le noyau.

On peut aussi essayer de comprendre classiquement l'effet du noyau. La trajectoire électronique est elliptique à l'extérieur du coeur et fortement modifiée à l'intérieur de celui-ci. Comme dans tous les cas  $L$  est conservé, l'orbite reste toujours dans le même plan. A chaque révolution, l'axe majeur de l'ellipse va précesser d'un angle  $\Delta\theta$ . Cette précession des orbites, qui est la contrepartie classique du défaut quantique, est simplement formulé par l'expression suivante en tenant compte du fait que  $L=l+1/2$  [FAB 80]:

$$\Delta\theta = - 2\pi \frac{\partial\delta_l}{\partial l} \quad (\text{II - 9})$$

Comme  $\Delta\theta$  est positif, le défaut quantique est une fonction décroissante de  $l$ . Il décroît très rapidement en fonction de  $l$ , rendant quasi-dégénérés les niveaux de grand  $l$ .

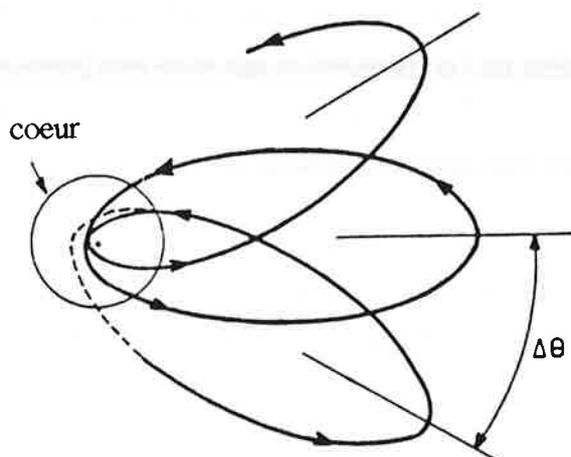


Figure II-1: Trajectoire classique d'un électron Rydberg présentant une précession  $\Delta\theta$  de l'axe de l'ellipse.

En résumé, le défaut quantique permet en effet de complètement rendre compte de l'interaction très complexe entre l'électron très excité et l'ensemble des autres électrons et du noyau, pourvu qu'on s'intéresse aux propriétés de cet électron en dehors du cœur.

On peut distinguer de trois régions essentielles:

- la première correspond aux grandes valeurs de  $l$  et aux petits numéros atomiques: les défauts quantiques  $\gamma$  sont proches de zéro. C'est la région où seuls les effets à longue portée contribuent à  $\delta$ .

- la deuxième correspond aux petites valeurs de  $l$  et aux grands numéros atomiques: les défauts quantiques  $\gamma$  sont grands et augmentent rapidement avec  $Z$  à  $l$  fixé. C'est la région des états pénétrants pour lesquels l'effet du cœur est très important.

- la dernière est la région frontière entre les deux précédentes. On peut qualifier ces états d'états semi-pénétrants ou d'états tangents au cœur. Ce sont les états  $p$  du lithium,  $d$  du sodium et du potassium, et  $f$  du rubidium et du césium.

Le défaut quantique est une fonction croissante de l'énergie (donc décroissante de  $1/n^2$ ) pour les états de grande valeur de  $l$  correspondant aux états non pénétrants. Pour les états de faible valeur de  $l$  correspondants aux états pénétrants, le défaut quantique est une fonction décroissante de l'énergie, donc une fonction croissante de  $1/n^2$ .

Les défauts quantiques dépendent légèrement de  $n$  et sont souvent spécifiés pour les états de  $j$  différents. Explicitement le défaut quantique d'un état  $nlj$  est donné par l'expression [GAL 94]:

$$\delta_{nlj} = \delta_0 + \frac{\delta_2}{(n - \delta_0)^2} + \frac{\delta_4}{(n - \delta_0)^4} + \dots \quad (\text{II} - 10)$$

Les paramètres  $\delta_0$  et  $\delta_2$  pour le césium sont donnés dans le tableau II-2 [GOY 82]. Pour les états de  $n$  importants, les deux premiers termes de l'équation (II-10) sont normalement suffisants.

Série	$\delta_0$	$\delta_2$
$^{133}\text{Cs}$ ns <sub>1/2</sub>	4.049325(15)	0.246(5)
np <sub>1/2</sub>	3.591556(30)	0.3714(40)
np <sub>3/2</sub>	3.559058(30)	0.374(40)
nd <sub>3/2</sub>	2.475365(20)	0.5554(60)
nd <sub>5/2</sub>	2.466210(15)	0.0167(5)
nf <sub>5/2</sub>	0.033392(50)	-0.191(30)
nf <sub>7/2</sub>	0.033537(28)	-0.191(20)

Tableau II-2: Paramètres pour calculer les défauts quantiques du césium à l'aide de la formule (II-10).

## II - 2 - 2 - Variation avec n des différentes propriétés

A partir de leurs fonctions d'onde, on peut essayer de préciser quelques propriétés des atomes de Rydberg. La plupart de ces propriétés suivent des lois de variation simple suivant le nombre quantique principal n. Dans la suite j'essayerai d'en donner un bref aperçu.

### 2 - a - Structure fine et hyperfine

Les parties radiales des Hamiltoniens de la structure fine et de la structure hyperfine sont toutes les deux proportionnelles à  $r^{-3}$ . Par conséquent, les corrections d'énergie de structure fine et hyperfine vont majoritairement être sensibles à la valeur des fonctions d'onde électroniques dans la région autour du noyau.

Pour les états non pénétrants, on peut utiliser les fonctions d'onde hydrogéniques pour calculer les déplacements [BET 57]. On trouve ainsi que la valeur moyenne d'un opérateur dépendant pratiquement que des petites valeurs de r va être proportionnel à  $n^{-3}$ . Ceci est en effet le cas pour la correction de la polarisation du coeur et aussi pour les corrections dues à la structure fine et hyperfine.

Le calcul de ces corrections devient beaucoup plus complexe pour les états pénétrants comme la contribution principale provient des valeurs des fonctions d'onde à l'intérieur du coeur, qui ne sont pas données par la méthode du défaut quantique. En utilisant cette méthode on trouve néanmoins une expression pour la dépendance en n de la structure fine et hyperfine qui peut s'écrire de la manière suivante après factorisation:

$$\Delta E_{nl} \approx \frac{1}{n^3} \left( A_1 + \frac{B_1}{n^2} + \frac{C_1}{n^4} + \dots \right) \quad (\text{II - 11})$$

La structure fine, même si elle est quantitativement très différente de celle de l'hydrogène, présente le même ordre de distribution des sous-niveaux: dans un doublet de structure fine, l'état de J inférieur est plus lié que l'état de J supérieur; la structure est qualifiée de normale.

L'intervalle de structure fine est une excellente sonde des propriétés du coeur, puisqu'il est sensible aux détails de l'interaction entre l'électron périphérique et les électrons formant le coeur. En résumé on peut distinguer de trois régimes pour la structure fine:

- Pour les orbites pénétrantes ( $\delta_1$  grand), on trouve que la structure fine est beaucoup plus importante que celle de l'hydrogène, mais présente le même ordre de distribution des sous-niveaux.

- Pour les orbites tangentes au coeur (séries D pour Na et K, F pour Rb et Cs), la structure fine est inversée. Ceci semble surprenant, comme en utilisant un modèle d'un électron en mouvement dans un potentiel effectif on ne trouve jamais de structure fine inversée. Ceci révèle donc l'importance d'effets d'ordres plus élevés, tels que des effets de corrélation et d'échange, durant la collision entre l'électron et le coeur, de telle façon à en devenir dominants.

- Pour les orbites non-pénétrantes, la structure fine est hydrogénique.

## 2 - b - Forces d'oscillateur

Tandis que le comportement général est similaire pour l'hydrogène et les alcalins, on observe de nettes différences pour les sections efficaces d'absorption optique et pour les taux de désexcitation radiative. Ces différences peuvent être imputées à la variation des éléments de matrice radiale produite par les défauts quantiques non nuls.

Les forces d'oscillateur impliquant des états de Rydberg sont des paramètres importants, puisqu'ils livrent les probabilités de transition entre niveaux. Elles sont proportionnelles au carré des éléments de matrice dipolaire  $D_{nl}^{n'l'}$ :

$$D_{nl}^{n'l'} = q R_{nl}^{n'l'} = q \int_0^\infty r^3 R_{nl}(r) R_{n'l'}(r) dr \quad (\text{II - 12})$$

où  $R_{nl}(r)$  est la partie radiale de la fonction d'onde de l'état  $|nl\rangle$ . A cause du facteur  $r^3$ , ces éléments de matrice sont essentiellement sensibles aux valeurs des fonctions d'onde

éloignées du noyau à l'extérieur du coeur. La méthode du défaut quantique livre donc des résultats qui sont une bonne approximation de la réalité.

On trouve ainsi que pour des transitions entre deux états de Rydberg voisins ( $n \approx n' \gg 1$ ) on peut écrire en première approximation:

$$R_{nl}^{n'l'} \approx \frac{3}{2} \nu^2 g_0(\Delta\nu) \quad (\text{II - 13})$$

où  $\Delta\nu = \nu - \nu' = (n - \delta_l) - (n' - \delta_{l'})$ , et  $g_0(\Delta\nu)$  est une fonction oscillante avec une période qui tend vers 2, dont l'amplitude décroît rapidement selon  $\Delta\nu^{-5/3}$  [FAB 82]. Le paramètre  $\nu$  est appelé le nombre quantique principal réduit et tient compte du défaut quantique.

Dans le second cas, si  $|nl\rangle$  est un état de Rydberg et  $|n'l'\rangle$  un état fortement lié, les deux fonctions d'onde se recouvrent sur une région limitée autour du noyau où un tel élément de matrice possède une dépendance simple selon  $n$ , ce qui n'est pas le cas selon  $n'$ . L'élément de matrice présente la dépendance suivante:

$$R_{nl}^{n'l'} \propto \nu^{-3/2} \quad (\text{II - 14})$$

En résumé on peut donc dire que pour un flux de radiation électro-magnétique résonante, la probabilité de transition entre deux niveaux  $|nl\rangle$  et  $|n'l'\rangle$  est (1) beaucoup plus importante qu'entre états peu excités si les deux états sont des états de Rydberg (la probabilité augmente en  $\nu^4$ ) et (2) beaucoup plus faible qu'entre états peu excités si la transition relie un état de Rydberg à un état peu excité (la probabilité décroît selon  $\nu^{-3}$ ).

Finalement, des effets relativistes peuvent jouer un rôle important dans la détermination des forces d'oscillateur, surtout pour le cas des alcalins lourds où l'interaction spin-orbite est non négligeable. Ainsi l'introduction du couplage spin-orbite a un double effet sur l'élément de matrice dipolaire: il en modifie sa valeur, et il rend le dipôle électrique sensible à la valeur du moment cinétique total  $J$ .

Ainsi la faible perturbation spin-orbite peut entraîner un effet dramatique sur le rapport  $q$  des forces d'oscillateur des transitions reliant le niveau fondamental aux deux sous-

niveaux  $P_{3/2}$  et  $P_{1/2}$  de structure fine. Pour un niveau de  $n=30$  pour le césium, on trouve une valeur de  $Q$  de 1170 [RAI 78], c'est-à-dire plusieurs ordres de grandeurs de plus que la valeur hydrogénique qui vaut 2.

## 2 - c - Durée de vie radiative

La probabilité de désexcitation spontanée d'un état  $|nl\rangle$  vers un autre état  $|n'l'\rangle$  s'écrit selon la formule suivante:

$$\gamma_{nl \rightarrow n'l'} = \frac{\max(l, l')}{2l + 1} (E_{nl} - E_{n'l'})^3 (R_{nl}^{n'l'})^2 \quad (\text{II - 15})$$

On voit nettement que si la différence  $n - n'$  augmente, le facteur contenant l'énergie va augmenter rapidement tandis que le carré de l'élément de matrice diminue. Pour des états de faible moment cinétique ( $l \ll n$ ), on peut montrer que l'effet net est un rapide accroissement avec  $n - n'$ . La durée de vie radiative d'un niveau  $|nl\rangle$  s'écrit:

$$\tau_{nl} = \left( \sum_{\substack{n'l' \\ E_{n'l'} < E_{nl}}} \gamma_{nl \rightarrow n'l'} \right)^{-1} \quad (\text{II - 16})$$

Le taux de transfert d'un niveau de Rydberg donné vers un autre niveau  $n'$  décroît très rapidement avec  $n'$ . Le plus fort taux est donc celui liant le niveau très excité avec l'état le moins excité compatible avec les règles de sélection dipolaires électrique  $\Delta l = \pm 1$ . Plus  $n$  croît et plus les transitions vers les niveaux les plus bas sont favorisées. Comme la dépendance en  $n$  de  $R_{nl}^{n'l'}$  est selon  $\nu^{-3/2}$ , la durée de vie d'un niveau de Rydberg va finalement en première approximation varier selon  $\nu^3$ . Cette dépendance a une explication physique classique relativement simple: l'électron classique n'émet que s'il fortement accéléré, c'est-à-dire à proximité du périhélie où la trajectoire est indépendante de l'énergie. L'énergie émise par révolution est donc constante et le taux d'émission radiative reflète simplement la variation selon  $\nu$  de la fréquence de rotation de l'électron.

Néanmoins, il faut noter que l'analyse précédente n'est pas valable pour les états de Rydberg ayant de grandes valeurs de  $l$ , par exemple pour les états de Rydberg circulaires ( $l=n-1$ ) que l'on peut observer dans les milieux interstellaires. Dans ce cas l'émission spontanée

ne peut peupler que le niveau voisin  $|n'=n-1, l'=n-2\rangle$  en émettant un photon de grande longueur d'onde dont la fréquence varie comme  $\nu^{-3}$ . Ainsi la durée de vie pour de tels états est proportionnelle à  $n^5$ .

Il faut cependant rappeler que jusqu'à ce moment on a toujours supposé que les états de Rydberg interagissaient avec le vide parfait. Ceci n'est plus le cas dans une expérience réelle à cause de l'existence du fond de radiation du corps noir. Gallagher et Cooke [GAL 79a] ont ainsi démontrés que de tels effets thermiques pouvaient sérieusement changer la durée de vie d'un état de Rydberg. Cet effet dramatique de la radiation thermique est dû à deux faits. Premièrement les différences en énergie entre niveaux de Rydberg sont si petites tel que  $\Delta E < kT$  à 300 K. Deuxièmement les éléments de matrice dipolaire pour les transitions entre niveaux Rydberg sont importants, ce qui permet un couplage facilité des atomes à la radiation thermique. Le résultat de ce couplage important est qu'une population initialement dans un seul état, créée par exemple par une excitation laser, va diffuser rapidement vers des niveaux voisins par des transitions dipolaires induites par radiation du corps noir [GAL 83], [GAL 94]. Ceci va donc réduire considérablement la durée de vie d'un état de Rydberg.

## 2 - d - Polarisabilité

Pour obtenir des données spectroscopiques sûres concernant les états de Rydberg, il faut s'assurer que ces atomes ne sont pas perturbés par une interaction étrangère. La raison principale pour un possible effet d'élargissement ou de déplacement des niveaux de Rydberg est donnée par une perturbation électrostatique. Pour un champ électrostatique faible  $F$  parallèle à l'axe  $z$ , un niveau Rydberg  $|nlm\rangle$  subit un déplacement en énergie de l'ordre de:

$$\Delta E_{nlm} = -\frac{1}{2}(\alpha_{nl})_0 F^2 - \frac{1}{2}(\alpha_{nl})_2 \frac{3m^2 - l(l+1)}{l(2l-1)} F^2 \quad (\text{II} - 17)$$

où  $(\alpha_{nl})_0$  et  $(\alpha_{nl})_2$  sont respectivement les polarisabilités scalaires et tensorielles des niveaux, qui s'écrivent en fonction de  $|R_{nl}^{n'l'}|^2 / (E_{nl} - E_{n'l'})$ . Les contributions principales sont dues aux niveaux  $n'=n$  pour lesquels la différence d'énergie varie comme  $n^{-3}$  et l'élément de matrice est proportionnel à  $n^2$ . Les polarisabilités vont varier selon  $n^7$  ce qui implique que les déplacements Stark dans les atomes de Rydberg sont plus importants de quelques ordres de grandeurs comparés à ceux des états profonds.

Si on étudie à présent l'effet Stark dynamique, l'équation (II-17) garde sa validité si on remplace les polarisabilités statiques par celles dynamiques. Si l'énergie  $\hbar\omega$  de l'onde incidente est de l'ordre des différences en énergie entre niveaux de Rydberg, les polarisabilités dynamiques sont proportionnelles à  $n^7$ . Ainsi des déplacements de niveaux à cause d'ondes quasi-résonantes peuvent devenir importants même pour de faibles flux incidents. D'un autre côté il a été démontré que la radiation à haute fréquence non-résonante n'avait que très peu d'effet sur les positions des niveaux de Rydberg.

## 2 - e - Récapitulatif

Pour donner une idée précise de la majorité des propriétés d'un atome de Rydberg, et pour offrir la possibilité de comparer ces propriétés à celles d'un atome dans ses états profonds je récapitule et donne des valeurs précises pour les propriétés de ces deux états atomiques différents dans le tableau II-2.

Propriétés	Variation selon n	Ordre de grandeur pour un état profond (n≈1)	Ordre de grandeur pour un état de Rydberg avec n≈30
Énergie de liaison	$n^{-2}$	$3 \cdot 10^4 \text{ cm}^{-1}$	$1.5 \cdot 10^2 \text{ cm}^{-1}$
Rayon orbital	$n^2$	$1 \text{ \AA}$	$10^3 \text{ \AA}$
Section efficace géométrique	$n^4$	$1 \text{ \AA}^2$	$10^6 \text{ \AA}^2$
Déplacement diamagnétique	$n^4$	$10^{-4} \text{ Hz/Gauss}$	$100 \text{ Hz/Gauss}$
Champ d'ionisation	$n^{-4}$	$10^8 \text{ V/cm}$	$2 \cdot 10^2 \text{ V/cm}$
Différence d'énergie entre états n voisins	$n^{-3}$	$20000 \text{ cm}^{-1}$	$5 \text{ cm}^{-1}$
Moment dipolaire	$n^2$	$1 \text{ \AA} \cdot q$	$10^3 \text{ \AA} \cdot q$
Polarisabilité	$n^7$	$0.3 \text{ kHz}/(\text{kV/cm})^2$	$10 \text{ MHz}/(\text{V/cm})^2$
Durée de vie radiative	$n^3$	$30 \text{ ns}$	$75 \text{ \mu s}$
Durée de vie radiative pour $l \approx n$	$n^5$		
Intervalle de structure fine	$n^{-3}$	$500 \text{ cm}^{-1}$	$0.3 \text{ cm}^{-1}$
Taux d'émission spontanée	$n^{-3}$	$3 \cdot 10^7 \text{ s}^{-1}$	$10^4 \text{ s}^{-1}$
Taux d'émission due à la radiation du corps noir	$n^{-2}$		$10^4 \text{ s}^{-1}$
Champ électrique pour le croisement entre deux multiplicités voisines	$n^{-5}$		$100 \text{ V/cm}$

Tableau II-2: Récapitulatif des principales propriétés des atomes de Rydberg.

## **II - 3 - Atomes de Rydberg dans un champ électrique externe**

L'intérêt porté à l'interaction entre un atome de Rydberg et un champ électrique externe est justifié par l'ordre de grandeur complètement inhabituel de cette interaction. Les champs créés en laboratoire, bien qu'insignifiants en comparaison avec des champs atomiques, ne sont pas nécessairement faibles comparés avec le champ Coulombien amoindri subi par l'électron se trouvant éloigné du noyau dans un atome très excité. Les champs appliqués peuvent dominer le système, offrant ainsi l'opportunité d'étudier une classe de nouveaux phénomènes permettant d'approfondir les connaissances des théories atomiques.

### **II - 3 - 1 - Effet Stark**

L'effet d'un champ électrique sur un atome de Rydberg, l'effet Stark, offre un exemple intéressant comment la déviation d'un potentiel Coulombien à petite distance, par exemple pour un alcalin, peut radicalement changer son comportement dans un champ comparé à un cas hydrogénique. La différence est pourtant quelque peu surprenante puisque les effets de champs sont fondamentalement des effets à longue portée. Ceci justifie l'intérêt porté à l'effet Stark qui de plus est d'une grande importance pratique pour l'étude d'atomes de Rydberg.

Dans cette partie, je parlerai surtout de l'aspect théorique concernant la structure Stark d'un atome à un électron de valence. Je me limiterai d'abord à des valeurs de champ relativement faibles où les états sont stationnaires, pour approfondir le sujet des croisements évités et aborder l'ionisation par champ dans les parties suivantes. Pour introduire le sujet de l'effet Stark, je commence par donner brièvement les majeures caractéristiques du problème et de ses solutions pour le cas de l'hydrogène.

#### **1 - a - Structure Stark pour l'atome d'hydrogène**

Un champ électrique statique et uniforme lève la dégénérescence des niveaux d'énergie pour l'atome d'hydrogène relativement aux nombres quantiques orbital  $l$  et magnétique  $m$ . Les états qui ne diffèrent que par leur signe du nombre quantique magnétique restent par contre dégénérés. Les niveaux de l'atome d'hydrogène appartenant à un nombre quantique principal  $n$  sont donc partagés en  $n(n+1)/2$  sous-niveaux dans un champ électrique.

On considère un atome d'hydrogène placé dans un champ électrique statique tout en négligeant les interactions relativistes et radiatives et en ignorant le spin de l'électron. On prend comme point de départ les états propres  $|nlm\rangle$  connus pour un champ électrique nul. En appliquant un champ électrique  $F$  dans la direction  $z$ , l'électron va voir un potentiel donné par:

$$V = -\frac{1}{r} + Fz \quad (\text{II - 18})$$

et l'Hamiltonien du problème est donné par:

$$H = -\frac{1}{2} \nabla^2 - \frac{1}{r} + Fz \quad (\text{II - 19})$$

En utilisant les états de champ nul  $|nlm\rangle$ , on calcule les éléments de matrice  $\langle n'l'm'|Fz|n'l'm\rangle$  pour la perturbation Stark sur l'Hamiltonien à champ nul. En choisissant  $z$  comme axe de quantification on peut écrire les éléments de matrice en coordonnées sphériques:

$$\langle n'l'm'|Fz|n'l'm\rangle = F \langle n'l'm'|r \cos\theta|n'l'm\rangle \quad (\text{II - 20})$$

En utilisant les propriétés des fonctions sphériques harmoniques angulaires on sait que les éléments de matrice de  $Fz$  ne sont non nuls que si  $m'=m$  et  $l'=l\pm 1$ . L'effet le plus évident est que le champ lève la dégénérescence entre les niveaux  $lm$  d'un niveau  $n$  donné. En négligeant le couplage dipolaire entre états de différents  $n$ , on trouve que les valeurs propres du Hamiltonien sont toutes proportionnelles à  $F$ . L'atome d'hydrogène présente donc un déplacement Stark linéaire. Comme toutes les valeurs propres sont proportionnelles à  $F$ , les vecteurs propres sont indépendants de  $F$  et les états Stark sont donc des combinaisons linéaires indépendantes du champ externe d'états  $l$  correspondants à un champ nul de mêmes valeurs de  $n$  et  $m$ . Le fait que ces états Stark ont un déplacement Stark linéaire démontre qu'ils possèdent des moments dipolaires électriques permanents, et est une propriété unique au potentiel Coulombien central.

La façon la plus simple de traiter l'effet Stark rigoureusement est de poser le problème en coordonnées paraboliques, comme en coordonnées paraboliques le problème reste séparable même en présence du champ électrique externe [BET 57], [LAN 77], [LUC 80]. Ces coordonnées sont données par:

$$\begin{aligned}
 x &= \sqrt{\xi\eta} \cos \phi \\
 y &= \sqrt{\xi\eta} \sin \phi \\
 z &= (\xi - \eta)/2 \\
 r &= (\xi + \eta)/2
 \end{aligned}
 \tag{II - 21}$$

L'équation de Schrödinger en coordonnées paraboliques pour un électron tournant autour d'un ion en présence d'un champ électrique externe suivant la direction z s'écrit:

$$\left[ -\frac{\nabla^2}{2} - \frac{2}{\xi + \eta} + \frac{F(\xi - \eta)}{2} \right] \psi = E\psi
 \tag{II - 22}$$

La solution à ce problème s'écrit sous la forme d'un produit:

$$\Psi(\xi, \eta, \phi) = \sqrt{\frac{1}{\xi\eta}} u_1(\xi) u_2(\eta) e^{im\phi}
 \tag{II - 23}$$

où les fonctions  $u_1$  et  $u_2$  satisfont deux équations différentielles indépendantes:

$$\begin{aligned}
 \frac{d^2 u_1}{d^2 \xi} + [k_1(\xi)]^2 u_1 &= 0 \\
 \frac{d^2 u_2}{d^2 \eta} + [k_2(\eta)]^2 u_2 &= 0
 \end{aligned}
 \tag{II - 24}$$

avec:

$$\begin{aligned}
 [k_1(\xi)]^2 &= \frac{E}{2} + \frac{Z_1}{\xi} + \frac{1 - m^2}{4\xi^2} - \frac{F}{4} \xi \\
 [k_2(\eta)]^2 &= \frac{E}{2} + \frac{Z_2}{\eta} + \frac{1 - m^2}{4\eta^2} + \frac{F}{4} \eta
 \end{aligned}
 \tag{II - 25}$$

Il devient évident que le signe de  $m$  n'a pas d'influence sur le problème et donc que les fonctions d'onde pour  $\pm m$  sont dégénérées, comme on peut s'y attendre pour un problème à symétrie cylindrique. Dans les équations (II-25) les paramètres de séparation  $Z_1$  et  $Z_2$  sont

reliés par la relation  $Z_1 + Z_2 = 1$ , et peuvent être considérés comme étant les charges positives liant l'atome selon les coordonnées  $\xi$  et  $\eta$ . En champ zéro, les fonctions  $u_1$  et  $u_2$  sont des polynômes de Laguerre d'ordre  $n_1$  et  $n_2$ , qui sont connus en tant que nombres quantiques paraboliques [BET 57] et sont liés au nombre quantique principal  $n$  et au nombre quantique magnétique  $m$  par la relation suivante:

$$n_1 + n_2 + |m| + 1 = n \quad (\text{II - 26})$$

$n_1$  et  $n_2$  représentent le nombre de noeuds des fonctions d'onde  $u_1$  et  $u_2$ . On peut résoudre les équations (II-24) à n'importe quel ordre du champ électrique externe. On trouve ainsi pour l'énergie au deuxième ordre l'expression [BET 57]:

$$E = -\frac{1}{2n^2} + \frac{3}{2} n(n_1 - n_2) F - \frac{1}{16} n^4 [17n^2 - 3(n_1 - n_2)^2 - 9m^2 + 19] F^2 \quad (\text{II - 27})$$

Il apparaît clairement dans cette formule que c'est le déplacement Stark d'énergie au second ordre qui lève la dégénérescence en  $m$ . Sur la figure II-2 représentant les niveaux Stark autour de  $n=10$  de l'atome d'hydrogène, on voit que c'est l'effet Stark linéaire qui prédomine, bien qu'on remarque la courbure des niveaux due à des termes d'ordres supérieurs pour des champs électriques importants.

Sur la même figure on voit que, même si la résolution est pas énorme, les niveaux des multiplicités  $n$  et  $n+1$  se croisent. Le fait que ces niveaux se croisent tout en ayant des valeurs identiques pour  $m$  provient qu'en utilisant les coordonnées paraboliques on parvient à diagonaliser le vecteur de Runge-Lenz, qui possède différentes valeurs propres pour les états se croisant [FAB 80], [KLE 83]. Ce vecteur de Runge-Lenz est en mécanique classique une constante du mouvement qui est spécifique au mouvement Keplerien, et qui signifie que la trajectoire suivie est fermée au bout d'une révolution. Il est en mécanique quantique donné par l'expression suivante:

$$\mathbf{M} = \mathbf{p} \times \mathbf{L} - \frac{\mathbf{r}}{r} \quad (\text{II - 28})$$

La symétrie dynamique propre au champ Coulombien est préservée dans un champ électrique externe, et la constante du mouvement, qui est la composante  $z$  du vecteur de Runge-Lenz, correspond physiquement à un moment dipolaire permanent.

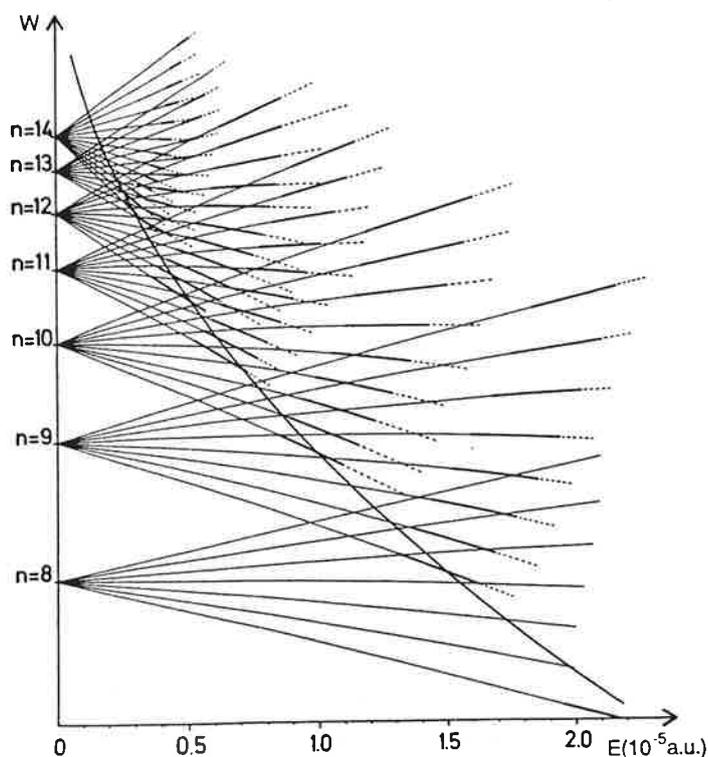


Figure II-2: Représentation de la structure Stark calculée pour les niveaux autour de la multiplicité  $n=10$  pour l'atome d'hydrogène [LUC 80]. Sur cette figure, la valeur du champ classique d'ionisation est représentée. Au delà de celle-ci, les états sont élargis par le champ (traits gras), pour ioniser à des valeurs de champ plus élevées (traits pointillés).

### 1 - b - Structure Stark pour les alcalins

Les atomes différents de l'atome d'hydrogène ont des caractéristiques qui sont essentiellement similaires à celles de l'hydrogène dans un champ électrique externe. Néanmoins il existe quelques différences importantes qui sont dues à la présence d'un cœur possédant une certaine taille. Le traitement théorique qui marchait si bien pour l'hydrogène ne fonctionne plus pour les autres atomes à un électron de valence, puisque l'Hamiltonien donné par la formule (II-19) n'est séparable que pour un potentiel purement Coulombien. Heureusement il existe quelques possibilités d'approximation pour traiter correctement l'effet Stark. Celles-ci sont basées sur l'observation suivante: Le potentiel subi par l'électron de valence dans un atome neutre se rapproche de  $-1/r$  pour  $r$  suffisamment grand. Pour les alcalins cette distance  $r$  limite est de l'ordre du rayon du cœur, donc typiquement quelques Angströms. Les électrons excités

d'atomes de Rydberg passent leur plus grande partie du temps à des grandes distances ( $r \approx n^2$ ), où les fonctions d'onde peuvent être correctement représentées par les fonctions Coulombiennes [BAT 49].

Pour calculer la structure Stark d'un alcalin, donc les valeurs propres de l'Hamiltonien II-19, il n'existe pas de solution générale, il faut donc résoudre ce problème numériquement. L'approche que nous avons utilisé a été décrite par Zimmerman et al. [ZIM 79]. On débute le problème en prenant une base de fonctions Coulombiennes  $|Elm\rangle$  pour un champ nul où  $E = -1/2 (n - \delta_l)^2$  et on diagonalise l'Hamiltonien en choisissant un ensemble de fonctions de base convenable.

*α) Méthode de calcul*

L'Hamiltonien non diagonalisé possède les éléments diagonaux suivants:

$$\langle nlm | H | nlm \rangle = \frac{1}{2(n - \delta_l)^2} \quad (\text{II - 29})$$

et les éléments non diagonaux  $\langle n' l \pm 1 m | F_z | n l m \rangle$  qui doivent être calculés. Ces termes non diagonaux peuvent s'écrire sous une autre forme:

$$\langle n' l' m' | F_r \cos \theta | n l m \rangle = \delta_{m, m'} \delta_{l, l+1} F \langle l' m | \cos \theta | l m \rangle \langle n' l' | r | n l \rangle \quad (\text{II - 30})$$

L'élément de matrice angulaire vaut:

$$\langle l + 1 m | \cos \theta | l m \rangle = \sqrt{\frac{(l + 1)^2 - m^2}{(2l + 3)(2l + 1)}} \quad (\text{II - 31})$$

Le problème majeur consiste donc à calculer les éléments de matrice radiale:

$$R^j = \langle n' l' | r^j | n l \rangle \quad (\text{II - 32})$$

Un certain nombre de méthodes, exploitant les propriétés Coulombiennes des fonctions propres, existent pour évaluer ces éléments de matrice, dont des méthodes semiclassiques, des expansions polynômiales ou des intégrations numériques. Ce sont ces dernières qui semblent donner les résultats les plus satisfaisants, et au contraire à d'autres méthodes il est facile d'ajouter des perturbations à longue portée au potentiel central, comme par exemple la structure fine ( $\sim r^{-3}$ ) ou la polarisation du coeur ( $\sim r^{-4}$ ).

Pour intégrer ces éléments de matrice, on utilise le plus souvent l'algorithme de Numerov. Celui-ci permet une intégration numérique rapide et précise, l'erreur relative maximale étant inférieure à  $10^{-4}$ . L'erreur limitant la précision des calculs se révèle souvent comme étant l'erreur expérimentale sur les défauts quantiques, erreur diluée sur tous les états Stark à cause de la présence d'un faible nombre d'états ayant un défaut quantique important. La structure Stark peut donc généralement être calculé à un degré de précision supérieur aux mesures spectroscopiques des états en champ nul.

Les éléments de matrice radiale ayant été calculés, il ne reste plus qu'à diagonaliser la matrice Hamiltonienne, ce qui est une tâche évidente pour un ordinateur, tâche uniquement limité par la mémoire de celui-ci.

### *β) Résultats*

Sur la figure II-3 on montre le résultat d'un tel calcul pour la structure Stark de l'atome de césium aux alentours de la multiplicité  $n=15$ . Pour les alcalins lourds la structure fine devient de plus en plus importante et elle ne peut donc plus être négligée dans les calculs de l'effet Stark exposés auparavant. La méthode qu'on a utilisée pour nos calculs est de calculer les éléments de matrice de l'interaction Stark dans la base  $J$  où  $j=l\pm 1$ . En effet, dans le cas d'une structure fine importante c'est  $|m_j|$  qui devient un meilleur nombre quantique que  $|m_l|$  et chaque multiplicité devient donc un mélange d'états avec  $m_l=m_j\pm 1$ . La procédure de calcul reste la même, mais le nombre d'états nécessité pour la diagonalisation va doubler.

Sur le diagramme Stark de la figure II-3 on voit la multiplicité linéaire  $n=15$  qui est à peu près hydrogénique pour des champs électriques pas trop élevés. Entre les multiplicités linéaires correspondants à des valeurs de  $n$  différentes, on remarque clairement les états de faibles valeurs de  $l$  (états s, p, d), qui ont des défauts quantiques importants. Ces états suivent un faible déplacement Stark qui semble quadratique pour de faibles valeurs du champ

électrique, pour des valeurs où ils commenceraient à croiser les multiplicités linéaires leur déplacement devient de plus en plus important.

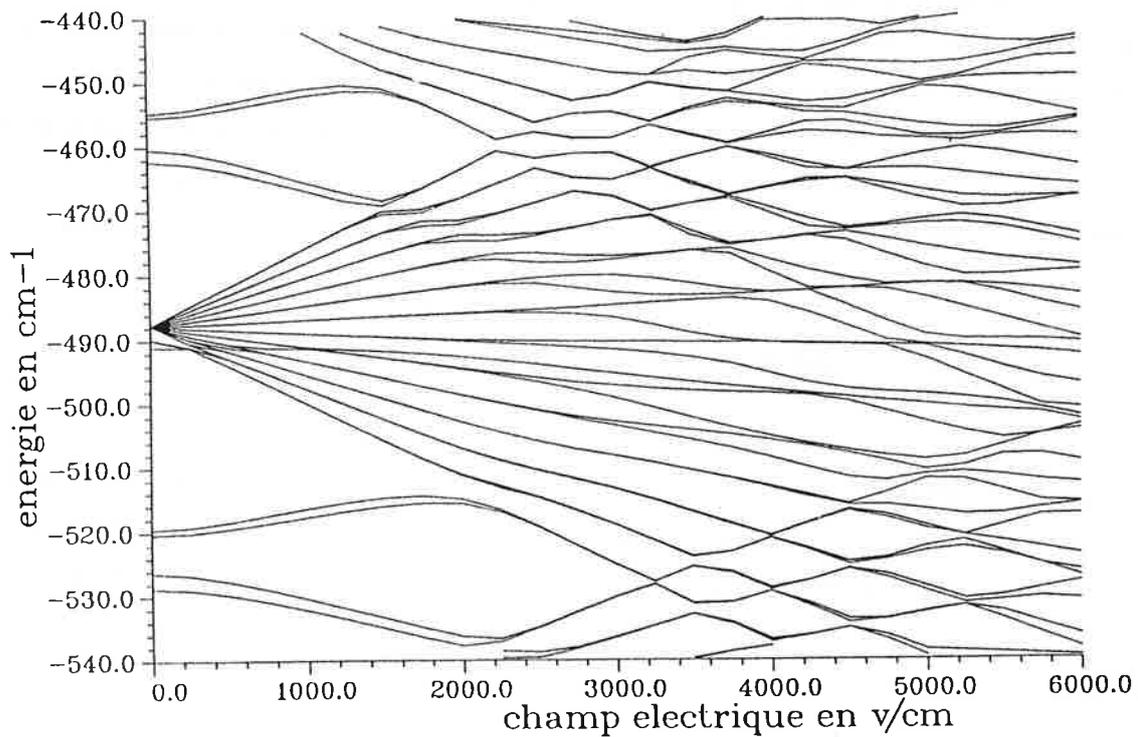


Figure II-3: Diagramme Stark, sur lequel est indiquée l'allure des niveaux d'énergie d'un atome de Rydberg de césium en fonction d'un champ électrique statique (champ Stark). Les niveaux représentés se trouvent autour de la multiplicité linéaire  $n=15$ .

Une différence importante par rapport à l'atome d'hydrogène est le fait que les niveaux d'énergie ayant des valeurs de  $n$  différentes ne se croisent plus, mais se repoussent mutuellement. Les niveaux se repoussants perdent donc complètement leur caractère qu'ils avaient en champ faible. Ainsi il ne suffit plus de connaître l'énergie et la pente d'un état en champ élevé pour identifier ses nombres quantiques en champ nul, mais il est nécessaire de calculer une carte Stark pour faire la correspondance entre états en champ faible et élevé. On voit apparaître sur cette carte Stark de nombreux croisements évités, qui indiquent qu'il y a des couplages entre les différents niveaux d'énergie. C'est ce point, qui fera l'objet d'expériences spectroscopiques, que je développerai théoriquement dans la partie suivante.

## II - 3 - 2 - Couplage entre différents niveaux

Dans le paragraphe précédent, on a pu voir qu'il existe de nombreuses similitudes entre la structure Stark de l'hydrogène et des alcalins. Néanmoins la dimension finie du coeur des alcalins induit quelques différences notable, dont une que je vais développer dans cette partie. Ainsi je commencerai à donner les particularités des couplages entre états et donc des croisements évités pour le cas de l'hydrogène suivi par le cas de l'atome de césium, pour ensuite traiter ces croisements évités et leur comportement dynamique en plus de détail.

### 2 - a - Croisements évités pour l'hydrogène

La structure Stark de l'hydrogène fournit un bon point de départ pour comprendre la structure des atomes de Rydberg alcalins [KLE 83]. Pour l'atome d'hydrogène dans un champ électrique, on a pour Hamiltonien, en négligeant des interactions relativistes et radiatives:

$$H = -\frac{1}{2} \nabla^2 + V(r) + Fz, \quad \text{avec } V(r) = -\frac{1}{r} \quad (\text{II - 33})$$

$V(r)$  représente le potentiel Coulombien du coeur ionique, et le dernier terme décrit l'interaction de l'électron avec un champ électrique dirigé selon l'axe  $z$ . Ce problème est séparable en coordonnées paraboliques [BET 57]. Les états subissent un effet Stark au premier ordre et se retrouvent donc dans des multiplicités linéaires. En plus, des dégénérescences entre les différents niveaux sont permis, et ceci même pour des valeurs identiques de  $m$ . En effet c'est cette propriété, qui est une conséquence d'une symétrie spéciale du potentiel purement Coulombien, qui autorise les niveaux Stark de l'hydrogène à se croiser. Donc pour l'atome d'hydrogène, dans l'approche non-relativiste, les niveaux Stark de même  $m$  vont se croiser [HAT 77] contrairement au cas normal où le théorème de "non-croisement" s'applique, et on n'assistera à aucun croisement évité.

### 2 - b - Croisements évités pour le césium

A cause de la dimension finie du coeur ionique de l'atome de césium, comme pour tout alcalin, le potentiel  $V(r)$  senti par l'électron de valence n'est plus tout à fait Coulombien, contrairement au cas de l'atome d'hydrogène. Cette perturbation du potentiel Coulombien

conduit à ce que le problème n'est plus séparable, et les niveaux ayant même valeur pour  $|m_j|$  ne peuvent généralement plus se croiser. Tous les croisements sont donc transformés en croisements évités. Si la perturbation n'est que faible, la largeur des croisements évités est petite, disparaissant si la perturbation tend vers zéro.

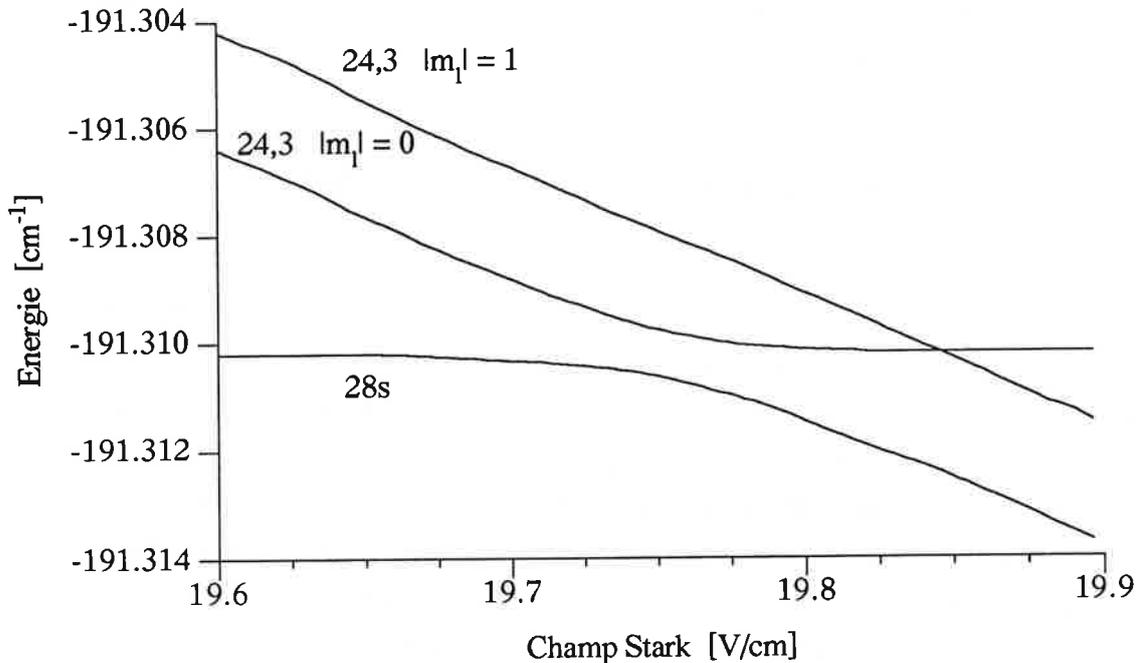


Figure II-4: Croisements évités entre les niveaux  $28s$  et  $24,3 |m_l| = 0$  ( $24f_{5/2}$ ), resp.  $24,3 |m_l| = 1$  ( $24f_{7/2}$ ).

La structure fine des états  $p$  et  $d$  du césium est trop importante pour pouvoir être négligée, et ceci a comme conséquence que  $|m_j|$  est d'avantage un bon nombre quantique que  $|m_l|$  et  $|m_s|$ . Chaque multiplicité est un mélange d'états avec  $m_l = m_j \pm 1/2$ . A ce niveau, il convient de définir trois régimes de champ électriques. Les champs faibles sont ceux pour lesquels l'effet Stark est plus faible que la structure fine ou l'écart induit par l'interaction spin-orbite. Pour les champs intermédiaires, l'effet Stark est plus grand que la structure fine mais toujours plus faible que la séparation  $\Delta n$  entre les multiplicités voisines  $n$  et  $n+1$ . Les champs forts sont ceux pour lesquels l'effet Stark devient plus important que la séparation  $\Delta n$ . Dans le régime des champs forts, les répulsions entre deux multiplicités sont induites par l'interaction de structure fine des états de faibles moments angulaires  $l$  étant mélangés. Celles-ci sont assez importantes pour causer de très larges croisements évités. A des champs moins élevés, on observe dans le cas du césium des croisements évités entre le niveau  $(n+4)s$  et la multiplicité  $n$  voisine (voir figure II-3). Dans cette région des champs faibles,  $m_l$  et  $m_s$  sont presque de bons nombres quantiques, parce que les états  $np$ , qui présentent le couplage spin-orbite le plus

important, sont encore assez distants énergétiquement des multiplicités Stark. Ceci est clairement démontré sur un agrandissement d'un tel croisement évité (figure II-4). Le croisement évité de l'état s avec le niveau  $|m_l| = 0$  est clairement visible, tandis que le croisement évité avec le niveau  $|m_l| = 1$  est extrêmement petit, indiquant que pour ces états dans de tels champs,  $|m_l|$  est presque un bon nombre quantique. Si l'interaction de structure fine n'est pas incluse, l'état s croise l'état  $|m_l| = 1$  de la multiplicité. C'est pour cela que le tout petit croisement évité est dû rien qu'à l'interaction spin-orbite. Ceci explique la largeur relativement étroite, comparée à l'autre croisement évité qui lui est provoqué par l'interaction entre l'électron Rydberg et le coeur ionique.

## 2 - c - Notions théoriques sur les croisements évités

Les passages non-adiabatiques aux croisements évités entre courbes de potentiels ont toujours joué un rôle fondamental dans l'étude de collisions moléculaires inélastiques. Le cas le plus élémentaire, celui d'une transition dans un croisement évité entre deux niveaux qui sont traversés linéairement dans le temps, a été analysé durant les débuts de la mécanique quantique par Landau et Zener [LAN 32], [ZEN 32], [LAN 77], et est connu sous le nom d'effet Landau-Zener. L'effet Landau-Zener peut être d'importance dans des systèmes atomiques. Le passage rapide non-adiabatique, par exemple, est correctement décrit par la théorie Landau-Zener. De même il a été démontré que des transitions non-adiabatiques entre différents états de Rydberg dans un champ électrique à temps de montée rapide sont capables d'influencer le comportement au seuil dans l'ionisation par champ électrique pulsé [GAL 76a,77], [JEY 80], [VIA 79].

### *c) L'effet Landau-Zener*

Avant de discuter le comportement dynamique au niveau d'un croisement évité, il serait peut-être utile de récapituler les traits les plus importants de cette théorie [RUB 81], [COH 92]. Nous nous intéressons à un système dont l'Hamiltonien dépend de quelque paramètre variable  $q$ , qui pourrait par exemple être la séparation internucléaire des deux atomes ou bien l'amplitude d'un champ électrique ou magnétique appliqué. D'un intérêt tout particulier seraient deux états propres du système dont les niveaux d'énergie se croisent à première approximation pour une certaine valeur de  $q$ , tout comme sur la figure II-5a. Si l'Hamiltonien est perturbé par une interaction  $\vartheta$  qui couple les différents niveaux, la dégénérescence au niveau du croisement est levée. Les niveaux se repoussent, comme sur la figure II-5b, en accordance avec le théorème de "non-croisement" [HAT 77].

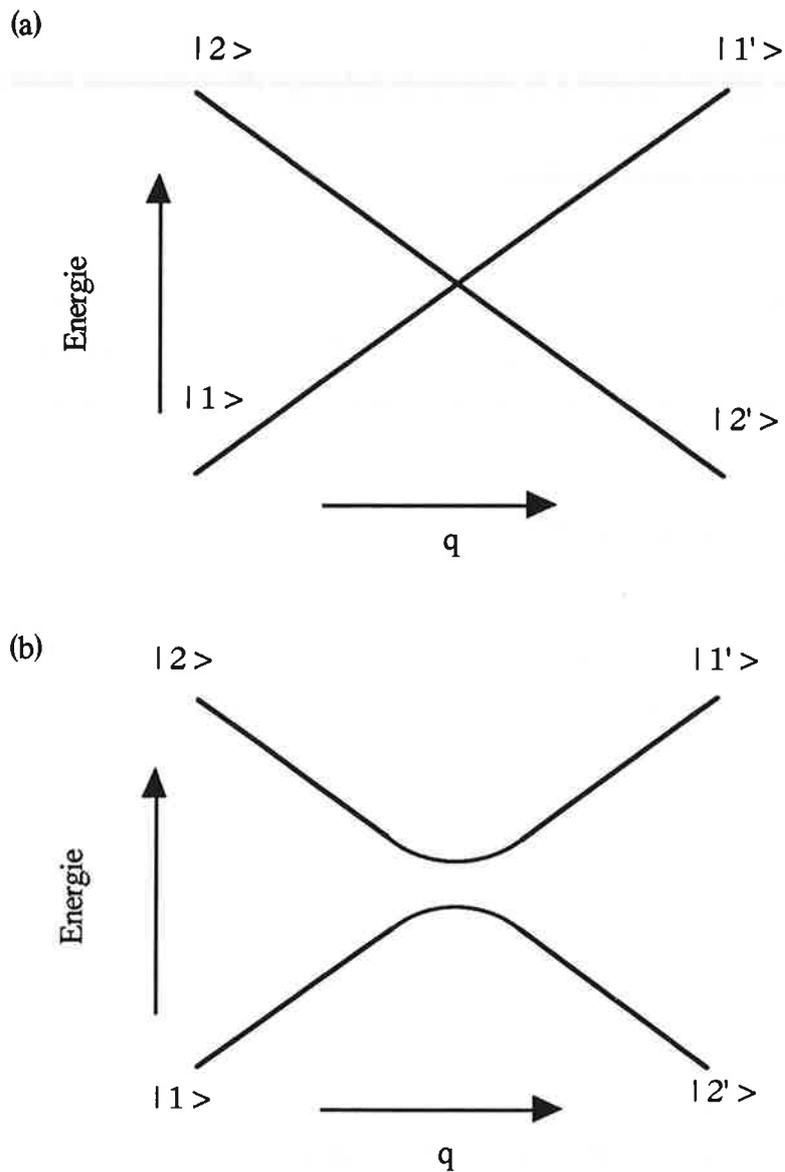


Figure II-5: Energie d'un système à deux niveaux en fonction du paramètre  $q$ . (a) Energies non-perturbées. (b) Un croisement évité.

Considérons un système initialement préparé dans l'état  $|2\rangle$  de la figure II-5b. Si  $q$  augmente alors en fonction du temps, balayant ainsi les énergies à travers le croisement évité, le système va-t-il finalement se retrouver dans l'état  $|2'\rangle$  ou bien dans l'état  $|1'\rangle$  ? Si l'on prend le cas le plus simple, pour lequel la différence en énergie des deux niveaux non perturbés  $E = E_1 - E_2$  varie linéairement avec  $q$ , comme sur la figure II-5b, et  $q$  variant en même temps linéairement avec le temps, la probabilité pour que le système fasse une transition de  $|2\rangle$  vers  $|2'\rangle$  en traversant le croisement évité est de:

$$P = \exp\left(-2\pi \frac{|\vartheta_{12}|^2}{\hbar \left(\frac{dE}{dt}\right)}\right). \quad (\text{II} - 34)$$

Ici  $\vartheta_{12}$  correspond à l'élément de matrice de la perturbation  $\vartheta$  connectant les deux états, et  $dE/dt = (dE/dq)(dq/dt)$  à la vitesse de balayage du croisement évité. De toute évidence, le comportement au croisement évité dépend de la pente des niveaux d'énergie et de la façon de laquelle  $q$  change par rapport à  $|\vartheta_{12}|$ .

A la limite  $\vartheta_{12} \rightarrow 0$ , on a  $P \rightarrow 1$ , et on dit que le croisement est traversé diabatiquement. Dans le cas contraire, où  $|\vartheta_{12}|^2/h$  devient très grand comparé à la vitesse de balayage de l'énergie, on a  $P \rightarrow 0$  et le croisement est traversé adiabatiquement.

### *β) Position du problème*

Considérons un système à deux niveaux qui est gouverné par un Hamiltonien  $H_0(q)$  qui dépend explicitement du paramètre  $q$ . Nous choisissons pour base le système des deux états propres  $|1\rangle$  et  $|2\rangle$  de l'Hamiltonien  $H_0$  de valeurs propres respectives  $\Omega_1(q)$  et  $\Omega_2(q)$ :

$$H_0 |1\rangle = \Omega_1(q) |1\rangle \quad (\text{II - 35})$$

$$H_0 |2\rangle = \Omega_2(q) |2\rangle$$

Ici  $\Omega_1(q)$  et  $\Omega_2(q)$  sont les valeurs propres en énergie exprimées en unités de fréquence. Cette base est orthonormée. Nous supposons que les vecteurs propres  $|1\rangle$  et  $|2\rangle$  ne dépendent pas de  $q$  et que  $H_0(q)$  possède une symétrie quelconque permettant une dégénérescence des niveaux d'énergie pour une certaine valeur de  $q$ . Dans la région de ce croisement, les niveaux d'énergie sont supposés varier linéairement avec  $q$ , ce qui est indiqué en lignes hachurées sur la figure II-6.

Considérons l'effet d'une perturbation  $V$  (perturbation extérieure ou d'interactions internes) qui brise la symétrie de  $H_0$ . L'Hamiltonien total devient donc:

$$H = H_0 + V \quad (\text{II - 36})$$

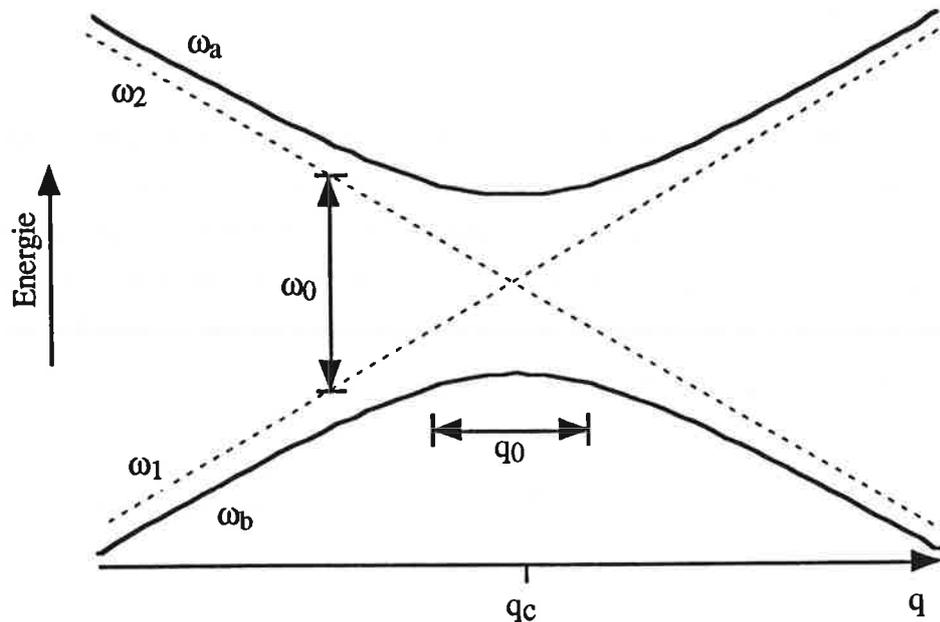


Figure II-6: Variations des énergies du système à deux niveaux en fonction du paramètre  $q$ . En l'absence de couplage, les niveaux se croisent pour  $q=q_c$  (lignes hachurées). Sous l'effet du couplage non-diagonal  $V$ , les deux niveaux perturbés se repoussent et l'on obtient un croisement évité. Celui-ci est caractérisé par sa largeur  $q_0$  et sa séparation des niveaux d'énergie  $\omega_0$ .

Les états et valeurs propres de  $H$  seront désignés par  $|a\rangle$ ,  $|b\rangle$  et  $\omega_{a,b}$ :

$$H |a\rangle = \omega_a(q) |a\rangle \quad (\text{II - 37})$$

$$H |b\rangle = \omega_b(q) |b\rangle$$

$H_0$  est normalement appelé l'Hamiltonien non-perturbé, et  $V$  la perturbation, ou encore le couplage. On fait la supposition que  $V$  ne dépend pas du temps. Dans la base ordonnée  $\{|1\rangle, |2\rangle\}$ ,  $V$  est représenté par une matrice hermitique:

$$V = \begin{pmatrix} V_{11} & V_{12} \\ V_{21} & V_{22} \end{pmatrix} \quad (\text{II - 38})$$

$V_{11}$  et  $V_{22}$  sont réels. De plus:

$$V_{12} = V_{21}^* \quad (\text{II - 39})$$

Tout le problème consiste maintenant à évaluer les modifications du système qui apparaissent lorsqu'on introduit le couplage  $V$ . En général, les valeurs propres  $\omega_a$  et  $\omega_b$  de  $H$  différent de celles ( $\Omega_1, \Omega_2$ ) de  $H_0$ , il s'agit donc d'étudier l'effet du couplage sur la position des niveaux d'énergie. De plus,  $V$  induit des transitions entre les deux états non-perturbés, d'où le nom de couplage. Cet autre aspect, dynamique, du couplage par  $V$  constitue un autre, deuxième problème qui sera abordé un peu plus tard.

*γ) Effet du couplage sur les états stationnaires du système*

La matrice représentant  $H$  dans la base  $\{|1\rangle, |2\rangle\}$  s'écrit:

$$H(q) = \begin{pmatrix} \omega_1(q) & \frac{1}{2} \omega_0 e^{-i\phi} \\ \frac{1}{2} \omega_0 e^{i\phi} & \omega_2(q) \end{pmatrix} \quad (\text{II - 40})$$

avec:

$$\omega_1(q) = \Omega_1(q) + V_{11} \quad (\text{II - 41})$$

$$\omega_2(q) = \Omega_2(q) + V_{22}$$

$$\frac{1}{2} \omega_0 = |V_{12}|$$

$$V_{12} = \frac{1}{2} \omega_0 e^{-i\phi}, \quad 0 \leq \phi < 2\pi$$

Comme on a supposé  $V$  indépendant du temps,  $\omega_0$  se résume à une constante. En diagonalisant la matrice (II-40) on trouve pour valeurs propres:

$$\omega_a(q) = \frac{1}{2} \left\{ (\omega_1 + \omega_2) + [\omega(q)^2 + \omega_0^2]^{1/2} \right\} \quad (\text{II} - 42)$$

$$\omega_b(q) = \frac{1}{2} \left\{ (\omega_1 + \omega_2) - [\omega(q)^2 + \omega_0^2]^{1/2} \right\}$$

où  $\omega(q) = \omega_1(q) - \omega_2(q)$ .

Les niveaux d'énergie du système perturbé sont représentés par les lignes pleines sur la figure II-6. Lorsque  $q$  varie,  $\omega_a$  et  $\omega_b$  décrivent les deux branches d'une hyperbole symétrique, admettant pour asymptotes les deux droites associées aux niveaux non-perturbés et dont les deux sommets sont distants de  $\omega_0$ . D'après ce que l'on voit, le croisement évité peut être caractérisé par sa séparation des niveaux,  $\omega_0$  et par sa largeur  $q_0$  qui est définie par:

$$q_0 = \omega_0 \left( \frac{d\omega}{dq} \right)_{q_c} \quad (\text{II} - 43)$$

où  $d\omega/dq$  est pris à la valeur  $q_c$  de  $q$ , pour laquelle les deux niveaux non-perturbés  $|1\rangle$  et  $|2\rangle$  se croisent, ce qui détermine la position du croisement évité ( $\omega(q_c) = 0$ ).

Les vecteurs propres associés à  $\omega_a$  et  $\omega_b$  s'expriment facilement en fonction de la phase  $\phi$  définie par (II-41) et par le paramètre  $\theta$  qu'on définit par:

$$\tan \theta(q) = \frac{\omega_0}{\omega(q)}, \quad 0 \leq \theta < \pi \quad (\text{II} - 44)$$

Ceci nous donne pour un couple de vecteurs propres orthonormaux de  $H$ :

$$|a(q)\rangle = \cos \left( \frac{\theta(q)}{2} \right) e^{-i\phi/2} |1\rangle + \sin \left( \frac{\theta(q)}{2} \right) e^{i\phi/2} |2\rangle \quad (\text{II} - 45)$$

$$|b(q)\rangle = -\sin \left( \frac{\theta(q)}{2} \right) e^{-i\phi/2} |1\rangle + \cos \left( \frac{\theta(q)}{2} \right) e^{i\phi/2} |2\rangle$$

En l'absence de tout couplage, les énergies  $\omega_1$  et  $\omega_2$  des deux niveaux se croisent pour  $\omega(q_c) = 0$ . Sous l'effet du couplage, à ce que l'on voit clairement sur la figure II-6, les niveaux se repoussent, c'est-à-dire que les valeurs des énergies propres s'éloignent l'une de l'autre. Pour cette raison ce phénomène est souvent appelé anticroisement. L'effet du couplage est beaucoup plus important lorsque les deux niveaux non-perturbés ont même énergie: cet effet se fait alors sentir au premier ordre, alors qu'il ne commence à agir qu'au deuxième ordre lorsque  $\omega(q) \gg \omega_0$ .

En regardant la formule (II-44), on voit que pour  $\omega(q) \ll \omega_0$  (couplage fort),  $\theta \approx \pi/2$ ; tandis que pour  $\omega(q) \gg \omega_0$  (couplage faible),  $\theta \approx 0$ . Donc au centre du croisement évité  $\omega_1 = \omega_2$  ( $\omega(q_c) = 0$ ), on trouvera:

$$|a(q_c)\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} [e^{-i\phi/2} |1\rangle + e^{i\phi/2} |2\rangle] \quad (\text{II - 46})$$

$$|b(q_c)\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} [-e^{-i\phi/2} |1\rangle + e^{i\phi/2} |2\rangle]$$

alors que près des asymptotes, il vient au premier ordre en  $\omega_0/\omega(q)$ :

$$|a(q)\rangle = e^{-i\phi/2} \left[ |1\rangle + e^{i\phi} \frac{\omega_0}{2\omega(q)} |2\rangle + \dots \right] \quad (\text{II - 47})$$

$$|b(q)\rangle = e^{i\phi/2} \left[ |2\rangle + e^{-i\phi} \frac{\omega_0}{2\omega(q)} |1\rangle + \dots \right]$$

Donc pour un couplage faible, les états perturbés sont très peu différents des états non-perturbés: on voit en effet en examinant les formules (II-47) que  $|a\rangle$  est égal à l'état  $|1\rangle$  légèrement contaminé par une faible contribution de l'état  $|2\rangle$ . Par contre, pour un couplage fort, les états  $|a\rangle$  et  $|b\rangle$  sont très nettement différents des états  $|1\rangle$  et  $|2\rangle$ , puisqu'ils en sont des superpositions linéaires avec des coefficients de même module.

### *γ) Aspect dynamique du problème*

Etudions les effets que peut avoir une variation de  $q$  avec le temps. Le système est décrit par l'équation de Schrödinger dépendante du temps:

$$H |\psi(t)\rangle = i\hbar \frac{\partial |\psi(t)\rangle}{\partial t} \quad (\text{II - 48})$$

Cette équation peut être résolue par un vecteur d'état du type:

$$|\psi(t)\rangle = C_1(t) \exp\left(-i \int_0^t \omega_1 dt'\right) |1\rangle + C_2(t) \exp\left(-i \int_0^t \omega_2 dt'\right) |2\rangle \quad (\text{II - 49})$$

En substituant l'équation (II-49) dans l'équation (II-48) et en utilisant (II-41) on obtient un système linéaire d'équations différentielles homogènes couplées:

$$i\dot{C}_1 = \frac{1}{2} \omega_0 e^{-i\phi} \exp\left(i \int_0^t \omega dt'\right) C_2 \quad (\text{II - 50})$$

$$i\dot{C}_2 = \frac{1}{2} \omega_0 e^{i\phi} \exp\left(-i \int_0^t \omega dt'\right) C_1$$

Celles-ci peuvent être découplées pour donner finalement:

$$\ddot{C}_1 - i \omega(t) \dot{C}_1 + \frac{\omega_0^2}{4} C_1 = 0, \quad (\text{II - 51})$$

$$\ddot{C}_2 + i \omega(t) \dot{C}_2 + \frac{\omega_0^2}{4} C_2 = 0.$$

Considérons notre système dans l'état initial  $|b_i\rangle$  au temps  $t_i$ , où  $b_i = b(q_i)$ . Nous nous intéressons à l'évolution du système durant l'intervalle de temps allant de  $t_i$  à  $t_f$ , et pendant lequel le paramètre  $q$  change de  $q_i$  à  $q_f$ . La probabilité de retrouver le système dans l'état final  $|a_f\rangle$ , donc que le système ait fait une transition adiabatique de  $|b\rangle$  vers  $|a\rangle$ , est:

$$P = \left| \langle \psi(t_f) | a_f \rangle \right|^2 \quad (\text{II - 52})$$

Pour le cas où  $q$  varie linéairement avec le temps, et donc  $d\omega/dt$  est constant, le système linéaire d'équations différentielles homogènes découplées peut être résolu. Ceci nous donne comme résultat, pour le cas de la limite  $t_i \rightarrow -\infty$ ,  $t_f \rightarrow +\infty$ :

$$P = e^{-2\pi\Gamma} \quad (\text{II - 53})$$

avec:

$$\Gamma = \frac{\omega_0^2}{4 \left(\frac{d\omega}{dt}\right)} = \frac{|V_{12}|^2}{\frac{d\omega}{dt}} \quad (\text{II - 54})$$

*e) Correction de la formule Landau - Zener*

En pratique, les suppositions faites auparavant pour la théorie Landau-Zener ne sont jamais complètement satisfaites. Par exemple, on peut avoir des conditions initiales quelconques, ou bien  $q(t)$  peut ne pas varier linéairement mais arbitrairement. En intégrant numériquement les équations (II-51), on peut trouver des solutions pour ces cas donnés. On trouve alors que la probabilité de transition ne dépend pas que du seul paramètre  $\Gamma$ , mais aussi d'un second paramètre  $d$  qui vaut:

$$d = \frac{s}{\Gamma} = \frac{2 \left(\frac{d\omega}{dt}\right) \tau}{\omega_0} \quad (\text{II - 55})$$

où  $\tau$  est le temps durant lequel on applique la rampe de champ utilisée pour le passage à travers le croisement évité. Le cas  $d \rightarrow \infty$  se résume simplement au cas Landau-Zener, et on peut écrire la probabilité de transition comme une fonction  $P(\Gamma, d)$ , avec:

$$P(\Gamma, \infty) = e^{-2\pi\Gamma} \quad (\text{II - 56})$$

## II - 3 - 3 - Ionisation par champ électrique

Le fait de pouvoir ioniser un atome de Rydberg à l'aide d'un champ électrique externe est d'une grande importance pour l'étude des atomes de Rydberg eux-mêmes. Il y a donc de nombreuses raisons pour comprendre l'ionisation par champ en détail. Comme on l'a déjà vu pour la structure Stark l'atome d'hydrogène permet de comprendre plus facilement les propriétés des alcalins. Ainsi je commencerai à nouveau par détailler l'ionisation par champ pour l'hydrogène avant d'aborder le sujet pour les alcalins.

### 3 - a - Ionisation par champ pour l'atome d'hydrogène

L'atome d'hydrogène ne possède pas vraiment d'état stationnaire dans un champ électrique, son électron va inévitablement traverser la barrière Coulombienne par effet tunnel et être emporté par le champ externe. C'est ce processus qui est connu sous le nom d'ionisation par champ [KLE 83]. Pour des champs relativement faibles, ce processus de passage tunnel se fait tellement lentement que les états sont effectivement stationnaires. Le taux d'ionisation commence à devenir observable quand le taux de passage tunnel devient comparable au taux de désexcitation radiative. A un champ électrique plus élevé les états s'ionisent tellement rapidement qu'ils ne possèdent plus de caractère discret.

L'ordre de grandeur du champ électrique nécessité pour ioniser un atome de Rydberg peut être évalué en utilisant le potentiel combiné Coulomb-Stark:

$$V = -\frac{1}{r} + Fz \quad (\text{II - 57})$$

Celui-ci possède son point d'inflexion sur l'axe z pour  $z = -1/\sqrt{F}$  où le potentiel prend une valeur  $V = -2\sqrt{F}$ . [GAL 94] Si l'atome se trouve dans un état  $m=0$ , tel qu'il n'ait pas de potentiel centrifuge supplémentaire, et si l'électron est lié par une énergie E, un champ donné par:

$$F = \frac{E^2}{4} \quad (\text{II - 58})$$

va suffir pour ioniser classiquement l'atome de Rydberg. Ce champ est normalement appelé le champ classique d'ionisation. En ignorant le déplacement Stark de l'état Rydberg ayant le

nombre quantique principal  $n$ , et en écrivant son énergie en fonction de  $n$  on trouve l'expression familière pour le champ classique d'ionisation:

$$F = \frac{1}{16 n^4} \quad (\text{II - 59})$$

Ces résultats ne sont exacts que pour des états dont  $m=0$ , car pour des états de  $|m|$  plus élevé il existe un potentiel centrifuge qui tend à éloigner l'électron de l'axe  $z$  et ceci augmente le champ d'ionisation seuil nécessaire pour ioniser ces états.

Cette image classique décrite précédemment souffre malheureusement de deux défauts. Elle ignore premièrement les déplacements des niveaux par l'effet Stark. Deuxièmement, l'approche classique ne prend pas en compte la distribution spatiale des fonctions d'onde. Ainsi pour l'atome d'hydrogène, pour les états de même  $n$  et  $|m|$ , ceux ayant une énergie plus importante (les états bleus),  $n_1 - n_2 \approx n$ , nécessitent des champs électriques plus importants pour ioniser que ceux ayant une énergie plus faible (états rouges),  $n_2 - n_1 \approx n$ . Un argument physique simple pour ce phénomène est que l'électron est situé sur le côté de l'atome, éloigné du point d'inflexion du potentiel pour les états bleus, tandis que l'électron est adjacent au point d'inflexion pour les états rouges (voir figure II-2 représentant la structure Stark de l'atome d'hydrogène).

### 3 - b - Ionisation par champ pour les alcalins

Dans un alcalin il y a, au contraire de l'atome d'hydrogène, deux phénomènes contribuant à deux formes d'ionisation par champ différentes. La première forme d'ionisation est exactement la même que celle précédemment décrite pour l'atome d'hydrogène et le champ classique d'ionisation est donné par la formule (II-59). Dans cette forme d'ionisation, les états bleus nécessiteraient des champs plus élevés pour s'ioniser que les états rouges de même nombre quantique principal  $n$ .

La deuxième forme d'ionisation est très similaire à un processus d'autoionisation [LIT 78]. En suivant un certain niveau Stark pour l'atome d'hydrogène, on voit que de nombreux niveaux de multiplicités croisent celui-ci et ces niveaux peuvent avoir des largeurs extrêmement importantes dues à l'ionisation par champ. Ainsi en présence d'un champ électrique, chaque niveau Stark est entouré d'une multitude de niveaux qui peuvent être discrets

ou continus. Cette multitude de niveaux n'a aucun effet sur la dynamique du niveau Stark de l'hydrogène, puisque les états Stark ne se mélangent pas, une propriété qui résulte de la symétrie dynamique du potentiel Coulombien.

Toute perturbation de ce potentiel, qui peut par exemple être l'interaction avec le coeur d'un alcalin, détruit cette symétrie et force les niveaux Stark hydrogéniques à se mélanger. Ainsi dans un alcalin  $n_1$  n'est plus un bon nombre quantique et les états liés avec des grands  $n_1$  sont couplés au continuum Stark supérieur de  $n_1$  faible. Ainsi les états bleus d'une multiplicité vont ioniser à des champs inférieurs que pour l'atome d'hydrogène, car ils vont s'ioniser par un mélange aux états rouges de la multiplicité voisine qui se trouvent déjà dans le continuum. Les états Stark des alcalins présentent donc des seuils d'ionisation qui sont entre le seuil classique et celui de l'atome d'hydrogène [JAC 78].

### 3 - c - Aspects expérimentaux de l'ionisation par champ pulsé

La méthode d'ionisation par champ électrique est aujourd'hui très répandue pour détecter les atomes de Rydberg [DUN 83], car elle est très simple et efficace et peut être utilisée pour distinguer les états de Rydberg et donc déterminer l'état de Rydberg dans lequel se trouve un atome. Le plus souvent, le champ électrique est appliqué en tant qu'impulsion ayant un temps de montée allant de la nanoseconde à des microsecondes et le signal d'ion ou d'électron est mesuré [GAL 77], [JEY 80], [KEL 81]. En contrôlant l'amplitude du champ d'ionisation, on peut distinguer l'état final dans lequel s'ionise l'atome de Rydberg. Pour pouvoir correctement appliquer cette méthode de détection pour les états de Rydberg, il est donc nécessaire de comprendre ce qui se passe pour un atome quand le champ électrique pulsé croît de zéro jusqu'au champ ionisant. Ce point dépend complètement du temps de montée du champ pulsé, et peut donc varier en fonction de la forme de l'impulsion.

Considérons d'abord le cas de l'atome d'hydrogène, qui est un cas spécial. Comme les états de  $n$  et  $m$  identiques sont tous dégénérés en champ nul, on projette toujours les états initiaux  $|nlm\rangle$  sur des états  $|nn_1n_2m\rangle$  en appliquant le champ d'ionisation, la transition est donc toujours adiabatique. D'autre part, tant que le champ d'ionisation présente un temps de montée plus faible que l'intervalle  $\Delta n$ , l'atome d'hydrogène dans un état  $n_1$  restera toujours dans cet état  $n_1$  et l'ionisation aura toujours lieu à la même valeur de champ, quel que soit le temps de montée de celui-ci.

Le cas des alcalins diffère de celui de l'hydrogène et ceci est dû bien sûr à la présence du coeur de dimension finie. Pour un alcalin, à partir d'un champ  $F > 1/3n^5$  qui correspond au champ pour lequel se croisent deux multiplicités voisines, il existe des croisements évités entre les états de différents  $n$ . D'autre part, l'ionisation peut se passer à un champ bien plus faible que pour l'hydrogène. Ainsi pour l'hydrogène, les états bleus ont un seuil d'ionisation qui est supérieur à celui des états rouges de la même multiplicité. Ceci n'est pas le cas pour un alcalin puisque l'ionisation va induire un changement de  $n_1$  suite au mélange de niveaux.

Considérons pour illustrer le processus d'ionisation par champ, un alcalin dans un état de Rydberg  $|nlm\rangle$  donné. En champ faible  $l$  est un bon nombre quantique, la notion de champ faible dépendant naturellement de la valeur de  $l$ . Les champs intermédiaires sont ceux pour lesquels  $l$  n'est pas un bon nombre quantique, mais qui sont toujours inférieurs au champ de croisement entre multiplicités voisines  $F < 1/3n^5$ . Les champs forts sont ceux qui sont plus importants que cette valeur. Pour un champ dépassant  $F > E^2/4$  l'ionisation est classiquement permise et se produit par un couplage avec le continuum adjacent. Finalement pour des champs encore plus importants, les états s'ionisent comme pour l'atome d'hydrogène par effet tunnel.

La façon dont se produit l'ionisation va maintenant dépendre de la manière selon laquelle l'impulsion de champ croît de zéro jusqu'au champ nécessité pour l'ionisation. Si le champ électrique a un temps de montée suffisamment lent, le passage entre les états  $|nlm\rangle$  de champ nul aux états Stark de champ intermédiaires est adiabatique. Un état  $|nlm\rangle$  de champ nul évolue donc lentement en un seul état. Quand le champ électrique atteint une valeur  $1/3n^5$ , on rencontre des croisements évités avec des états Stark de même  $m$  mais de  $n$  voisins. Si le champ électrique croît suffisamment lentement, les croisements évités sont traversés de manière adiabatique, et l'atome reste dans le même niveau adiabatique d'énergie [GAL 77b]. Finalement quand le champ devient plus important que  $F = E^2/4$ , l'ionisation a lieu à cause du couplage avec les continus Stark composés d'états rouges  $n_1 \approx 0$  de nombre quantique principal  $n$  supérieur.

Si au contraire l'impulsion de champ présente un temps de montée rapide, un état de champ nul va être projeté sur différents états Stark et suivra plusieurs chemins d'ionisation. Dans ces conditions un état de Rydberg peut présenter plusieurs seuils d'ionisation différents, et il devient très difficile d'attribuer ces seuils à un état Stark bien déterminé. La méthode d'ionisation par champ perd donc de son efficacité de détection sélective [VIA 79], [JEY 80].

Jusqu'à présent on a négligé tout effet du spin de l'électron. Le couplage spin-orbite donne principalement lieu à deux effets: en champ nul, il divise les états  $l > 0$ , et en champ fort il change les croisements évités. Ce deuxième effet est négligeable dans les alcalins léger (Li et Na) comme la structure fine est relativement petite.

Ainsi en champ nul, les états propres sont donnés par les états  $||s_j m_j\rangle$  décrivant le couplage spin-orbite pour lesquels  $l$  et  $s$  sont couplés. Comment est-ce que ces états  $l m_l$  vont ils évoluer en appliquant le champ? Si le temps de montée est rapide il y aura un passage diabatique des états  $||s_j m_j\rangle$  vers les états non couplés  $||m_s m_s\rangle$  où les projections sur ceux-ci sont donnés par des coefficients  $3J$  ou des coefficients Clebsch-Gordon [JEY 82]. Si le champ au contraire n'est varié que lentement, on assiste à un passage adiabatique et chaque état  $||s_j m_j\rangle$  passe dans un seul autre état  $||m_s m_s\rangle$ . Dans ce cas l'ordre exact des niveaux et de leur seuil d'ionisation est plus compliqué.

Si on examine les effets du couplage spin-orbite sur les croisements évités à champ fort, il faut noter qu'avec le spin ce ne sont plus les projections  $m_s$  et  $m$  qui sont conservées séparément, mais la projection sur l'axe  $z$  du moment angulaire total  $m_j = m + m_s$  [GAL 77]. Pour les alcalins légers et l'hydrogène, le couplage spin-orbite est tellement faible que des croisements évités avec  $\Delta m \neq 0$  sont traversés diabatiquement et le spin peut être négligé. Déjà pour l'atome de potassium la séparation spin-orbite des états  $p$  est assez importante pour que les niveaux  $l m_l = 0$  et  $1$  soient couplés suffisamment fortement par l'interaction spin-orbite de telle manière à ce que les croisements évités ne puissent plus être traversés complètement diabatiquement. Ainsi ces états présentent de nombreux seuils d'ionisation. Ceci est aussi le cas pour toutes les valeurs de  $l m_l$  pour les atomes de rubidium et de césium, réduisant considérablement la sélectivité de la méthode de détection par ionisation par champ pulsé.

## II - 4 - Études spectroscopiques de croisements évités pour le césium

### II - 4 - 1 - Introduction

La dimension finie du coeur ionique des alcalins a comme conséquences plusieurs manifestations importantes qui influencent les propriétés générales des atomes alcalins. En champ nul, celle-ci conduit vers les défauts quantiques qui sont importants pour les états de faible moment angulaire  $l$ . Ces niveaux-ci sont déplacés en énergie et se retrouvent donc entre les multiplicités linéaires hydrogéniques. Dans un champ électrique, la dimension du coeur ionique induit un couplage entre niveaux voisins qui se croiseraient pour l'atome d'hydrogène (où il n'y a aucun couplage de ce genre). En dessous de la limite classique d'ionisation, ce couplage conduit à des croisements évités entre niveaux voisins et au-dessus, à l'ionisation par champ électrique des différents niveaux.

La position et la largeur de ces croisements évités et le comportement exact d'un atome de Rydberg en traversant ceux-ci en présence d'un champ électrique pulsé, détermine en grande partie le chemin d'ionisation et donc aussi le seuil (ou les seuils multiples) d'ionisation de chaque niveau Rydberg [GAL 76a], [JEY 80]. Pour déterminer celui-ci le plus précisément possible, et pour pouvoir obtenir une détection sélective d'états de Rydberg optimale, il faut donc avoir une connaissance aussi exacte que possible des positions et des largeurs des croisements évités concernés. Ces croisements évités peuvent être très larges ou bien au contraire assez étroits, comme on peut le voir sur le diagramme de Stark indiquant l'allure des niveaux autour de la multiplicité  $n=15$  d'un atome de Rydberg de Cs (voir figure II-3).

Tandis que l'ionisation par champ électrique a été le sujet de nombreuses recherches [COO 78], [GAL 76a,77,79b,81], [HIG 82], [JEY 80], [MCM 82], [VIA 79], ceci n'est pas vraiment le cas pour les croisements évités qui y sont pourtant intimement liés. Les seules mesures ayant été faites proviennent des expériences de spectroscopie par laser faites par Zimmerman et al. [ZIM 79], des expériences optiques et de radiofréquences réalisées par Rubbmark et al [RUB 81] et des mesures de croisements évités utilisant de la spectroscopie par radiation du corps noir de Stoneman et al [STO 85,86].

Bien que les croisements évités n'aient pas été étudiés très rigoureusement, ils nous fournissent un moyen très efficace de tester les différentes approches théoriques utilisées pour

calculer les spectres d'atomes excités se trouvant dans des champs électriques. En fait, on trouve trois approches théoriques qui sont le plus souvent utilisées: l'introduction d'un couplage du coeur sphérique en tant que petite perturbation des états paraboliques hydrogéniques [HAR 94], [KOM 80], la diagonalisation d'une matrice Hamiltonienne tronquée [ZIM 79], [DUN 83], et une approche à l'aide de la théorie du défaut quantique [HAR 82], [SEA 83]. La première de ces trois approches consiste en une méthode élégante et puissante pour calculer les positions et les largeurs des croisements évités entre des niveaux Stark composés de niveaux n'ayant que de faibles défauts quantiques en champ nul. Malheureusement, cette méthode ne nous permet pas de calculer les croisements évités entre un état isolé de faible moment angulaire et la multiplicité Stark adjacente. Pour calculer les positions et les largeurs de ces croisements évités, il faut recourir ou bien à la diagonalisation de matrice ou bien à la théorie du défaut quantique, ou bien à une méthode perturbative utilisant une multiplicité Stark incomplète [BRA 87], [PEN 88]. En pratique, seulement la diagonalisation d'une matrice Hamiltonienne tronquée a été couramment utilisée pour le calcul d'états stables.

Le but de l'expérience décrite dans ce chapitre est de mesurer avec précision la position et la largeur de croisements évités très étroits. Pour réaliser ceci nous avons entre autres utilisé une nouvelle technique et étudié à l'aide de celle-ci les croisements évités des états  $(n+4)s$  du césium avec des états Stark  $n,k$  dans des champs électriques. Ici  $n$  dénote le nombre quantique principal et  $k$  le moment angulaire de l'état en champ nul avec lequel l'état Stark  $n,k$  est adiabatiquement connecté. Nous avons mesuré les positions et les largeurs de ces croisements évités pour  $n$  allant de 20 à 24 et  $k$  de 3 à 5.

## II - 4 - 2 - Spectroscopie laser d'un croisement évité

Dans cette partie je vais décrire une des expériences qu'on a réalisé pour déterminer la position et la largeur des croisements évités étroits qui se manifestent entre les différents niveaux  $(n+4)s$  et les multiplicités correspondantes  $n$ .

La méthode classique de spectroscopie pour obtenir des informations au sujet de l'allure des niveaux d'énergie dans la région d'un croisement évité, consiste à exciter ces niveaux par laser et de faire ainsi plusieurs spectres pour obtenir une carte Stark d'un croisement évité. On a utilisé cette méthode pour essayer d'obtenir de plus amples informations au sujet des croisements évités entre le niveau  $(n+4)s$  et la multiplicité  $n$  correspondante. C'est

cette méthode de spectroscopie par laser et les résultats qu'on a obtenus grâce à celle-ci, que je vais décrire dans cette partie.

## 2 - a - Montage expérimental

Pour notre expérience, on utilise comme source d'atomes de césium un jet effusif thermique de césium. Ce jet est éclairé perpendiculairement par un faisceau laser pour exciter les atomes de césium dans des états de Rydberg bien définis. Le laser consiste en une cavité de laser à colorant pompée par un laser à argon continu. Ce système est à son tour pompé par un laser Nd:YAG pulsé dont la lumière est doublée en fréquence, et passé à travers différentes cellules d'amplification. On obtient ainsi un laser pulsé, monomode, de bonne puissance et d'une largeur spectrale très fine, émettant dans notre cas aux alentours de 640 nm (voir figure II-9). Dans cette expérience, la lumière laser est doublée dans un cristal KDP et on obtient des impulsions en UV à 320 nm, de puissance environ 100  $\mu$ J et de durée 8 ns. Ceci est largement suffisant pour saturer les transitions utilisées dans l'excitation Rydberg. La largeur spectrale de la lumière laser après le doublage est à peu près de 100 MHz.

Cette zone d'excitation Rydberg est entourée de deux grilles sur lesquelles on applique le champ fixe Stark et le champ pulsé d'ionisation. Les électrons détachés par le champ d'ionisation sont détectés par deux galettes de microcanaux branchées en série, et le signal en résultant est envoyé sur un oscilloscope. Le signal de l'oscilloscope est ensuite traité par un ordinateur pour finalement obtenir un spectre des différents niveaux Rydberg.

## 2 - b - Résultats expérimentaux

Dans la région d'un croisement évité, on a réalisé plusieurs spectres en balayant la fréquence du laser sur les niveaux d'énergie du croisement évité, et ceci pour différentes valeurs du champ électrique Stark fixe. Dans cette expérience, on a opté pour une excitation d'atomes de Rydberg à un photon ultraviolet à partir du niveau fondamental  $6^2S_{1/2}$  du césium. Ceci nous permet, dans un champ Stark appliqué, d'exciter aussi bien des niveaux s, que des niveaux des multiplicités n, avec n allant de 20 à 30.

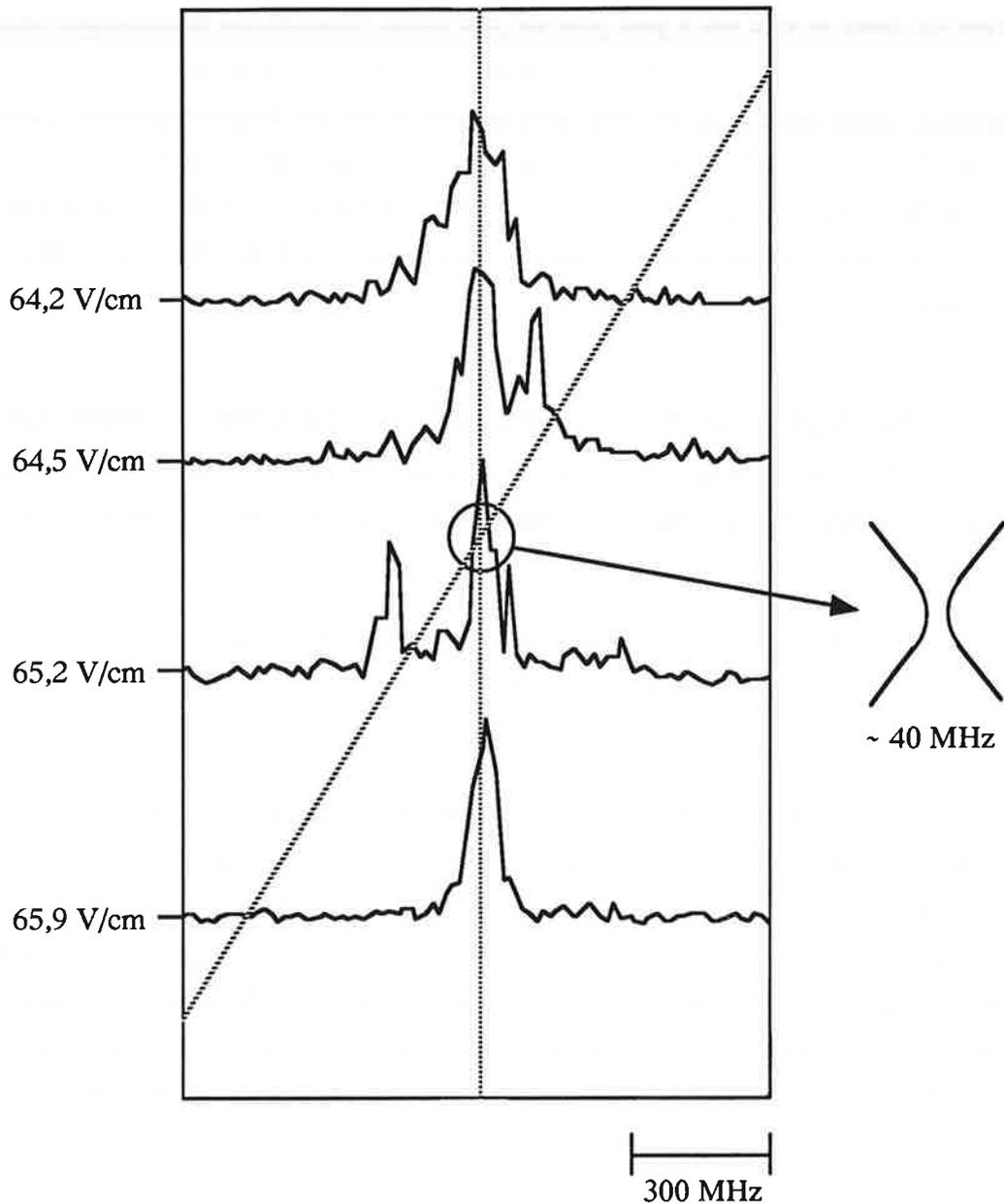


Figure II-7: Spectre expérimental du croisement évité entre les niveaux  $24s$  et  $20,4$ . Les valeurs calculées pour la position et la largeur de celui-ci sont  $65,9$  V/cm, resp.  $38,6$  MHz. On voit clairement que ce croisement évité ne peut pas être résolu dans cette expérience.

Sur la figure II-7, on peut voir un enregistrement typique de spectres pris aux environs d'un croisement évité. Sur cette figure, il s'agit du croisement évité entre les niveaux  $24s$  et  $20g$ , qui présente une largeur calculée de  $38,6$  MHz et dont la position calculée est de  $65,9$  V/cm. Grâce à la saturation des états par le laser, on arrive à exciter les deux niveaux d'énergie du croisement évité, comme on le distingue clairement sur la figure II-7. La hauteur du signal de l'état  $24s$  est tronquée, et ceci est dû à la saturation du détecteur par l'importance

du signal réel. La largeur de la raie la plus fine de l'état  $24s$  reflète parfaitement la largeur spectrale du laser et elle est à peu près de 100 MHz. Comme on le remarque sans trop de difficultés sur les spectres, il n'est malheureusement guère possible de mesurer la largeur d'un croisement évité de largeur de 40 MHz avec un laser ayant une largeur spectrale d'une centaine de Mégahertz, ce qui constitue tout de même une finesse spectrale exceptionnelle pour un laser à colorant pulsé. La position du croisement évité, au contraire, est facilement mesurable sur les spectres montrés, et elle est en bon accord avec les calcul, en tenant compte de toutes les erreurs expérimentales.

Ces résultats relativement médiocres nous ont incités à utiliser une nouvelle technique, relativement simple mais efficace, pour mesurer avec précision la largeur et la position de croisements évités aussi fins. Dans la suite je présenterai cette méthode en détail.

### **II - 4 - 3 - Spectroscopie à haute résolution d'un croisement évité**

Comme on l'a vu auparavant, la méthode classique de spectroscopie par laser ne nous donne que des résultats plutôt médiocres pour les largeurs de croisements évités aussi étroits, et ceux-ci ne peuvent être améliorés qu'en utilisant des lasers de largeurs spectrales extrêmement fins. Ce fait nous a motivés à utiliser une nouvelle technique, facile et efficace, qui est basée sur le fait que le chemin d'ionisation d'un état donné dépend de la position et de la largeur des croisements évités rencontrés sur celui-ci. Dans cette partie, je décrirai en détail le montage et le principe de cette méthode, et présenterai les résultats ainsi obtenus.

#### **3 - a - Montage expérimental**

Le montage expérimental utilisé pour les expériences de spectroscopie à haute résolution de croisements évités consiste en gros en ces parties (voir figure II-8):

- une source d'atomes de césium
- un laser pour l'excitation Rydberg
- un système d'application de différents champs électriques
- un système de détection et de traitement du signal.

J'essaierai dans la suite de décrire toutes ces parties en expliquant leurs fonctions dans cette expérience donnée.

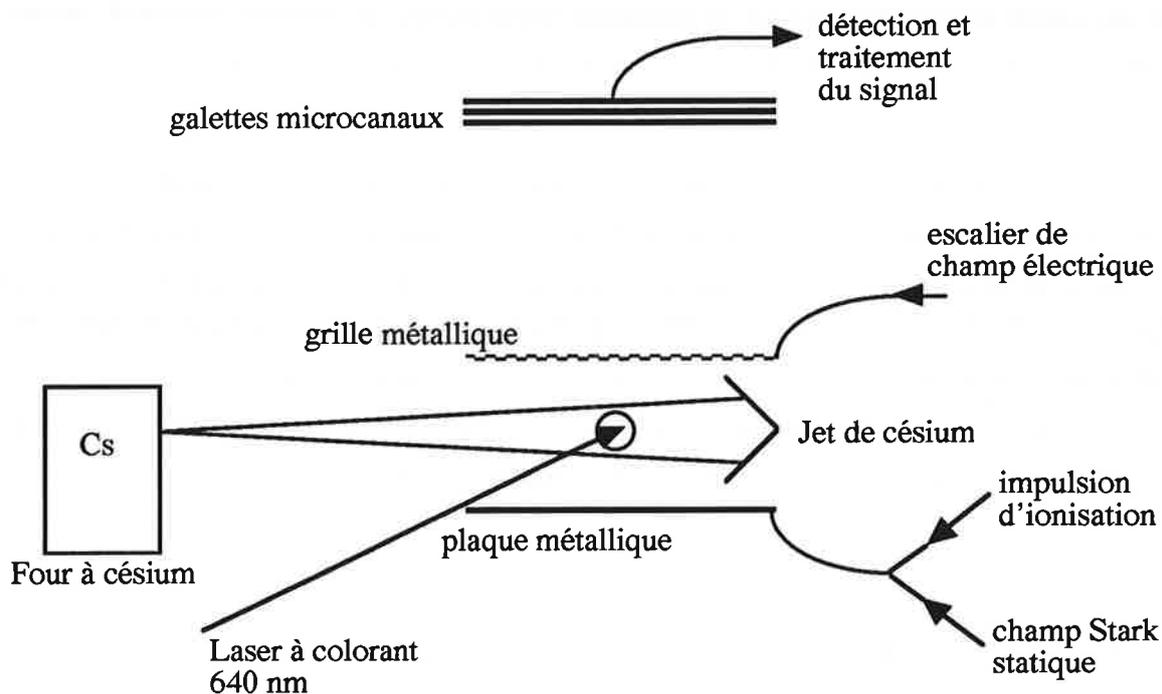


Figure II-8: Montage expérimental utilisé pour la spectroscopie à haute résolution de croisements évités.

#### *a) La source atomique*

Nous utilisons comme source atomique le jet thermique effusif de césium décrit au chapitre précédent. Pour obtenir celui-ci nous utilisons un four qui est rempli avec environ un gramme de césium. Ce four consiste en un cylindre en inox de hauteur 6 cm et de diamètre 2,5 cm. A à peu près 3/4 de sa hauteur se trouve l'embouchure du four. Cette buse est formée d'une pièce contenant une vingtaine de canaux de diamètre 100  $\mu\text{m}$  et de longueur 0,5 cm. Grâce à ce dispositif, il est possible d'obtenir un jet d'une bonne densité, sans toutefois avoir une grande divergence. Ceci nous prolonge la durée de vie d'une cargaison d'un gramme de césium à environ un mois d'emploi intensif.

Notre four est entouré de deux bobines de fils thermocoaxiaux qui sont traversées par un courant d'environ 2 Ampères et servent de résistances chauffantes pour notre four. L'un de ces fils sert à chauffer le réservoir ou le corps du four, tandis que l'autre est utilisé pour chauffer l'embouchure du four. Celle-ci est gardée à une température légèrement plus élevée

que le réservoir, pour éviter qu'elle ne se bouche avec du césium. Toute cette partie utilisée dans l'expérience se trouve dans une enceinte à vide qui est pompée à environ  $10^{-7}$  mbar. Le four et la zone où se déroule l'expérience sont entourés de plaques de cuivre qui sont refroidies par de l'azote liquide pour éviter la formation d'une cellule de césium. Ceci nous assure la formation d'un bon jet de césium en évitant toute collision avec du gaz résiduel.

Dans les expériences relatives aux croisements évités, on a généralement utilisé le four à une température de fonctionnement de  $180^{\circ}$  C. A environ 5 cm de l'embouchure du four se trouve un diaphragme en carbone de diamètre de 3 mm. Ceci nous donne dans la zone d'excitation Rydberg, qui se trouve à 13 cm de l'embouchure du four, un jet de diamètre 5 mm et de densité atomique  $8 \cdot 10^8$  atomes/cm<sup>3</sup>. Les atomes de césium formant ce jet se trouvent dans un mélange statistique d'atomes de césium dans les niveaux fondamentaux  $6S_{1/2}$   $F=3$  et  $F=4$ . Ce fait ne joue pas de grand rôle dans cette expérience, il ne fait que diminuer la densité atomique d'un facteur deux.

### *β) Le laser d'excitation Rydberg*

A environ 13 cm de l'embouchure du four, le jet atomique de césium est éclairé perpendiculairement par un faisceau laser. Ce faisceau lumineux a un diamètre de 5 mm, ce qui nous donne une zone d'excitation Rydberg de dimension 100 mm<sup>3</sup>. Le rayonnement requis pour cette excitation est obtenu à partir d'un système laser, monomode et accordable en fréquence [PIN 77]. Ce système laser (voir figure II-9), qui est appelé "compulsé" est conçu et réalisé au laboratoire Aimé Cotton [CAB 86].

La partie essentielle du laser utilisé consiste en gros en une cavité de laser à colorant linéaire commerciale. Dans cette cavité, on trouve un filtre de Lyot et un étalon Fabry-Pérot qui sont utilisés pour sélectionner un mode longitudinal du laser. Le jet de colorant de cette cavité est pompé par un faisceau focalisé d'un laser à Argon continu de puissance 6 W. On obtient ainsi un laser à colorant continu, qui est monomode et d'une largeur spectrale très fine d'à peu près 40 MHz. Ce laser est accordable en fréquence en balayant la position du miroir de sortie de la cavité. Malheureusement, ce laser continu n'a qu'une faible puissance et n'est guère utilisable pour la plupart des expériences de spectroscopie.

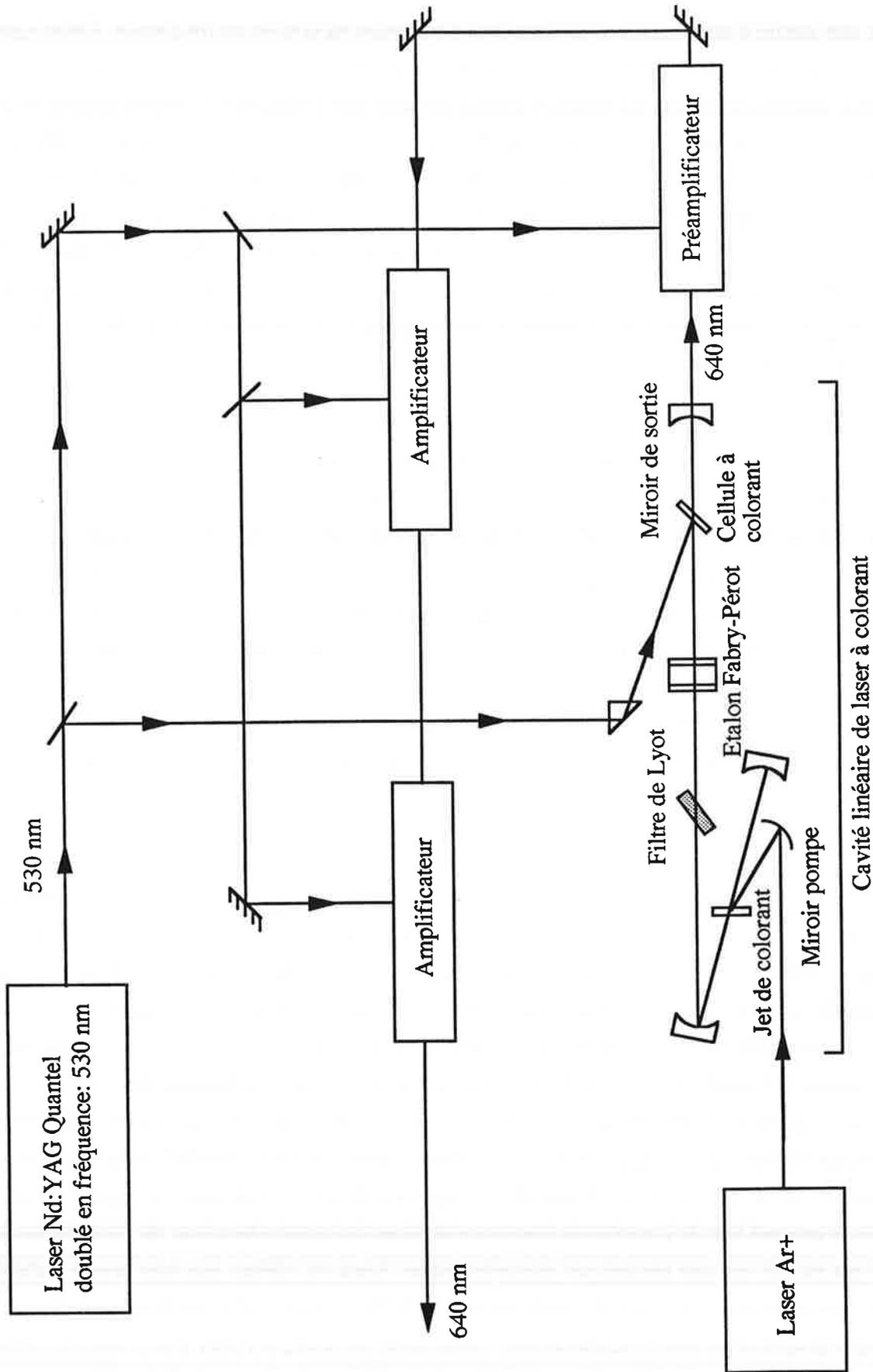


Figure II-9: Schéma du dispositif laser

Dans la cavité du laser à colorant se trouve un deuxième jet de colorant qui à son tour est pompé par une partie d'un faisceau d'un laser Nd:YAG pulsé et doublé en fréquence. Cette injection impose à notre laser à colorant continu à fonctionner en régime pulsé et ceci tout en gardant sa bonne qualité spectrale. La lumière pulsée du laser ainsi obtenu est encore amplifiée par le passage à travers quelques cellules amplificatrices qui consistent en des cellules à circulation de colorant pompées transversalement par la majeure partie de la puissance du laser Nd:YAG doublé. Afin de synchroniser l'arrivée dans les amplificateurs, de l'impulsion pompe et de l'impulsion provenant du laser à colorant, on introduit sur le trajet du faisceau pompe une ligne à retard. On obtient ainsi finalement un laser à colorant pulsé de qualité spectrale exceptionnelle et de grande intensité, fonctionnant à une fréquence de répétition de 10 Hz ou 30 Hz en dépendance de celle du laser Nd:YAG.

Pour pouvoir repérer exactement la longueur d'onde émise par le système laser, on a deux systèmes assez simples: D'une part, une partie du faisceau laser est envoyée en parallèle avec un faisceau d'un laser HeNe dans un spectromètre. Ainsi il est possible de repérer facilement la position en fréquence du laser par rapport à la position d'un certain ordre du HeNe. Ceci nous permet de nous placer facilement dans le voisinage d'une fréquence souhaitée. D'autre part, on envoie une partie du faisceau laser à travers une cellule contenant de l'iode, nous permettant ainsi de faire des spectres d'absorption de l'iode, ce qui nous sert comme référence pour calibrer nos spectres d'atomes de Rydberg. Ceci nous permet de faire le réglage fin pour pouvoir nous caler sur une certaine fréquence, et donc une certaine raie du césium.

Les instabilités au niveau du jet de colorant (tel que changement de température, bulles,...) et les perturbations mécaniques ou thermiques agissant sur la cavité, sont responsables de deux phénomènes qui peuvent varier la fréquence du laser: Ceux-ci sont les sauts de mode d'oscillation et les dérives lentes ou rapides en fréquence (jitter). Pour assurer une bonne stabilité de la fréquence du laser dans le temps, on utilise un système permettant d'asservir la fréquence du laser. Une partie du faisceau laser est envoyée dans un sigmamètre où sa fréquence est en permanence comparée à celle d'un laser HeNe asservi à son tour. Le principe de base de cet appareil est celui d'un interféromètre de Michelson de différence de marche 20 cm. Dès qu'il y a dérive de la fréquence du laser à colorant, un signal d'erreur est émis et envoyé vers le contrôle de fréquence du laser qui asservi le miroir de sortie de la cavité, qui est monté sur une céramique piézoélectrique. Ainsi on obtient une très bonne stabilité en fréquence du laser avec des fluctuations autour de la fréquence désirée de moins de 10 MHz. Pour s'assurer d'un bon fonctionnement monomode du laser, le Fabry-Pérot dans la cavité est monté lui aussi sur une céramique piézoélectrique. L'asservissement du Fabry-Pérot a pour but

de déplacer les pics de transmission de ces éléments sélecteurs de sorte qu'ils restent accordés avec le mode laser au cours d'un balayage en longueur d'onde.

Le balayage en fréquence du laser doit se faire d'une façon linéaire et uniforme sur une grande dynamique. La linéarité est donnée principalement par le sigmamètre. Au cours d'un balayage, le maximum de transmission du Fabry-Pérot de la cavité reste automatiquement centré sur le mode de la cavité grâce à son asservissement. La dynamique d'un balayage automatique est limitée à 30 GHz. Un balayage sur une plus large plage nécessite la modification périodique de l'orientation du filtre de Lyot; on peut ainsi explorer une plage de plus de 900 GHz.

On peut résumer les principales caractéristiques de ce laser:

- monomode
- pulsé: durée d'impulsion: 8 ns  
fréquence de répétition: 10 ou 30 Hz
- puissance: 10 mJ par impulsion (100 mW à 10 Hz)
- largeur spectrale: 40 MHz
- accordable sur 900 GHz
- longueur d'onde émise: 640 nm (pour ces expériences, on a utilisé comme colorant du DCM)

Malheureusement, ce laser n'était pas positionné juste à côté du reste du dispositif expérimental (jet de césium) et ainsi il a fallu guider le faisceau laser à travers plusieurs pièces et même un plafond. La puissance utilisable qu'on obtenait ainsi pour l'excitation Rydberg était de 0,1 mJ par impulsion, ce qui était tout de même largement suffisant pour nos expériences.

Le faisceau laser est ou bien utilisé tel qu'il est à la longueur d'onde de 640 nm, ou bien doublé en fréquence par un cristal KDP, en réalisant les conditions d'accord de phase par rotation du cristal, pour obtenir de la lumière ultraviolette à 320 nm.

*γ) Description des champs électriques appliqués*

La zone d'excitation Rydberg des atomes de césium est placée entre deux plaques métalliques horizontales sur lesquelles on applique différents champs électriques nécessaires à nos expériences. Ces deux plaques sont distantes de 1,5 cm l'une de l'autre.

1) le champ Stark

Sur la plaque du bas, on applique en permanence un champ électrique statique négatif, le champ Stark. Ce champ Stark est utilisé pour accorder la position exacte de l'excitation Rydberg dans la région des croisements évités. Le champ Stark correspond en effet au paramètre  $q$  utilisé dans la partie II - 3 - 2, dont dépendent les niveaux d'énergie des atomes de Rydberg. Ce champ Stark peut être balayé très lentement (0,1 V/cm/s), ce qui nous donne un champ électrique quasiment statique pendant la durée d'une mesure, qui est d'environ 0,5  $\mu$ s.

2) le champ d'ionisation pulsé

Dans les expériences avec les atomes de Rydberg, on utilise pour détecter ou bien les atomes excités eux-mêmes, ou bien des produits de réactions entre ceux-ci, la technique de l'ionisation par champ électrique pulsé [DUC 75], [TUA 76]. Pour cela, une impulsion de champ électrique négative est envoyée sur la plaque métallique du bas. Cette impulsion atteint une hauteur maximale de 3 kV et ceci dans un temps de montée d'environ 200 ns. Un enregistrement typique de la forme d'une de ces impulsions est montrée sur la figure II-10.

Le champ d'ionisation est appliqué environ 200 ns après que l'excitation des atomes de Rydberg par le laser pulsé ait eu lieu. Ce champ arrache l'électron Rydberg de l'atome, et cet électron est envoyé, toujours par le champ d'ionisation, à travers une grille se trouvant au milieu de la plaque métallique de haut, pour arriver sur le système de détection.

On a remarqué que le champ d'ionisation ne présentait pas toujours le même temps de montée, mais que celui-ci est une fonction de la valeur maximale atteinte par le champ. On a fait quelques mesures, dont on peut voir les résultats sur la figure II-11.

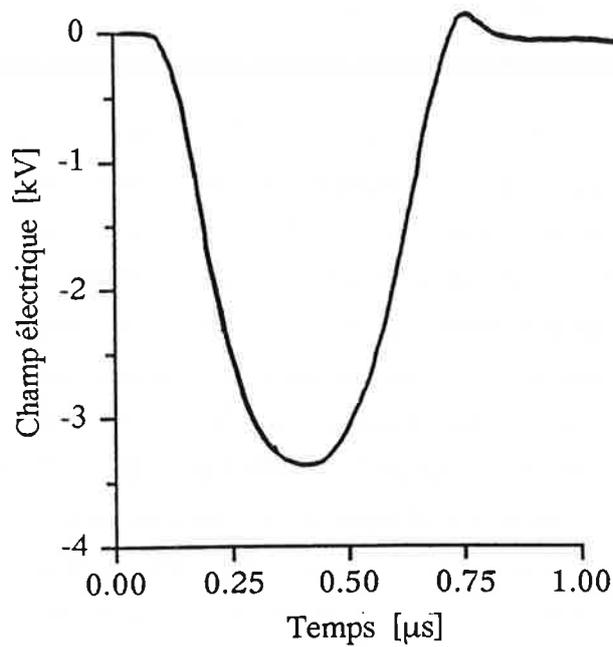


Figure II-10: Forme d'une impulsion du champ d'ionisation.

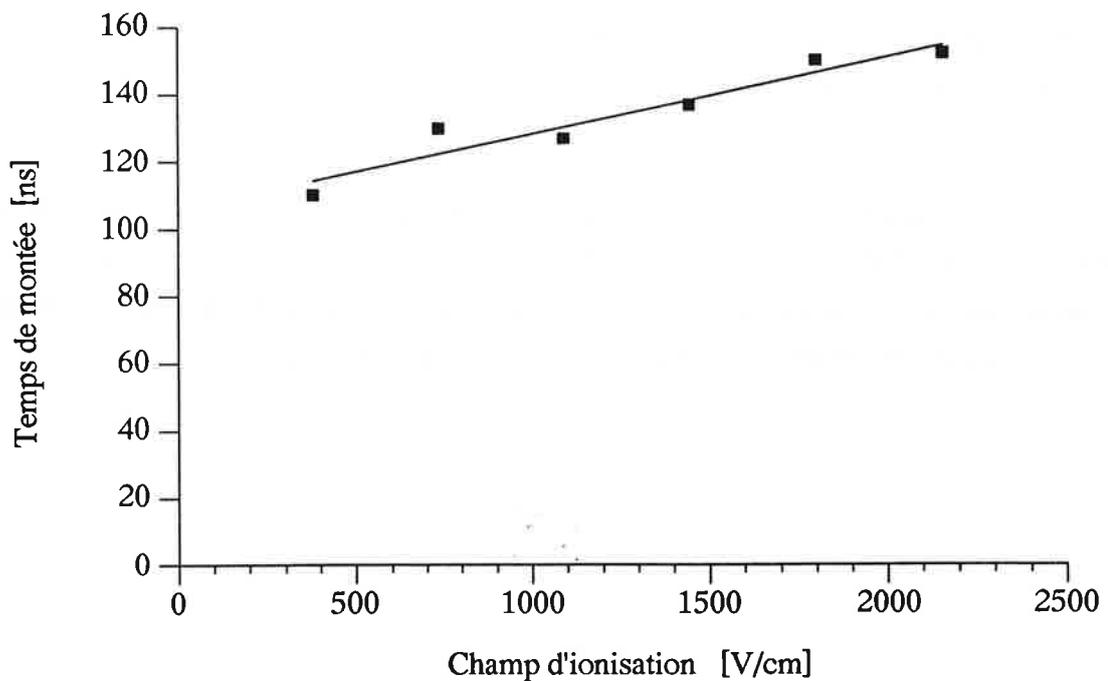


Figure II-11: Temps de montée du champ d'ionisation en fonction de sa valeur maximale atteinte.

### 3) le petit escalier de champ pulsé

Avant et dans le pied de montée du champ d'ionisation, on applique une petite impulsion de champ électrique positive sur la plaque métallique du haut, comme ceci est montré sur la figure II-12a. Cette impulsion a une hauteur d'environ 6 Volts, un temps de montée inférieur à 3 ns et une durée d'environ 100 ns. Ce temps de montée très rapide est nécessaire pour nous assurer d'un passage purement diabatique à travers tous les croisements évités étudiés. Au fait le front de montée du champ d'ionisation serait tout à fait suffisant pour nous assurer d'un passage purement diabatique, comme les croisements évités en question sont plutôt étroits, si celui-ci ne présentait pas une petite oscillation au début de son déclenchement (voir figure II-12b). En effet, le champ d'ionisation passe tout d'abord à une valeur de +0,5 V avant de repasser par zéro et de monter à son maximum de -3 kV. Le petit escalier de champ sert donc à éviter tout aller-retour du champ d'ionisation à travers les croisements évités. Comme la largeur des croisements évités étudiés dans cette expérience ne dépasse jamais quelques dixièmes de V/cm, la hauteur de 6 V de l'impulsion est amplement suffisante pour assurer un passage diabatique à travers ceux-ci. Comme la séparation entre les différents croisements évités est toujours plus importante que les 4 V/cm de l'escalier de champ, celui-ci ne mélange pas non plus les croisements évités entre eux, ce qui risquerait de brouiller complètement les mesures.

La polarité de tous ces champs électriques appliqués a été choisie de telle façon à ce que l'électron détaché de l'atome de Rydberg par le champ d'ionisation soit accéléré vers le haut pour arriver sur le système de détection. En inversant toutes les polarités, on détecterait les ions  $\text{Cs}^+$ , au lieu des électrons, ce qui a aussi été réalisé durant ces expériences.

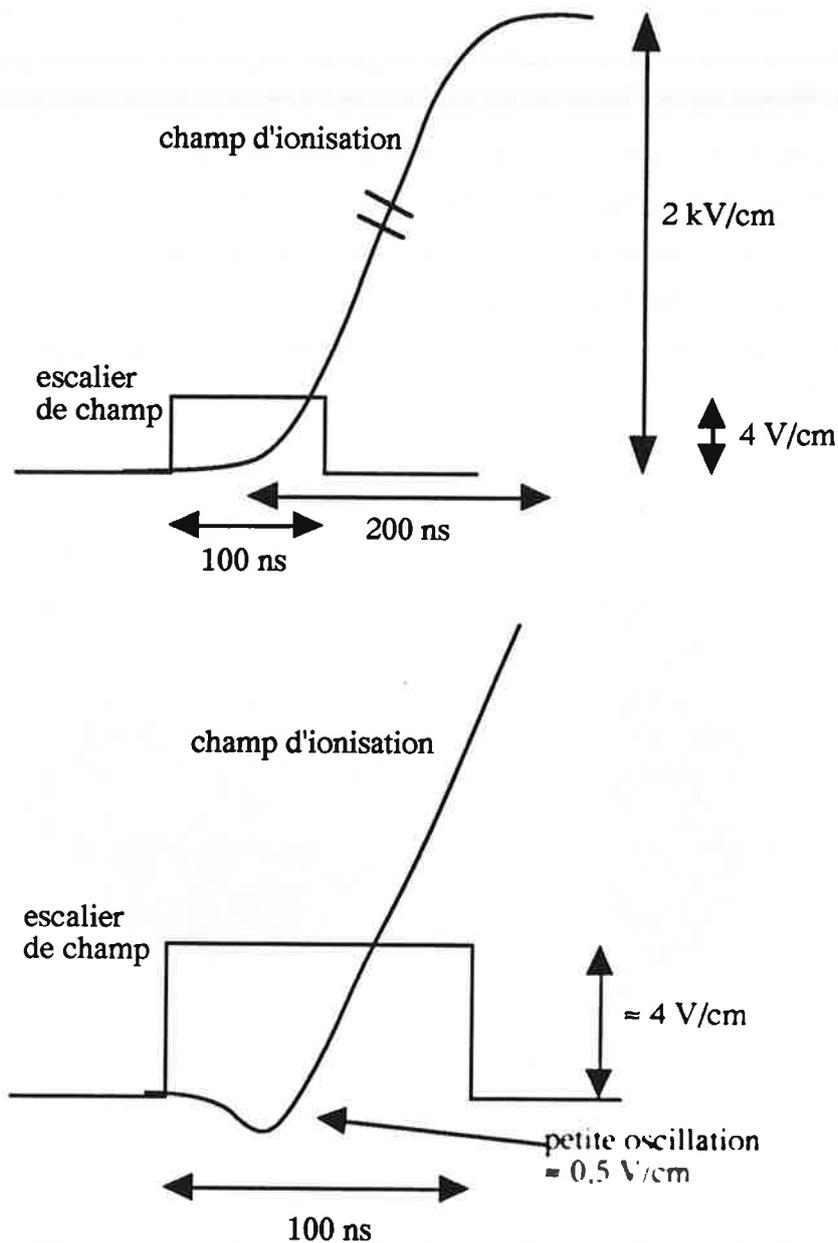


Figure II-12: (a) Emplacement du petit escalier de champ électrique par rapport au champ d'ionisation. (b) Agrandissement du déclenchement du champ d'ionisation.

#### δ) Détection et traitement du signal

Les électrons Rydberg sont donc envoyés par le champ d'ionisation à travers une grille se trouvant dans la plaque métallique du haut, vers le détecteur se trouvant à environ 8 cm de cette plaque. La détection se fait par deux galettes microcanaux, qui sont branchées en série. Ce détecteur fonctionne similairement à un photomultiplicateur: Les galettes se présentent sous la forme d'une plaque de verre à forte teneur de plomb, constituée par la juxtaposition de

microcanaux élémentaires, chacun d'entre eux jouant le rôle d'un multiplicateur d'électrons. Après assemblage des microcanaux individuels, la galette reçoit un traitement physico-chimique qui transforme l'intérieur de ceux-ci en une couche à haute résistivité dont le coefficient d'émission secondaire est supérieur à l'unité. Lorsqu'une différence de potentiel est appliquée entre les deux faces de la plaque, la surface interne de chaque canal devient une dynode continue, analogue électriquement à la structure à dynodes discrètes d'un photomultiplicateur conventionnel, et qui remplit également la fonction de diviseur résistif de tension. Une métallisation des deux faces de la galette assure la mise en parallèle électrique des microcanaux (voir figure II-13).

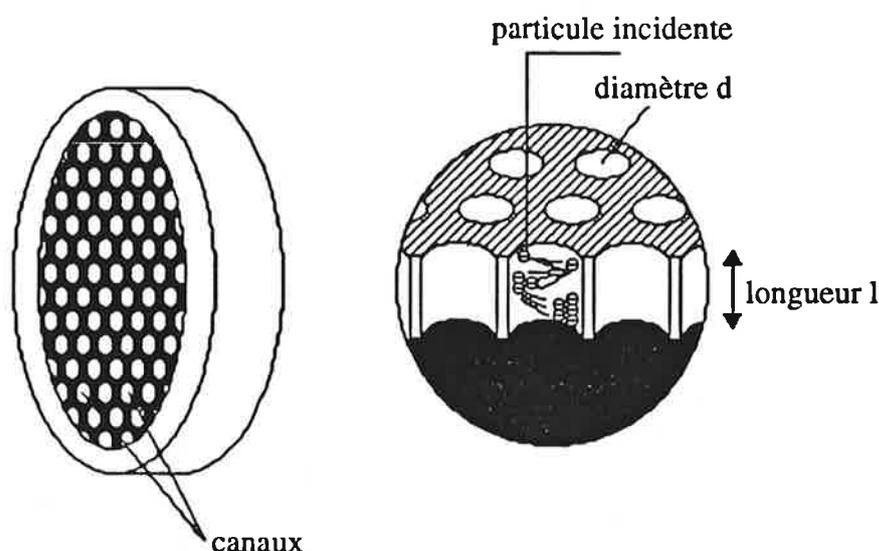


Figure II-13: Schéma et principe de fonctionnement d'une galette microcanaux.

Un électron qui pénètre dans un canal par l'extrémité portée au potentiel le plus bas est accéléré par le champ électrique axial et frappe la paroi en provoquant l'émission d'électrons secondaires qui vont à leur tour déclencher le même processus. Ainsi, chaque électron incident initie un phénomène d'avalanche, lequel produit en sortie une charge électrique. L'inclinaison des canaux par rapport aux faces de la galette est choisie de telle manière que les particules incidentes viennent frapper la paroi à l'entrée même des canaux. Ainsi, on arrive à détecter un seul atome de Rydberg présent entre les deux plaques métalliques.

Dans notre montage expérimental, on utilise deux galettes en cascade, qui sont positionnées de telle manière que l'angle des canaux en regard bloque ainsi toute remontée,

dans la galette d'entrée, des ions en provenance de la galette de sortie, et réduise ainsi une nouvelle avalanche d'électrons secondaires. Les galettes microcanaux utilisées ici ont un diamètre de 25 mm dont 19 mm de diamètre utile, et une épaisseur de 0,5 mm. Le diamètre des microcanaux est de  $12,5 \mu\text{m}$  et leur angle d'inclinaison par rapport aux faces de la galette est de  $13^\circ$ . La résistance électrique d'une des galettes compte environ  $500 \text{ M}\Omega$ , et on applique une chute de tension pouvant aller jusqu'à 3 kV sur les deux galettes. En mesurant le signal d'un électron frappant sur les galettes microcanaux, on a déterminé leur gain à environ  $5 \cdot 10^5$  pour une tension appliquée de 2 kV (voir chapitre III).

Le signal des électrons est sorti sur une résistance de  $50 \Omega$  et envoyé sur un oscilloscope. Sur celui-ci, on arrive à séparer temporellement les signaux appartenant aux différents niveaux d'énergie des atomes de Rydberg. Ces signaux sont enregistrés séparément en utilisant un "gated integrator". L'aire des signaux qui se trouvent dans une porte variable est ensuite visualisée sur un oscilloscope digital et peut y être traitée et mémorisée (voir figure II-14).

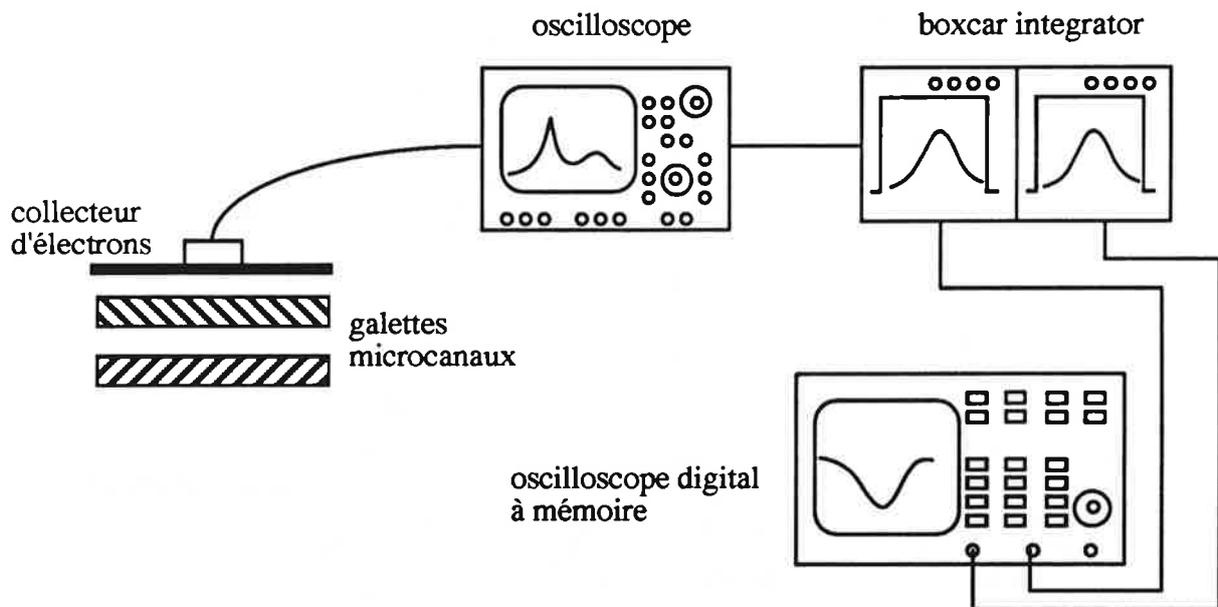


Figure II-14: Schéma du dispositif de détection

### 3 - b - Principe de l'expérience

Comme il fut déjà mentionné auparavant, la position et la largeur de croisements évités, et le comportement exact d'un atome de Rydberg en traversant ceux-ci en présence d'un champ électrique pulsé détermine en grande partie le chemin d'ionisation et donc le seuil

d'ionisation de l'état Rydberg. C'est cette dépendance du chemin d'ionisation vis-à-vis des croisements évités qui sera utilisée dans cette expérience pour gagner de plus amples informations au sujet de leur positions et de leur largeurs.

Le principe de cette expérience est essentiellement basé sur deux points importants, qui sont illustrés par la figure II-15 [STO 86], [NOS 95].

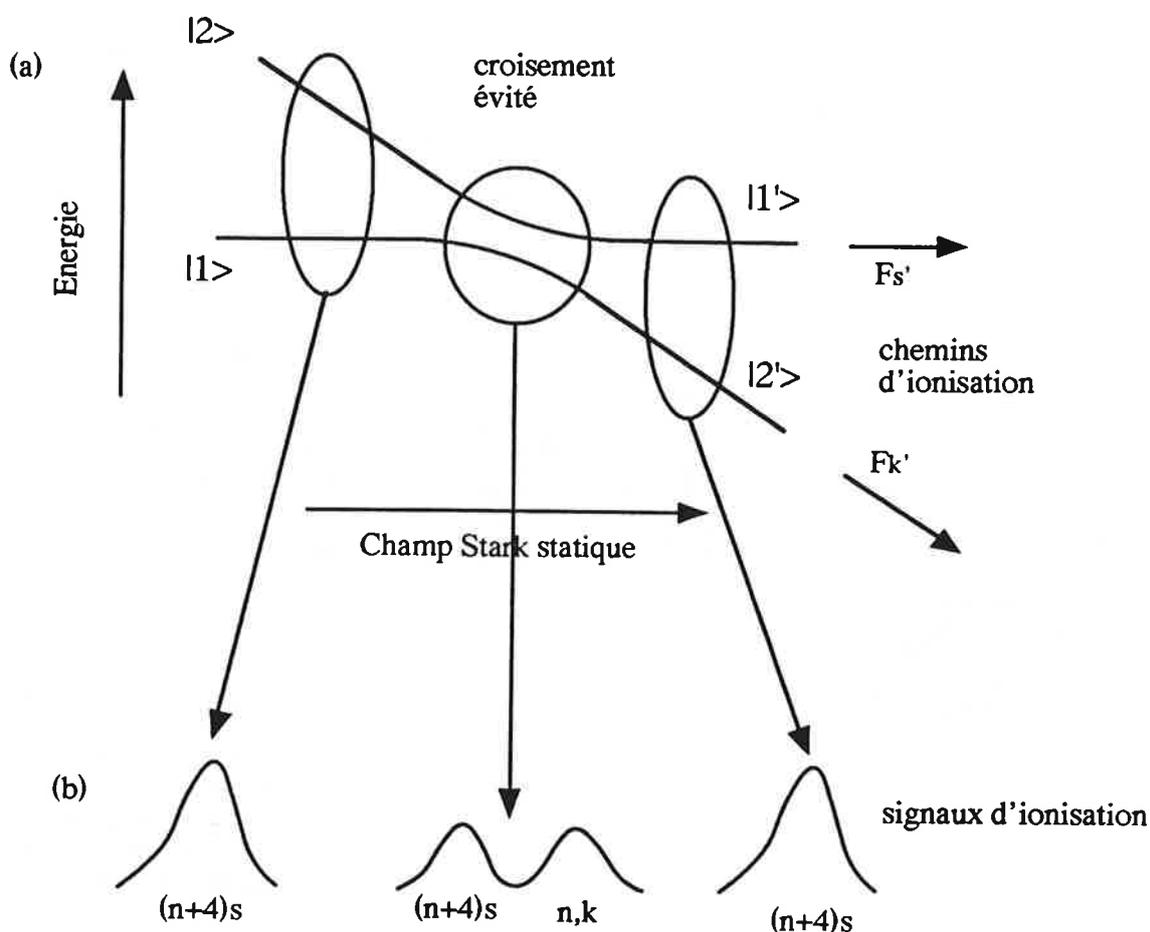


Figure II-15: Illustration du principe de l'expérience. (a) Allure des niveaux d'énergie sur un croisement évité. Les flèches symbolisent les chemins d'ionisation des deux niveaux en jeu. (b) Signal obtenu par ionisation par champ électrique, qui correspond à une excitation du niveau non-perturbé  $(n+4)s$  à l'endroit indiqué.

Premièrement, quel effet les quelques premiers croisements évités entre les niveaux  $(n+4)s$  et  $n,k$  ont-ils sur l'ionisation par champ pulsé de ces niveaux? Les croisements évités sont si étroits que pour des impulsions de champ avec des taux de montée vers  $10^9$  V/cm/s, ils sont traversés pratiquement purement adiabatiquement. En effet, en utilisant la formule (II-53), on trouve pour un croisement évité de séparation 60 MHz et avec les paramètres caractéristiques de l'expérience, une probabilité de transition adiabatique de:

$$P \approx e^{-2\pi \cdot 10^{-3}} = 0,994$$

En conséquence, les atomes dans l'état  $(n+4)s$  gardent toujours la même énergie quand le champ d'ionisation augmente et vont donc ioniser selon une droite horizontale et présenter un seuil  $F_S'$ . Au contraire, les atomes dans les états  $n,k$  ont une énergie qui décroît avec une augmentation du champ. Ceci n'est bien sûr que valable pour les états  $n,k$  de la multiplicité de basse énergie qui ont une pente négative et croisant le niveau  $(n+4)s$ . Ceci résulte dans le fait que les atomes dans l'état  $(n+4)s$  sont ionisés à un champ  $F_S'$  plus bas que le sont les atomes dans les états  $n,k$  ( $k = 3$  à  $5$ ), qui eux vont présenter un seuil d'ionisation  $F_K'$ . Donc en appliquant un champ d'ionisation assez fort en présence d'atomes dans les deux états, on observera deux signaux d'ionisation bien distincts, et celui de  $(n+4)s$  précédera toujours celui de  $n,k$  dans le temps, comme  $F_S' < F_K'$ .

Deuxièmement, au niveau d'un croisement évité les états propres sont des superpositions linéaires 50% - 50% des états  $(n+4)s$  et  $n,k$ . Si le couplage du coeur ionique entre les états  $(n+4)s$  et  $n,k$  était ignoré, les deux niveaux d'énergie se croiseraient et suivraient leur chemin selon des droites. Mais le couplage induit par le coeur ionique lève cette dégénérescence et conduit à des états propres qui sont donnés par les superpositions  $(|s\rangle \pm |k\rangle)/\sqrt{2}$  sur le croisement évité.

En se rappelant bien ces deux points, il est assez facile de comprendre l'idée de base de cette expérience. La séquence temporelle de l'expérience est décrite par la figure II-16. Avec le laser à colorant pulsé, on excite les atomes de césium à deux photons (640 nm) à partir de leur niveau fondamental. A cause des règles de sélection dipolaires, on n'arrive qu'à peupler l'état  $(n+4)s$  et non les états  $n,k$ , car ceux-ci n'ont qu'une très faible proportion de caractère  $l < 3$  pour les champs faibles auxquels on travaille. L'excitation Rydberg se fait normalement toujours en présence d'un champ statique Stark. Si ce champ statique est plus faible que la valeur où se trouve le croisement évité, on n'excite que le niveau  $(n+4)s$  pur et on obtient donc un seul signal d'ionisation correspondant à ce niveau au seuil d'ionisation  $F_S'$ , comme le croisement évité est traversé adiabatiquement. Ceci est illustré sur la figure II-15. En excitant les niveaux à un champ Stark plus élevé que la position du croisement évité, on obtiendra

exactement le même signal d'ionisation, correspondant à nouveau à un niveau  $(n+4)s$  pur. Que va-t-il maintenant se passer si on excite le croisement évité lui-même? Au niveau du croisement évité, on excite les deux bons états propres, comme chacun de ceux-ci se compose à moitié de  $(n+4)s$  et à moitié de  $n,k$ . Ceci va donc nous donner deux signaux d'ionisation bien distincts, le premier correspond au chemin d'ionisation selon  $|s'\rangle$  ionisant à un seuil  $F_{S'}$ , tandis que le second correspond au chemin d'ionisation suivant  $|k'\rangle$  ionisant à un seuil  $F_{K'}$ , avec  $F_{K'} > F_{S'}$ . Comme on excite toujours la même quantité d'atomes, on verra donc apparaître deux signaux d'ionisation ayant même hauteur. Cette hauteur correspond exactement à la moitié de la hauteur du signal obtenu en excitant le niveau  $(n+4)s$  avant ou après le croisement évité, comme cela est indiqué schématiquement sur la figure II-15.

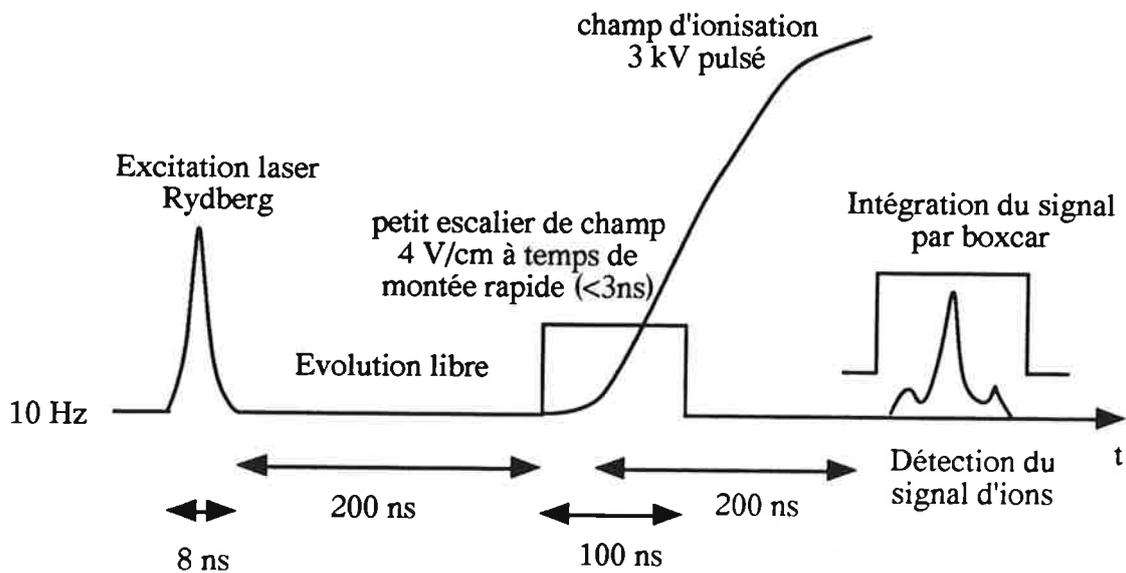


Figure II-16: Séquence temporelle de l'expérience.

Si maintenant on balaye très lentement le champ statique Stark à travers le croisement évité, celui-ci va se manifester par une décroissance de 50% du signal d'ionisation de  $(n+4)s$  au champ  $F_{S'}$  et simultanément par une croissance correspondante du signal d'ionisation de  $n,k$  au champ  $F_{K'}$  plus élevé.

Comme les signaux d'ionisation par champ électrique des états  $(n+4)s$  et  $n,k$  sont résolus dans le temps, on peut les enregistrer séparément avec un "boxcar", en plaçant des portes électroniques variables sur ceux-ci. La plupart des mesures ont été réalisées en enregistrant le signal  $(n+4)s$ , la raison essentielle pour ceci est que le niveau  $(n+4)s$  a un seuil moins élevé et mieux défini que les niveaux  $n,k$  qui semblent présenter des seuils multiples. Le

signal d'un croisement évité est alors enregistré en balayant lentement le champ électrique statique à travers le croisement évité durant beaucoup d'impulsions du laser d'excitation Rydberg. En utilisant un oscilloscope digital à mémoire, on accumule les balayages jusqu'à ce que le rapport signal sur bruit devienne acceptable.

Toutes ces mesures peuvent être réalisées en utilisant soit les électrons, soit les ions  $\text{Cs}^+$  formés par l'ionisation par champ pour la détection. On a fait des mesures en utilisant la détection d'ions et celles-ci sont en accord avec celles réalisées en utilisant une détection d'électrons. A cause d'une meilleure résolution temporelle des signaux d'électrons, la plupart des mesures ont été réalisées à l'aide d'une détection d'électrons.

### 3 - c - Résultats expérimentaux

Grâce au dispositif et à la méthode décrits auparavant, on a fait des mesures systématiques de la position et de la largeur des croisements évités entre les niveaux d'énergie  $(n+4)s$  et  $n,k$ . Ceci a été réalisé pour  $n$  allant de 20 à 24 et  $k$  de 3 à 5 (ou bien  $k = f, g$  et  $h$ ), comme on peut le voir sur la figure II-17, qui montre l'allure générale des niveaux d'énergie pour  $n = 22$ .

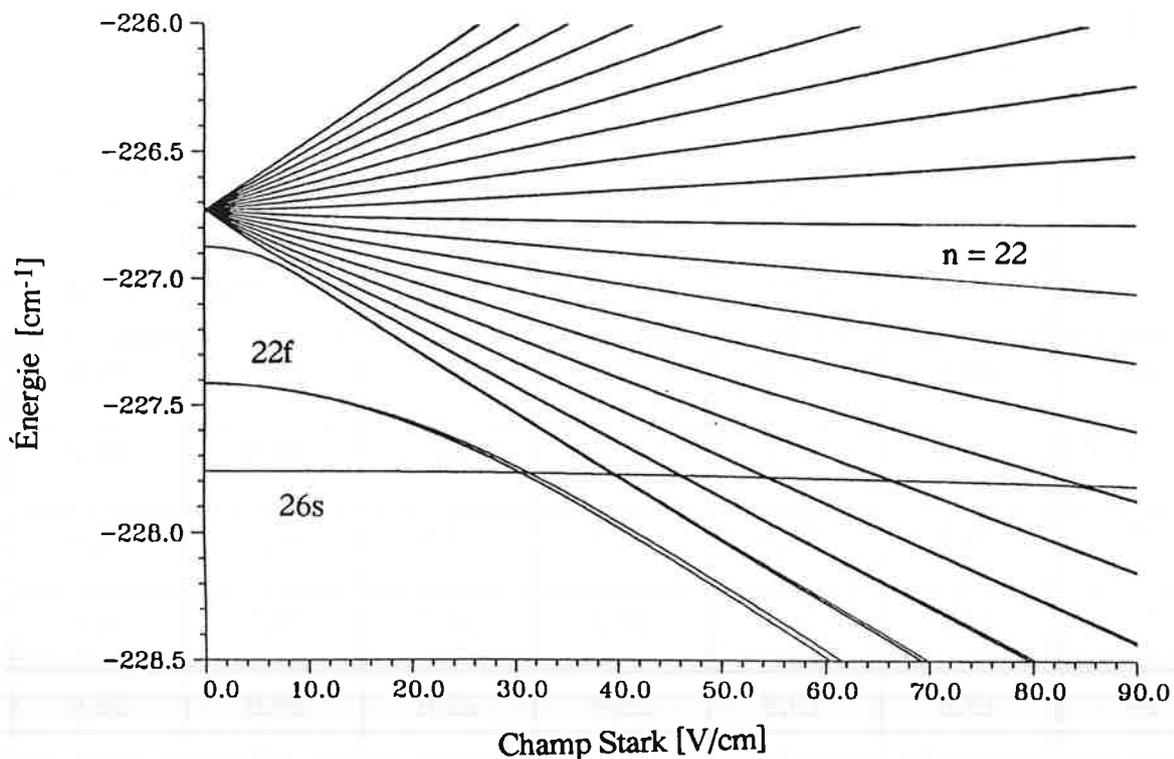


Figure II-17: Allure générale des niveaux d'énergie, qui importent dans ces expériences de croisements évités, pour les niveaux autour de la multiplicité  $n = 22$ .

En tant qu'exemples typiques de résultats expérimentaux, des signaux pour les croisements évités  $28s - 24,k$  sont montrés sur la figure III-18, pour  $k$  de 3 à 5. Dans les trois cas, les croisements évités sont détectés en tant que décroissances du signal d'ionisation par champ de l'état  $28s$  pur. On peut dès le début remarquer deux points intéressants sur les signaux de la figure II-18. Premièrement, en comparant tous ces signaux avec l'allure calculée de niveaux des croisements évités (voir figure II-19), on remarque qu'expérimentalement on n'observe qu'un seul des deux croisements évités présents. Il s'agit ici du croisement évité  $|m_l| = 0$ , tandis que le croisement évité  $|m_l| = 1$  n'a jamais pu être observé expérimentalement, tellement il est fin. Deuxièmement, on remarque que pour le croisement évité  $28s - 24,3$  le signal d'ionisation de  $28s$  décroît de 50% de sa valeur au loin du croisement évité, ce qui n'est pas le cas pour les deux autres croisements évités. On trouve pour ceux-ci ( $28s - 24,4$  et  $28s - 24,5$ ) une décroissance de seulement 42%, respectivement 32%.

*α) Positions des croisements évités*

Il est assez facile d'extraire les positions des croisements évités des mesures expérimentales, pour ceci il suffit de trouver les valeurs du champ Stark pour les centres des signaux de croisements évités, comme pour ceux montrés sur la figure II-18. Les valeurs des champs mesurées et calculées pour les croisements évités  $|m_l| = 0$  sont inquées dans le tableau II-3. On remarque que les champs mesurés expérimentalement sont en très bon accord avec les valeurs calculées.

n	n,3		n,4		n,5	
	expérience	calcul	expérience	calcul	expérience	calcul
20	49,9	50,2	65,9	65,5	78,4	77,6
21	38,9	39,1	51,0	50,5	59,9	59,2
22	30,7	30,8	39,9	39,5	46,5	45,8
23	24,8	24,6	31,7	31,3	36,5	36,0
24	19,8	19,8	25,4	25,0	29,0	28,6

*Tableau II-3: Valeurs [V/cm] expérimentales et calculées des positions en champ Stark des centres des croisements évités entre les niveaux  $(n+4)s$  et  $n,k$   $|m_l| = 0$ .*

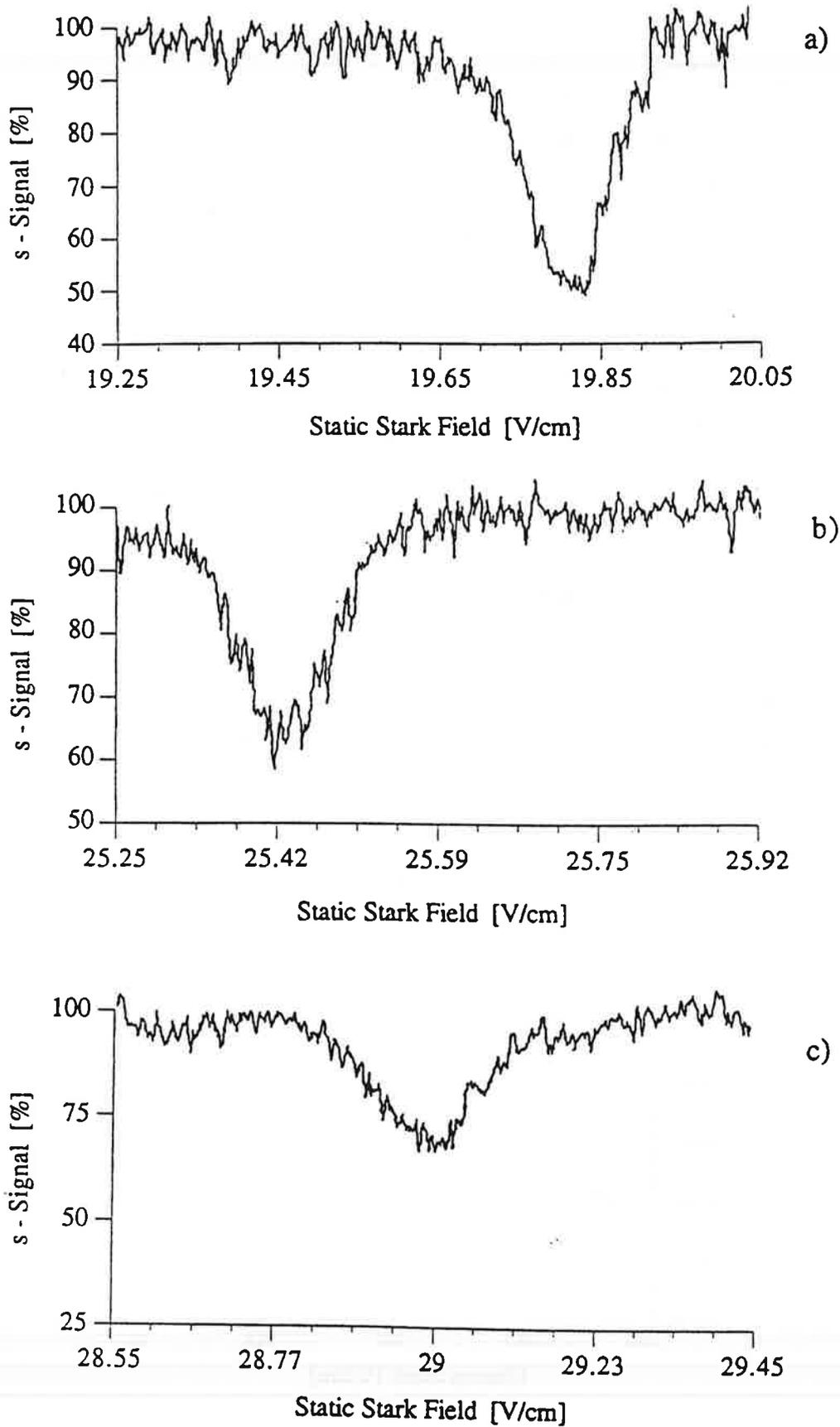


Figure II-18: Signaux expérimentaux des croisements évités entre le niveau 28s et les niveaux (a) 24,3 (b) 24,4 (c) 24,5.

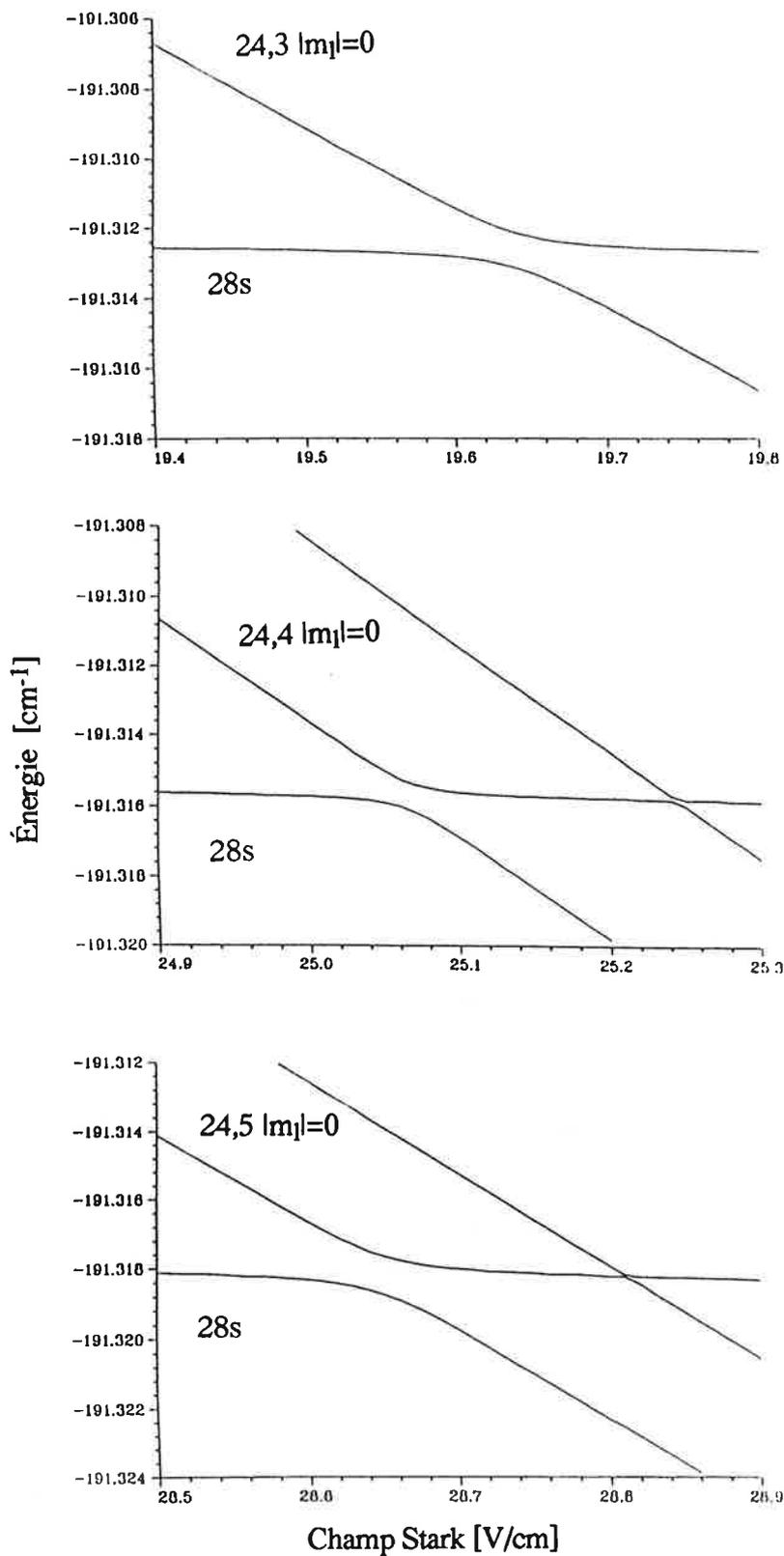


Figure II-19: Allure calculée des niveaux d'énergie pour les croisements évités correspondants aux signaux expérimentaux de la figure III-18.

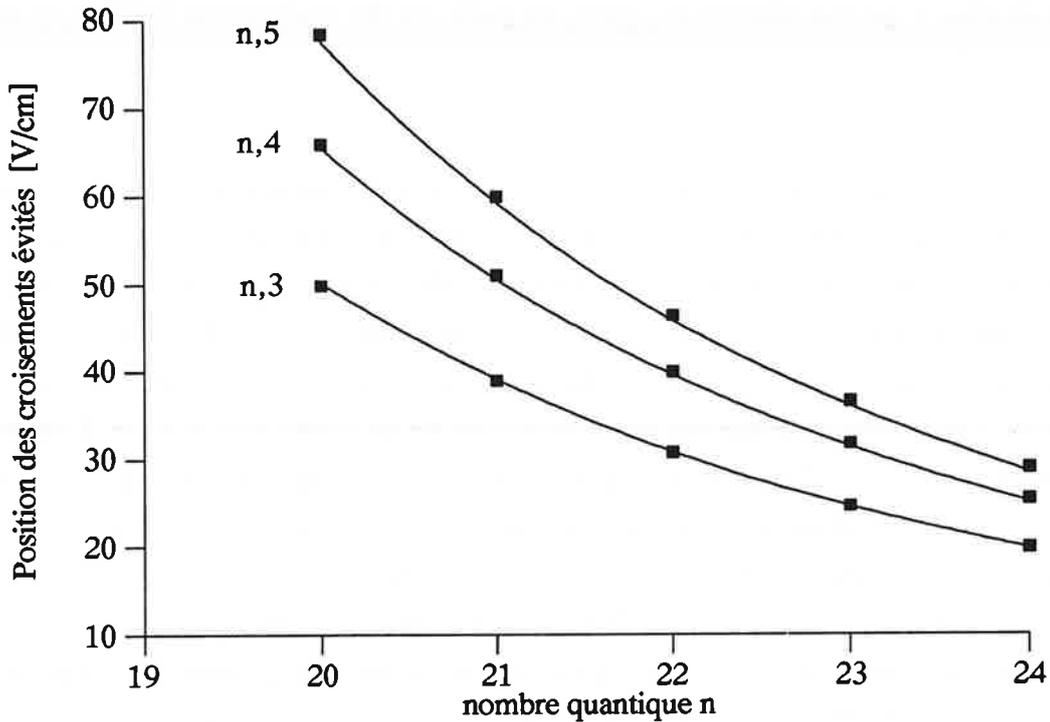


Figure II-20: Positions des croisements évités. Les points expérimentaux sont comparés à un fit qui joint les points calculés par diagonalisation d'une matrice Hamiltonienne tronquée.

Les positions des croisements évités suivent des variations qui sont approximativement en  $n^{-5}$ , comme on peut le voir sur la figure II-20. Sur cette figure, on peut observer les points expérimentaux, qui sont comparés à un fit des points calculés. En détail, on trouve que les champs de position des croisements évités entre  $(n+4)s$  et  $n,k$   $|m_l| = 0$  sont donnés par les fonctions:

$$E_{(n+4)s - n,3} [\text{V/cm}] = 2,31 \cdot 10^8 n^{-5,12} \quad (\text{II} - 60)$$

$$E_{(n+4)s - n,4} [\text{V/cm}] = 2,64 \cdot 10^8 n^{-5,08}$$

$$E_{(n+4)s - n,5} [\text{V/cm}] = 7,92 \cdot 10^8 n^{-5,39}$$

On s'attend à ce que ces exposants soient proches de -5 en se basant sur de simples arguments physiques. Les déplacements Stark [(énergie/champ)] des niveaux de la multiplicité sont de l'ordre de  $n^2$ . La différence d'énergie, en champ nul, entre l'état  $s$  et les états de la

multiplicité quant à elle varie en  $n^{-3}$ . C'est pour cette raison que, si on néglige le déplacement Stark de l'état  $s$  qui est relativement petit, les positions des croisements évités sont supposées varier en  $n^{-5}$ .

L'erreur expérimentale, qui est comparable à la dimension des points qu'on peut observer sur la figure II-20 tient compte de différentes sources d'erreurs. Celles-ci sont données par l'inhomogénéité du champ Stark, la difficulté de déterminer exactement le centre des signaux des croisements évités, l'impossibilité de savoir avec exactitude la valeur du champ Stark effectivement appliqué sur les plaques métalliques, et l'incertitude sur la distance séparant celles-ci. Ceci va nous donner une erreur totale qui est de l'ordre de 0,5 V/cm. L'erreur la plus importante est celle de l'incertitude du champ Stark effectivement appliqué, qui provient du fait qu'on ne peut pas mesurer les champs directement à l'intérieur de l'enceinte de vide tout en mesurant. On mesure donc le champ Stark à l'entrée de l'enceinte avec un voltmètre, dont la précision de lecture n'était que de 0,1 V/cm. L'incertitude sur la distance entre les deux plaques peut jouer un rôle essentiel, il suffit d'une très petite incertitude pour provoquer de larges erreurs sur les champs. Vu l'excellent accord entre les mesures et les calculs, l'incertitude sur la distance entre les plaques semble être assez petite:  $15 \text{ mm} \pm 0,1 \text{ mm}$ .

Sur la figure II-20, les points de mesure sont comparés à des fits reliant les positions calculées des croisements évités. Ces calculs ont été réalisés par diagonalisation d'une matrice Hamiltonienne tronquée [ZIM 79]. Pour être sûr de l'exactitude des valeurs calculées, il faut être sûr d'utiliser des défauts quantiques pour les différents états qui soient le plus exact possible. Au début de nos calculs, on avait omis le défaut quantique (très petit) du niveau  $g$ . Ainsi on obtenait pour les positions des croisements évités entre  $(n+4)s$  et  $n,f$  des valeurs calculées étant 10% plus importantes que celles qu'on mesurait expérimentalement, tandis que les positions des autres croisements évités présentaient un décalage de moins de 3%. Après avoir longtemps cherché l'erreur du côté de l'expérience, on a trouvé qu'en mettant un petit défaut quantique pour le niveau  $g$  [RUF 80] dans nos calculs, on arrivait à trouver des valeurs calculées en excellent accord avec celles mesurées. En fait, on pourrait même penser à améliorer la précision de certains défauts quantiques, mais ceci ne serait réalisable qu'avec des mesures d'une exactitude très difficile à atteindre. On voit donc à cet exemple, que les croisements évités peuvent être utilisés pour tester des calculs et modèles théoriques.

*β) Largeurs des croisements évités*

Cela demande un peu plus d'effort pour extraire les largeurs des signaux de croisements évités observés. Tout d'abord un petit calcul est nécessaire.

1) calcul de la séparation d'un croisement évité

Sur la figure II-6, on voit qu'un croisement évité est caractérisé par sa séparation des niveaux  $\omega_0$  [en MHz] et par sa largeur  $q_0$  [en V/cm] défini par la formule (II-43). Ici le paramètre  $q$  utilisé dans la partie II-3-2 de ce chapitre est identique avec le champ statique Stark, dont dépendent les niveaux d'énergie. Sur les signaux, on mesure la largeur de ceux-ci à mi-hauteur du signal, que nous appellerons ici  $q_{1/2}$ . Comment la séparation des niveaux  $\omega_0$  dépend-elle de  $q_{1/2}$ ?

La largeur  $q_{1/2}$  correspond à une séparation  $\omega_{1/2}$  qui est:

$$\omega_{1/2} = \left| \omega \left( q_c \pm \frac{1}{2} q_{1/2} \right) \right| \quad (\text{II - 61})$$

avec:  $\omega(q) = \omega_1 - \omega_2$ ,

$q_c$ : champ Stark du croisement.

Les niveaux d'énergie non perturbés ( $\omega_1$  et  $\omega_2$ ) suivent des droites. Celui de l'état  $s$  est supposé être une droite horizontale, ce qui est pratiquement le cas. Donc on trouve que  $\omega(q)$  est une droite de même pente que le niveau  $n,k$  et qu'on dénote ici par  $a$ :

$$\omega(q) = a \cdot q$$

Donc: 
$$\omega_{1/2} = a \cdot \frac{1}{2} q_{1/2} \quad (\text{II - 62})$$

A mi-hauteur d'un signal parfait de croisement évité (signal représentant une décroissance de 50% du signal  $s$ ) les niveaux sont des superpositions linéaires de coefficients

75% et 25% (ou plutôt  $\sqrt{3/4}$  et  $\sqrt{1/4}$ ) des états asymptotiques purs. En prenant donc la formule (II-45) décrivant les vecteurs propres, on trouve:

$$\begin{aligned} \cos^2 \frac{\theta}{2} &= \frac{3}{4} \text{ et } \sin^2 \frac{\theta}{2} = \frac{1}{4} \\ \rightarrow \theta \left( q_c \pm \frac{1}{2} q_{1/2} \right) &= 60^\circ \quad \left( = \frac{\pi}{3} \right) \\ \rightarrow \tan \theta \left( q_c \pm \frac{1}{2} q_{1/2} \right) &= \sqrt{3} \end{aligned}$$

$$\text{et} \quad \underline{\omega_0 = \frac{1}{2} \sqrt{3} a q_{1/2}} \quad (\text{II - 63})$$

avec: a: pente du niveau n,k [MHz/(V/cm)],

$\omega_0$ : séparation du croisement évité [MHz],

$q_{1/2}$ : largeur à mi-hauteur du signal observé du croisement évité [V/cm].

n	n,3	n,4	n,5
20	16,18	19,73	17,05
21	17,70	21,76	18,49
22	19,44	23,92	20,39
23	21,39	26,21	22,76
24	23,56	28,62	25,59

*Tableau II-4: Pentés des niveaux n,k aux alentours des croisements évités avec les niveaux correspondants (n+4)s, qui ont été utilisées pour le convertissement des largeurs des signaux expérimentaux en vue de l'obtention des valeurs expérimentales pour les séparations des niveaux des croisements évités. Les valeurs indiquées sont en mK/(V/cm).*

Les pentés des niveaux n,k dans les alentours des croisements évités, utilisées pour le calcul des séparations sont indiquées dans le tableau II-4. Ces pentés ont été tirées des calculs théoriques des niveaux Stark, et sont données en mK/(V/cm) ( $= 10^{-3} \text{ cm}^{-1}/(\text{V/cm})$ ). On peut aussi écrire ces pentés pour les niveaux n,k en tant que  $1,218 n^2$ ,  $1,486 n^2$ , et  $1,302 n^2$  MHz/(V/cm), pour k = 3, 4, et 5 respectivement.

**n,3**

(n+4)s	Largeur observée [MHz]	baisse du signal [%]	Largeur corrigée [MHz]	Largeur calculée [MHz]
24s	65,8	33	43,4	43,4
25s	58,9	32	37,7	37,0
26s	37,4	43	32,1	31,8
27s	32,1	46	29,5	27,5
28s	30,1	48	28,9	24,1

**n,4**

(n+4)s	Largeur observée [MHz]	baisse du signal [%]	Largeur corrigée [MHz]	Largeur calculée [MHz]
24s	56,4	34	38,3	38,6
25s	48,1	33	31,7	31,3
26s	33,8	39	26,4	25,7
27s	31,5	41	25,8	21,2
28s	29,7	42	24,6	17,1

**n,5**

(n+4)s	Largeur observée [MHz]	baisse du signal [%]	Largeur corrigée [MHz]	Largeur calculée [MHz]
24s	111,1	28	62,2	64,3
25s	76,7	33	50,6	49,0
26s	74,7	25	37,4	38,6
27s	40,1	38	30,5	31,4
28s	41,6	32	26,6	25,7

*Tableau II-5: Largeurs à mi-hauteur des signaux expérimentaux, taux de baisse du signal s sur le croisement évité, largeurs corrigées à l'aide de la première méthode de correction, et les valeurs calculées pour les largeurs des croisements évités à titre comparatif.*

Malheureusement, on voit dans le tableau II-5 que les largeurs tirées directement des signaux observés de croisements évités sont bien plus importantes que celles calculées par diagonalisation d'une matrice Hamiltonienne tronquée.

Il semble donc nécessaire de faire quelques corrections pour tenir compte de ces élargissements des signaux expérimentaux.

## 2) corrections des données expérimentales

Pour essayer d'obtenir des valeurs correctes pour les séparations des croisements évités, il semble nécessaire de faire quelques corrections. Il faut donc tenir compte de quelques sources d'élargissements des signaux expérimentaux dont la principale est l'inhomogénéité des champs électriques. Ce facteur est responsable d'une baisse du signal et d'un élargissement de la largeur à mi-hauteur.

Quelle devrait être l'allure d'un signal d'un croisement évité si le champ Stark  $q$  varie linéairement dans le temps? Sur la figure II-21a, on a représenté la proportion d'état pur  $s$  se trouvant dans les différents niveaux du croisement évité 26s - 22,3 représenté sur la figure II-21b. On voit que le signal qu'on devrait observer a l'allure d'une Lorentzienne, et en faisant un calcul rapide à l'aide des vecteurs propres (II-45), on trouve que le signal est décrit par la fonction:

$$f(q) = \frac{1}{2} \left( 1 + \left[ \frac{1}{1+t^2} \right]^{1/2} \right) \quad (\text{II - 64})$$

$$\text{avec: } t = \tan \theta(q) = \frac{\omega_0}{\omega(q)} = \frac{\omega_0}{a q}$$

où l'origine  $q = 0$  coïncide avec la valeur du champ Stark du milieu du croisement évité.

On peut introduire l'influence de l'inhomogénéité des champs en supposant que le signal est décrit par une superposition de Lorentziennes ayant différents poids.

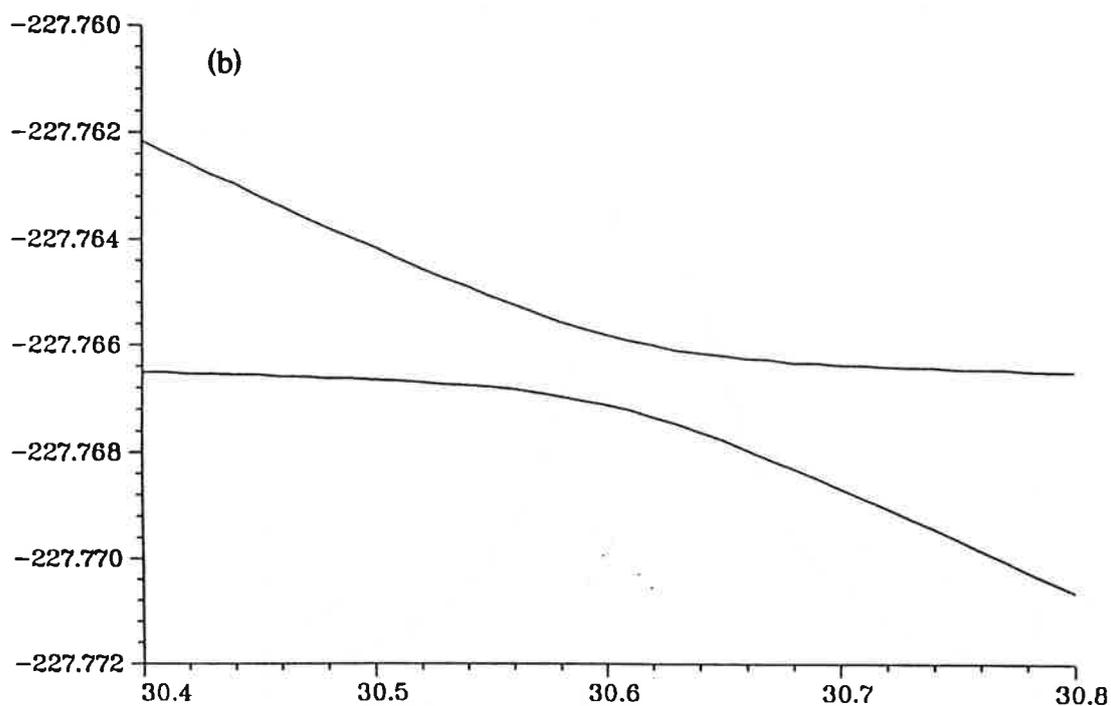
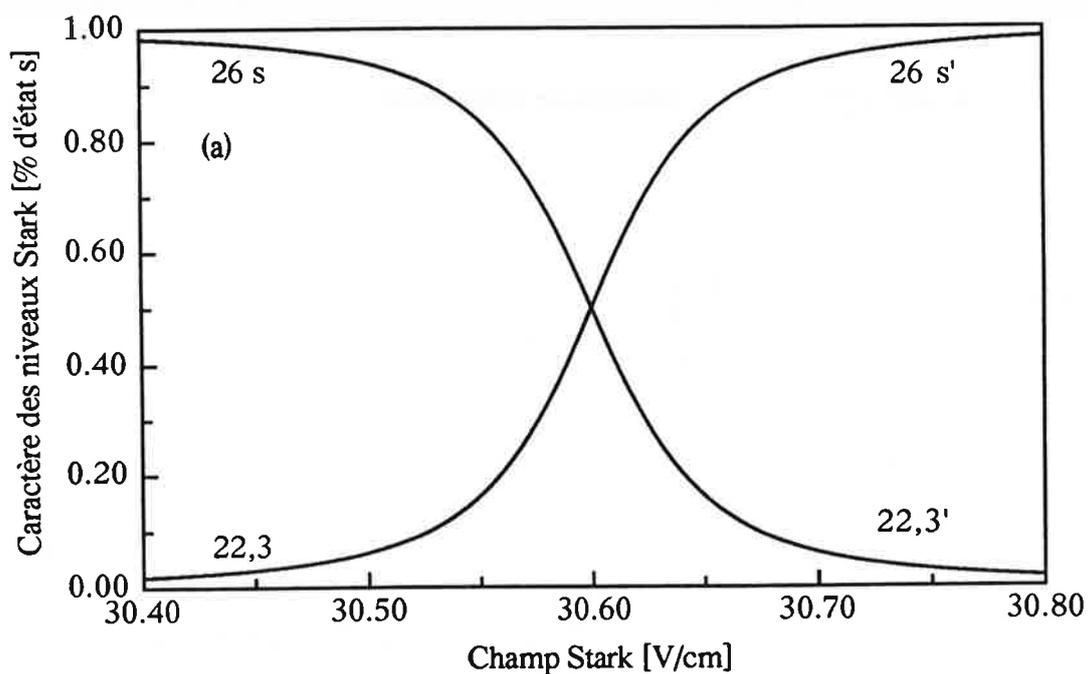


Figure II-21: (a) Proportion d'état pur  $s$  dans les différents niveaux intervenant dans les croisements évités  $26s - 22,3$ . (b) Allure des niveaux d'énergie pour les croisements évités correspondants entre le niveau  $26s$  et les niveaux  $22,3$ .

On prend:  $f(x) = \frac{1}{(2x)^2 + 1}$  fonction de Lorentz de hauteur 1 et de largeur 1,

$g(y_0) = \frac{1}{y_0}$  fonction de distribution,

et on trouve pour:  $F(x, y_0) = \frac{1}{y_0} \int_{\frac{y_0}{2}}^{+\frac{y_0}{2}} \frac{1}{4(x-x_0)^2 + 1} dx_0$

$$F(x, y_0) = -\frac{1}{2y_0} \arctan\left(-\frac{2y_0}{(2x)^2 - y_0^2 + 1}\right) \quad (\text{II - 65})$$

Ici  $y_0$  dénote le degré d'inhomogénéité du champ électrique statique Stark appliqué dans l'expérience ( $y_0 = 0$ : champ homogène). Quelques fonctions sont dessinées sur la figure II-22 et on remarquera une baisse et un élargissement du signal avec  $y_0$  croissant.

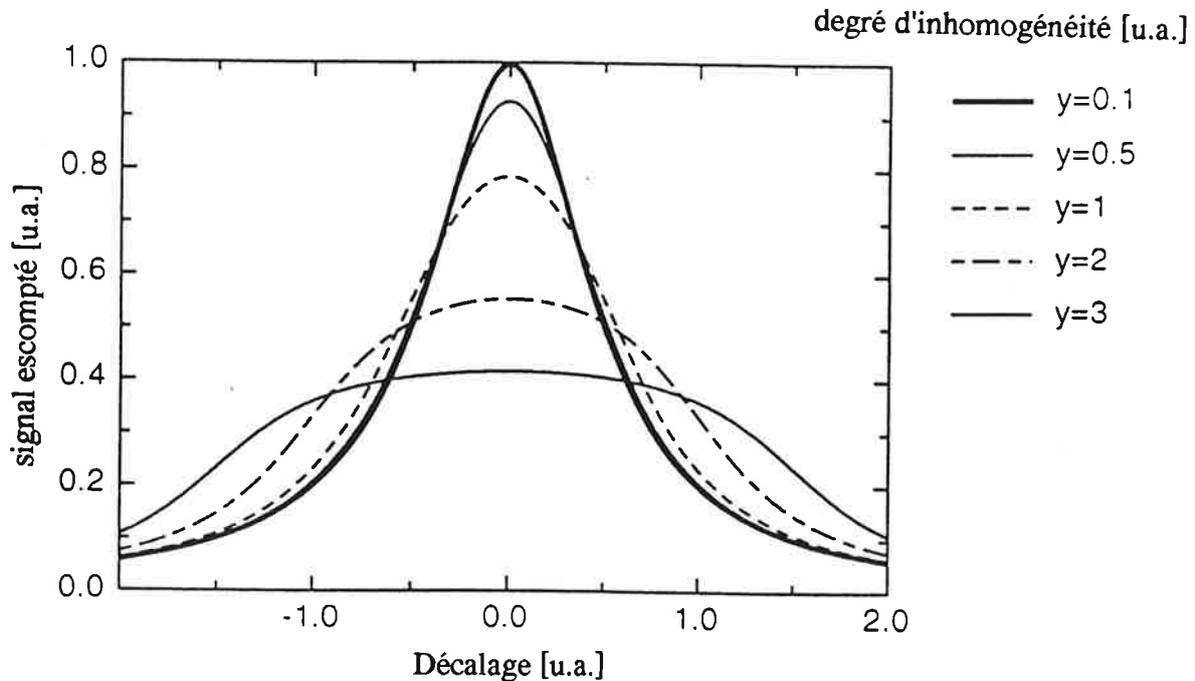


Figure II-22: Fonctions Lorentziennes décrites par l'expression (II-65), pour différentes valeurs du degré d'inhomogénéité  $y_0$  du champ. On remarque une baisse et un élargissement du signal en allant d'un champ homogène ( $y_0 = 0$ ) à un champ de plus en plus inhomogène.

Pour corriger nos mesures expérimentales, on a utilisé deux méthodes différentes, qui sont toutes les deux basées sur les réflexions faites en haut sur la forme d'un signal parfait et la manière de distorsion de celui-ci par une inhomogénéité du champ Stark.

- 1<sup>ière</sup> méthode [NOS 95]

En bonne approximation, l'aire du signal reste inchangée par une baisse et un élargissement simultanés dus à l'inhomogénéité du champ Stark. Ainsi, une correction raisonnable des largeurs observées consisterait dans la multiplication de celles-ci par le rapport de la hauteur du signal observé à celle d'un signal parfait (50%).

On obtient ainsi:  $\omega_{\text{corr}} = c \cdot \omega_{\text{obs}}$ , avec:  $c = \Delta S / 0,5$       ( $0 < S \leq 0,5$ )

Les valeurs de la hauteur du signal d'un croisement évité sont indiquées dans le tableau II-5. Une valeur de 50% ( $\Delta S = 0,5$ ) correspond à un signal parfait, c'est-à-dire une décroissance de 50% du signal  $(n+4)s$ , tandis qu'une valeur inférieure à 50% correspond à une baisse du signal de croisement évité (une décroissance plus faible du signal  $(n+4)s$ ).

En appliquant cette correction, on trouve les valeurs corrigées pour les largeurs qui sont indiquées dans le tableau II-5. On observe que celles-ci correspondent raisonnablement aux valeurs calculées (voir figure II-23).

Les barres d'erreurs indiquées sur la figure II-23 tiennent compte de différents facteurs:

- erreur dans la lecture de la largeur expérimentale à mi-hauteur du signal
- erreur dans la détermination de l'importance du signal
- erreur sur les pentes des niveaux  $n,k$
- erreur sur la distance des plaques

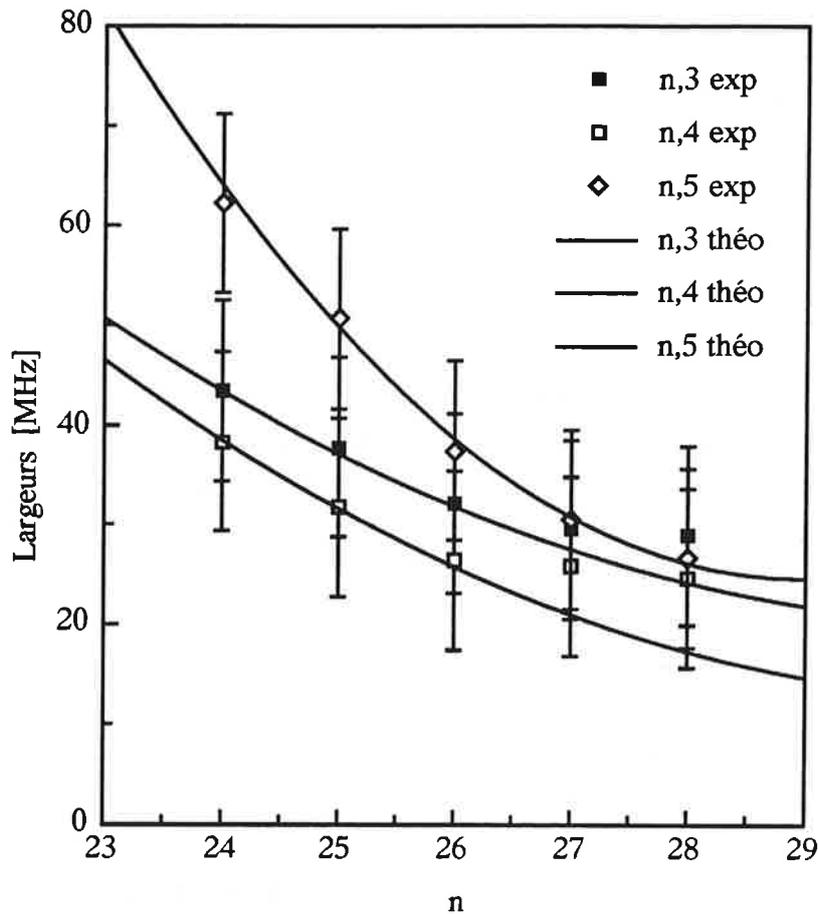


Figure II-23: Valeurs expérimentales pour les séparations des croisements évités, comparées à des valeurs calculées.

Ceci nous donne une imprécision totale d'à peu près 9 % sur les largeurs corrigées. Malgré ceci, on remarque que différents points expérimentaux ne correspondent pas tout à fait aux calculs, ceci semble indiquer que la limite de résolution de cette expérience est aux alentours de 30 MHz. Ces séparations limites correspondent à des largeurs à mi-hauteur du signal expérimental de  $5 \cdot 10^{-2}$  V/cm.

- 2<sup>ème</sup> méthode

Cette méthode de correction des mesures joue sur le fait que l'élargissement du signal est plus faible si on ne prend pas la largeur à mi-hauteur de celui-ci. Ici on a pris les largeurs du signal de croisement évité à un niveau constant de 10 %, respectivement 5 % du signal  $(n+4)s$  total (et non du signal du croisement évité). On remarque que pour ces valeurs, les élargissements des fonctions montrées sur la figure II-22 sont proportionnellement plus

faibles que celles des largeurs à mi-hauteur. Les calculs utilisés pour trouver les séparations des croisements évités sont:

$$\omega_0 = 1/2 \cdot 3/4 \cdot a \cdot q_{10\%} \quad \text{pour la largeur à 10\% du signal (n+4)s total}$$

$$\omega_0 = 1/2 \cdot 0,4843 \cdot a \cdot q_{5\%} \quad \text{pour la largeur à 5\% du signal (n+4)s total}$$

On trouve ainsi les valeurs pour les largeurs des croisements évités qui sont indiquées dans le tableau II-6, avec les largeurs calculées indiquées à titre comparatif. On voit sur la figure II-24 que les valeurs des largeurs ainsi trouvées concordent relativement bien avec les calculs et sont similaires à ceux de la figure II-23. De même, on voit que la résolution de l'expérience semble limitée à des largeurs de 30 MHz.

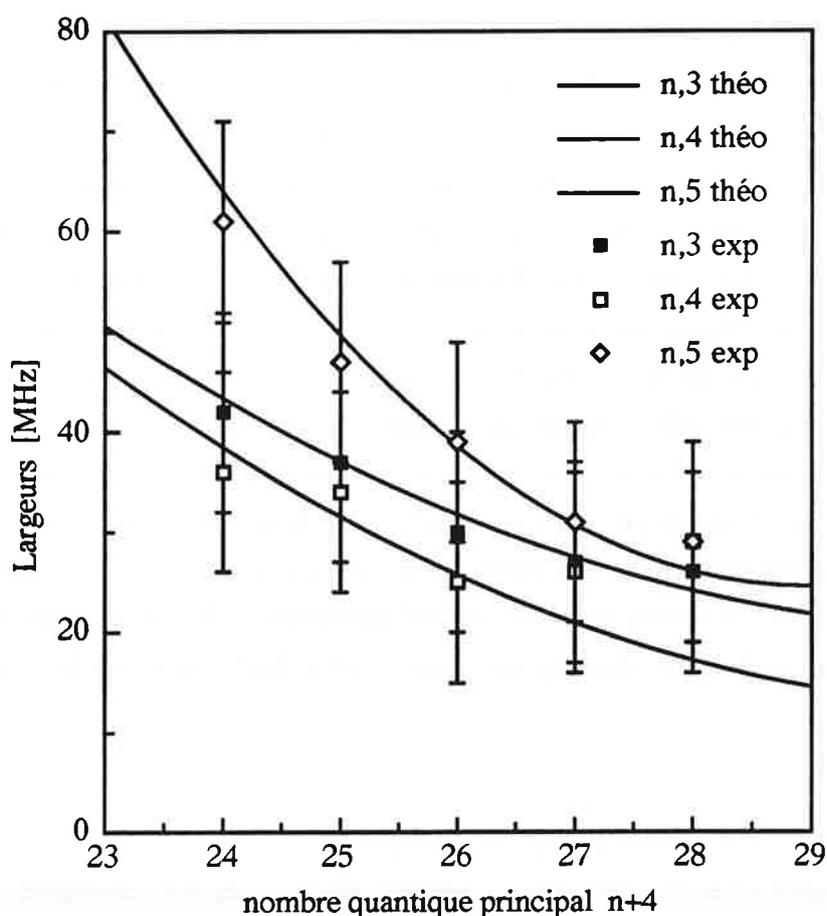


Figure II-24: Valeurs expérimentales des croisements évités, corrigées à l'aide de la deuxième méthode décrite. Ces valeurs sont comparées à des valeurs calculées pour les séparations.

n	n,3 à 10%	n,3 à 5%	n,4 à 10%	n,4 à 5%	n,5 à 10%	n,5 à 5%
20	43	42	36	36	54	61
21	39	37	36	34	50	47
22	35	30	25	25	38	39
23	36	27	33	26	27	31
24	32	26	34	29	33	29

Tableau II-6: Largeurs expérimentales [MHz] obtenues en prenant les largeurs des signaux expérimentaux à des niveaux de 10 et 5% du signal  $s$  total (deuxième méthode de correction).

### 3) discussion des largeurs obtenues

En regardant les figures II-23 et II-24 de plus près, on remarque que les dépendances en  $n$  des largeurs des croisements évités ne sont pas toutes les mêmes. Les largeurs des croisements évités du niveau  $(n+4)s$  avec les niveaux  $n,4$  et  $n,5$  montrent des dépendances en  $n^{-4,43}$  et  $n^{-4,96}$ , tandis que les largeurs des croisements évités  $(n+4)s - n,3$  varient en  $n^{-3,06}$ . La raison de cette différence de variation des croisements évités  $(n+4)s - n,3$  peut être illustrée en regardant la figure II-17. Aux positions des croisements évités de  $(n+4)s$  et  $n,4$  et  $n,5$ , la multiplicité Stark (et donc les niveaux  $n,4$  et  $n,5$  y appartenant) est plus ou moins complète, c'est-à-dire elle contient un mélange de tous les états  $l > 3$ . En conséquence, la composition de ces états Stark ne va pas changer considérablement avec  $n$  variant de 20 à 24. Au contraire, au croisement évité entre  $(n+4)s$  et  $n,3$ , l'état  $n,3$  ne fait pas encore complètement partie de la multiplicité. Ce niveau garde encore une proportion substantielle de caractère  $nf$ . Si  $n$  croît de 20 à 24, on trouve que  $|\langle nf | n,3 \rangle|^2$  augmente de 50% à 54%, et ceci va conduire à une décroissance plus lente des séparations des croisements évités  $(n+4)s - n,3$  en fonction de  $n$ .

### 4) sources d'erreurs expérimentales

Comme déjà remarqué auparavant, seulement les croisements évités avec  $|m_l| = 0$  sont visibles sur les signaux expérimentaux. Les croisements évités avec  $|m_l| = 1$  sont trop étroits pour pouvoir être observés. L'inhomogénéité du champ statique Stark semble donc nous brouiller complètement ce signal, ce qui peut nous donner quelques informations au sujet de

l'importance minimale de cette inhomogénéité. L'inhomogénéité du champ Stark semble donc comporter au minimum une valeur de 0.025 V/cm pour un champ appliqué de 25.2 V/cm, soit 0.1 %.

Tandis que l'inhomogénéité du champ Stark conserve approximativement l'aire totale du signal de croisement évité, en provoquant une baisse et un élargissement simultanés de celui-ci, il existe un autre facteur qui lui, ne provoque qu'une baisse du signal et donc une diminution de l'aire de celui-ci. Si les signaux d'ionisation par champ des états  $(n+4)s$  et  $n,k$  se superposent partiellement, on observera des signaux de croisement évité ne descendant plus jusqu'à 50% du signal total de  $(n+4)s$ , mais à une valeur inférieure à celle-ci. Ainsi, on comprend facilement les valeurs du maximum du signal indiquées dans le tableau II-5. Le signal va en décroissant de  $n,3$  à  $n,5$ . Ceci est compréhensible, puisque le seuil d'ionisation de ces niveaux se rapproche de plus en plus du seuil d'ionisation de  $(n+4)s$  pour  $k$  allant de 3 à 5, donc les signaux d'ionisation se superposent de plus en plus. Comme on ne tient pas compte de ce facteur en corrigeant nos largeurs mesurées (dans la première méthode, on a supposé l'aire du signal de croisement évité constante), on devrait trouver des largeurs trop étroites, ce qui ne semble pas être le cas. Il semble que ce facteur soit contrebalancé par d'autres sources d'élargissement du signal dont on ne tient pas non plus compte.

On observe une autre source d'élargissement des signaux de croisement évité. En moyennant les signaux sur plusieurs balayages d'un croisement évité, on obtient un signal légèrement plus large qu'un signal non moyenné. Malheureusement, les signaux non moyennés présentent un très mauvais rapport signal sur bruit, bruit qui est surtout dû à des fluctuations de la puissance laser. On essaye donc de trouver un compromis entre le nombre de balayages sur lesquels on moyenne et le rapport signal sur bruit, en ne moyennant que sur quelques coups (typiquement 5 coups).

Si les croisements évités étudiés n'étaient pas traversés purement adiabatiquement, on assisterait à une baisse du signal. Ceci semble pouvoir être exclu dans cette expérience. Comme on l'a vu auparavant, tous les paramètres de l'expérience ont été choisis de façon à assurer un passage parfaitement adiabatique à travers les croisements évités en question.

Un autre phénomène, qui lui peut être assimilé à une inhomogénéité d'un champ électrique, est le petit champ électrique créé par des ions produits par photoionisation durant l'excitation Rydberg. Notre excitation Rydberg à deux photons assure toutefois une excitation d'un nombre d'atomes de Rydberg suffisants, sans obtenir trop de photoionisation.

Il y a encore un paramètre important qui n'a pas été mentionné jusqu'à maintenant et qui peut jouer un rôle essentiel sur l'allure du signal de croisement évité. La largeur spectrale finie du laser utilisé peut entraîner quelques modifications au niveau du signal observé. Un laser d'une largeur spectrale infinie, c'est-à-dire grande par rapport à la séparation des niveaux des croisements évités, est une des conditions nécessaire à l'obtention d'un signal d'une forme Lorentzienne. Si la largeur spectrale du laser est comparable à la séparation des niveaux, comme c'est le cas dans cette expérience, le laser risque de sortir de résonance prématurément avec le niveau  $(n+4)s$  en balayant le champ Stark. Ainsi, on obtient une décroissance plus rapide du signal  $(n+4)s$  sur le croisement évité et un maximum relativement plat en forme de plateau, ce qui conduit à un élargissement du signal expérimental.

Malgré la présence de tants de sources potentielles d'erreurs, les méthodes présentées auparavant semblent donner des résultats parfaitement satisfaisants. Ceci est probablement dû au fait que tous ces paramètres sont bien contrôlés dans l'expérience et les erreurs donc assez faibles pour ne pas trop influencer nos mesures.

Une autre méthode très précise pour extraire les largeurs des données expérimentales, serait de fiter les signaux de croisements évités par des fonctions du type Lorentzien (II-65). Comme les données expérimentales n'étaient pas disponibles sous forme de données informatiques, on a malheureusement dû laisser tomber cette méthode, sous peine d'y passer trop de temps.

#### **II - 4 - 4 - Perspectives: Spectroscopie à l'aide de battements quantiques**

La méthode des battements quantiques [FAB 75,80] repose sur le fait que le système de deux niveaux d'un croisement évité peut osciller entre les deux états non-perturbés avec le temps [COH 92]. Supposons que le système soit à l'instant  $t = 0$  dans l'état  $|s\rangle$ :

$$|\psi(0)\rangle = |s\rangle$$

Si on se place exactement au centre du croisement évité, on trouve pour la probabilité de trouver le système à l'instant  $t$  dans l'état  $|k\rangle$ ,  $P_{sk}(t) = |\langle k | \psi(t) \rangle|^2$ :

$$P_{sk}(t) = \sin^2\left(\frac{\omega_0}{2\hbar} t\right) \quad (\text{II - 66})$$

Cette formule est parfois désignée sous le nom de formule de Rabi. On voit clairement que le système oscille entre les deux états non perturbés  $|s\rangle$  et  $|k\rangle$ .

Dans une expérience de battements quantiques, on excite un des deux états non-perturbés, ce qui serait dans notre cas l'état  $(n+4)s$ . En détectant l'état  $(n+4)s$  ou  $n,k$  à l'aide d'ionisation par champ, on détecte des battements dans le signal d'ionisation par champ, en fonction du délai  $t$  entre l'excitation Rydberg et le champ d'ionisation. Ainsi on peut extraire la séparation  $\omega_0$  du croisement évité.

Pour que la cohérence soit gardée, c'est-à-dire pour pouvoir observer une oscillation entre les états  $|s\rangle$  et  $|k\rangle$ , il faut que l'excitation laser soit plus courte que la demi-période d'oscillation de Rabi du système qui est ici de:

$$2/\omega_0 = 8 \text{ ns} \quad \text{pour un croisement évité de largeur 60 MHz}$$

$$2/\omega_0 = 25 \text{ ns} \quad \text{pour un croisement évité de largeur 20 MHz}$$

En principe, il est donc possible de créer une superposition cohérente des états propres au croisement évité et d'observer des battements quantiques dans le signal d'ionisation d'ou bien  $(n+4)s$  ou  $n,k$ . Malheureusement, les inhomogénéités des champs électriques dans notre expérience détruit toute cohérence jusqu'au moment où le champ d'ionisation est appliqué.

## II - 5 Conclusion

Dans ce chapitre, on a détaillé des études spectroscopiques de croisements évités et ceci par différentes méthodes.

Ces études ont eu comme motivation une meilleure compréhension de l'attitude d'un atome de Rydberg dans l'ionisation par champ électrique pulsé. Un problème central de la détection d'un état de Rydberg par ionisation par champ pulsé, consiste dans la compréhension de l'évolution de cet état avec l'application du champ. Si ce champ varie lentement, l'état va suivre un chemin adiabatique, tandis que dans le cas contraire, il va traverser le croisement évité diabatiquement. Les seuils d'ionisation peuvent différer significativement dans les deux cas, ce qui a été observé par Gallagher et al. [GAL 76a] et Jeys et al. [JEY 80].

Pour prédire la façon exacte selon laquelle un état de Rydberg va ioniser, on doit donc comprendre la structure des niveaux suffisamment en détail pour pouvoir prédire le chemin qu'il va suivre jusqu'au seuil. En pratique, on fait souvent une supposition raisonnable en espérant qu'elle soit bonne.

Les premières mesures de position et de séparation de croisements évités ont été réalisées à l'aide de la méthode classique de spectroscopie laser. Les résultats médiocres obtenus ainsi, nous ont encouragés à utiliser une nouvelle méthode. Cette technique simple et efficace est basée sur la dépendance du seuil d'ionisation de la structure des niveaux entrants en jeu. On a ainsi réalisé une nouvelle méthode de spectroscopie de croisements évités utilisant une excitation Rydberg pulsée et une détection par ionisation par champ électrique. Cette méthode est complémentaire à une méthode spectroscopique purement laser et particulièrement utile si la largeur du croisement évité est plus petite que la largeur spectrale du laser d'excitation Rydberg. On a utilisé cette méthode pour mesurer systématiquement les positions et séparations des croisements évités entre le niveau  $(n+4)s$  et les niveaux  $n,k$  de la multiplicité voisine, avec  $n = 20$  à  $24$  et  $k = 3, 4, \text{ et } 5$ .

Uniquement les croisements évités entre des niveaux Stark qui sont prédominants  $|m_l| = 0$ , ont pu être observés. Les positions et largeurs mesurées des croisements évités sont en bon accord avec les valeurs calculées par diagonalisation de matrice. La limite de résolution dans notre expérience est de l'ordre de  $30$  MHz, ce qui pourrait être amélioré en ayant un meilleur contrôle de l'homogénéité des champs appliqués. En éliminant d'autres sources

d'erreurs, ou au moins en essayant de les minimiser au maximum, on pourrait non seulement tester les différentes approches théoriques de l'effet Stark, mais même essayer de gagner en précision sur des défauts quantiques par exemple. Malheureusement, ceci demanderait une précision expérimentale de loin meilleure à celle obtenue ici. Cette technique pourrait donc, en étant optimisée, devenir une méthode très pratique, étant à la fois facile et efficace, pour faire de la spectroscopie à haute résolution de croisements évités relativement étroits.

## Références du chapitre II

- [BAT 49] D.R. Bates and A.Damgaard, *Philos. Trans. R. Soc. London* **242**, 101, (1949).
- [BET 57] H.A. Bethe and E.A. Salpeter, *Quantum Mechanics of One- and Two-Electron Atoms* (Springer Verlag, Berlin, 1957).
- [BRA 87] P.A. Braun, *Opt. Spectrosc.* **61**, 164, (1987).
- [BRU 87] M. Brune, J.M. Raimond, P. Goy, L. Davidovitch, and S. Haroche, *Phys. Rev. Lett.* **59**, 1899, (1987).
- [CAB 86] L. Cabaret, Thèse
- [COH 92] C. Cohen-Tannoudji, B. Diu, F. Laloë, *Mécanique quantique I*, (1992), Hermann, éd.
- [COO 78] W.E. Cooke and T.F. Gallagher, *Phys. Rev. A* **17**, 1226, (1978).
- [DAL 83] A. Dalgarno, in *Rydberg States of Atoms and Molecules*, eds. R.F. Stebbings and F.B. Dunning (Cambridge University Press, Cambridge, 1983).
- [DUC 75] T.W. Ducas, M.G. Littman, R.R. Freeman, and D. Kleppner, *Phys. Rev. Lett.* **35**, 366, (1975).
- [DUN 83] F.B. Dunning and R.F. Stebbing, in *Rydberg States of Atoms and Molecules*, eds. R.F. Stebbings and F.B. Dunning (Cambridge University Press, Cambridge, 1983).
- [FAB 75] C. Fabre, M. Gross, and S. Haroche, *Opt. Commun.* **13**, 393, (1975).
- [FAB 80] C. Fabre, Thèse d'état, (1980).
- [FAB 82] C. Fabre, *Ann. Phys. (Paris)* **7**, 5, (1982).

- [FRE 76] R. Freeman, and D. Kleppner, *Phys. Rev. A* **14**, 1014, (1976).
- [FRE 87] R.R. Freeman, P.H. Bucksbaum, H. Milchberg, S. Darack, D. Schumacher, and M.E. Geusic, *Phys. Rev. Lett.* **59**, 1092, (1987).
- [GAL 76a] T.F. Gallagher, L.M. Humphrey, R.M. Hill, and S.A. Edelstein, *Phys. Rev. Lett.* **37**, 1465, (1976).
- [GAL 77] T.F. Gallagher, L.M. Humphrey, W.E. Cooke, R.M. Hill, and S.A. Edelstein, *Phys. Rev. A* **16**, 1098, (1977).
- [GAL 77b] T.F. Gallagher, L.M. Humphrey, R.M. Hill, W.E. Cooke, and S.A. Edelstein, *Phys. Rev. A* **15**, 1937, (1977).
- [GAL 79a] T.F. Gallagher and W.E. Cooke, *Phys. Rev. Lett.* **42**, 835, (1979).
- [GAL 79b] T.F. Gallagher and W.E. Cooke, *Phys. Rev. A* **19**, 694, (1979).
- [GAL 81] T.F. Gallagher, B.E. Perry, K.A. Safinya, and W. Sandner, *Phys. Rev. A* **24**, 3249, (1981).
- [GAL 83] T.F. Gallagher, in *Rydberg States of Atoms and Molecules*, eds. R.F. Stebbings and F.B. Dunning (Cambridge University Press, Cambridge, 1983).
- [GAL 94] T.F. Gallagher, *Rydberg Atoms*, eds. A. Dalgarno, P.L. Knight, F.H. Read, R.N. Zare (Cambridge University Press, Cambridge, 1994).
- [GOY 82] P. Goy, J.M. Raimond, G. Vitrant, and S. Haroche, *Phys. Rev. A* **26**, 2733, (1982).
- [HÄN 72] T.W. Hänsch, *Appl. Opt.* **11**, 895, (1972).
- [HAR 82] D.A. Harmin, *Phys. Rev. A* **26**, 2656, (1982).
- [HAR 94] D.A. Harmin and P.N. Price, *Phys. Rev. A* **49**, 1933, (1994).

- [HAT 77] G.J. Hatton, *Phys. Rev. A* **16**, 1347, (1977).
- [HIG 82] C. Higgs, M.A. Fineman, F.B. Dunning, and R.F. Stebbings, *J. Phys. B* **15**, L697, (1982).
- [HUI 82] A. L'Huillier, L.A. Lompre, G. Mainfray, and C. Manus, *Phys. Rev. Lett.* **48**, 1814, (1982).
- [HUM 88] D.G. Hummer and D. Mihalis, *Astrophys. J.* **331**, 794, (1988).
- [JACO 76] V.L. Jacobs, J. Davis, and P.C. Kepple, *Phys. Rev. Lett.* **37**, 1390, (1976).
- [JAC 78] P. Jacquinet, S. Liberman, and J. Pinard, in *Etats Atomiques et Moléculaires couplés à un continuum. Atomes et Molécules hautement excités*, eds. S. Feneuille and J.C. Lehman (CNRS, Paris, 1978).
- [JEY 80] T.H. Jeys, G.W. Foltz, K.A. Smith, E.J. Beiting, F.G. Kollert, F.B. Dunning, and R.F. Stebbings, *Phys. Rev. Lett.* **44**, 390, (1980).
- [JEY 82] T.H. Jeys, G.B. McMillian, K.A. Smith, F.B. Dunning, and R.F. Stebbings, *Phys. Rev. A* **26**, 335, (1982).
- [KEL 81] F.G. Kellert, T.H. Jeys, G.B. McMillian, K.A. Smith, F.B. Dunning, and R.F. Stebbings, *Phys. Rev. A* **23**, 1127, (1981).
- [KLE 83] D. Kleppner, M.G. Littman, and M.L. Zimmerman, in *Rydberg States of Atoms and Molecules*, eds. Stebbings R.F. and Dunning F.B. (Cambridge: Cambridge University Press (1983)).
- [KOM 80] I.V. Komarov, T.P. Grozdanov, and R.K. Janev, *J. Phys. B* **13**, L573, (1980).
- [LAN 32] L.D. Landau, *Phys. Z. Sowjetunion* **2**, 46, (1932).
- [LAN 77] L.D. Landau and E.M. Lifshitz, *Quantum Mechanics: Nonrelativistic Theory*, 3rd ed. (Pergamon, New York, 1977), pp. 342 - 351.

- [LIT 78] M.G. Littman, M.M. Kash, and D. Kleppner, *Phys. Rev. Lett.* **41**, 103, (1978).
- [LUC 80] E. Luc-Koenig and A. Bachelier, *J. Phys. B* **13**, 1743, (1980).
- [MCM 82] G.B. McMillian, T.H. Jeys, K.A. Smith, F.B. Dunning, and R.F. Stebbings, *J. Phys. B* **15**, 2131, (1982).
- [MES 85] D. Meschede, H. Walther, and G. Müller, *Phys. Rev. Lett.* **54**, 551, (1985).
- [NOS 95] P. Nosbaum, A. Bleton, L. Cabaret, J. Yu, T.F. Gallagher, and P. Pillet, *J. Phys. B* **28**, 1707, (1995).
- [PEN 88] F. Penent, D. Delande, and J.C. Gay, *Phys. Rev. A* **37**, 4707, (1988).
- [PIN 77] J. Pinard and S. Liberman, *Opt. Comm.* **20**, 344, (1977).
- [RAI 78] J.M. Raimond, M. Gross, C. Fabre, S. Haroche, and H.H. Stroke, *J. Phys. B* **11**, L765, (1978).
- [RUB 81] J.R. Rubbmark, M.M. Kash, M.G. Littman, and D. Kleppner, *Phys. Rev. A* **23**, 3107, (1981).
- [RUF 80] G.A. Ruff, K.A. Safinya, and T.F. Gallagher, *Phys. Rev. A* **22**, 183, (1980).
- [RYD 90] J.R. Rydberg, *Z. Phys. Chem. (Leipzig)* **5**, 227, (1890).
- [SEA 83] M.J. Seaton, *Rep. Prog. Phys.* **46**, 167, (1983).
- [STO 85] R.C. Stoneman and T.F. Gallagher, *Phys. Rev. Lett.* **55**, 2567, (1985).
- [STO 86] R.C. Stoneman, G. Janik, and T.F. Gallagher, *Phys. Rev. A* **34**, 2952, (1986).
- [TUA 76] D.H. Tuan, S. Liberman, and J. Pinard, *Opt. Comm.* **18**, 533, (1976).

- [VIA 79] J.-L. Vialle and H.T. Duong, *J. Phys. B* **12**, 1407, (1979).
- [ZEN 32] C. Zener, *Proc. R. Soc. London Ser. A* **137**, 696, (1932).
- [ZIM 79] M.L. Zimmerman, M.G. Littman, M.M. Kash, and D. Kleppner, *Phys. Rev. A* **20**, 2251, (1979).

the 1990s, the number of people in the world who are under 15 years of age is expected to increase from 1.1 billion to 1.5 billion.

As a result of the demographic changes, the number of people in the world who are aged 65 and over is expected to increase from 300 million in 1990 to 600 million in 2020.

The number of people in the world who are aged 15 and over is expected to increase from 3.5 billion in 1990 to 5.5 billion in 2020.

The number of people in the world who are aged 15 and over is expected to increase from 3.5 billion in 1990 to 5.5 billion in 2020.

The number of people in the world who are aged 15 and over is expected to increase from 3.5 billion in 1990 to 5.5 billion in 2020.

The number of people in the world who are aged 15 and over is expected to increase from 3.5 billion in 1990 to 5.5 billion in 2020.

The number of people in the world who are aged 15 and over is expected to increase from 3.5 billion in 1990 to 5.5 billion in 2020.

The number of people in the world who are aged 15 and over is expected to increase from 3.5 billion in 1990 to 5.5 billion in 2020.

The number of people in the world who are aged 15 and over is expected to increase from 3.5 billion in 1990 to 5.5 billion in 2020.

The number of people in the world who are aged 15 and over is expected to increase from 3.5 billion in 1990 to 5.5 billion in 2020.

The number of people in the world who are aged 15 and over is expected to increase from 3.5 billion in 1990 to 5.5 billion in 2020.

The number of people in the world who are aged 15 and over is expected to increase from 3.5 billion in 1990 to 5.5 billion in 2020.

The number of people in the world who are aged 15 and over is expected to increase from 3.5 billion in 1990 to 5.5 billion in 2020.

The number of people in the world who are aged 15 and over is expected to increase from 3.5 billion in 1990 to 5.5 billion in 2020.

The number of people in the world who are aged 15 and over is expected to increase from 3.5 billion in 1990 to 5.5 billion in 2020.

The number of people in the world who are aged 15 and over is expected to increase from 3.5 billion in 1990 to 5.5 billion in 2020.

The number of people in the world who are aged 15 and over is expected to increase from 3.5 billion in 1990 to 5.5 billion in 2020.



# **Chapitre III: Des collisions résonnantes entre atomes de Rydberg vers les effets collectifs dans un gaz de Rydberg gelé.**

## **III - 1 - Introduction**

Les collisions résonnantes, c'est à dire le processus de collision dans lequel un atome (ou une molécule) A perd autant d'énergie interne que son partenaire de collision l'atome (ou la molécule) B en gagne, ont été sujets de nombreuses études théoriques et expérimentales depuis presque une vingtaine d'années. Elles constituent un cas particulier des collisions avec transfert d'énergie connues en anglais sous le terme "energy pooling collisions". Si le transfert d'énergie par collision a lieu exactement à résonance, la section efficace pour ce processus va être considérablement accrue [MOT 50]. A cause de cette même condition de résonance, il est relativement difficile de faire des études systématiques, puisqu'on doit trouver des quasi-coïncidences dans les niveaux d'énergie des partenaires de collisions. Du même fait, le transfert collisionnel résonnant d'énergie joue un rôle important dans beaucoup d'applications laser, dont les exemples les plus connus sont notamment les lasers He-Ne et CO<sub>2</sub>, où on assiste aux transitions  $\text{He}(2^1\text{S}) + \text{Ne} \rightarrow \text{He}(1^1\text{S}) + \text{Ne}(3^3\text{S}_2)$  et  $\text{N}_2(\nu=1) + \text{CO}_2(000) \rightarrow \text{N}_2(\nu=0) + \text{CO}_2(001)$  [YAR 89]. Les premières expériences ont été réalisées avec les quasi-coïncidences à disposition et ont livrées de nombreux résultats [HOU 81], [OKA 73], [AND 49].

L'étude d'effets de résonance dans des collisions peut être grandement facilitée par l'utilisation d'atomes de Rydberg à cause de certaines de leurs propriétés particulières. Tout d'abord, les atomes de Rydberg présentent de très larges sections efficaces dans de nombreux processus de collision à cause de leur taille géométrique importante. Ce fait permet des temps

d'interactions longs qui sont nécessaires pour produire des résonances de collisions très étroites. Ensuite, les atomes de Rydberg offrent une haute densité d'états, ce qui facilite le fait de trouver des coïncidences en énergie permettant une résonance. Une des premières expériences de ce type fut l'observation du transfert résonnant d'énergie rotationnelle de  $\text{NH}_3$  vers l'énergie électronique d'atomes de Rydberg de Xe par Smith et al. [SMI 78]. Le transfert résonnant d'énergie électronique à l'énergie vibrationnelle a également été observé pour des atomes de Rydberg de Na en collision avec  $\text{CH}_4$  et  $\text{CD}_4$  [GAL 80]. Dans ces expériences, on balaye à travers la résonance de collision (pour étudier les effets propres à celle-ci) en variant systématiquement la séparation d'énergie avec le nombre quantique principal  $n$  et le nombre quantique de moment angulaire  $l$ . Malheureusement, cette façon de procéder limite les balayages en énergie à des pas discrets autour des résonances.

Dans le cas d'une étude idéale de ces collisions résonnantes, il faut faire varier continûment la différence d'énergie, ce qui permettrait d'observer directement les résonances des collisions [GAL 92]. Les atomes de Rydberg ont de larges moments dipolaires et leurs niveaux d'énergie sont facilement déplacés par effet Stark en appliquant des champs électriques relativement faibles. Dans une des premières expériences de collisions résonnantes avec des atomes de Rydberg, on considérait le cas de l'atome de sodium où l'état  $n_s$  se situe dans le diagramme d'énergie à mi chemin des états  $np$  et  $(n+1)p$  [SAF 81]. Gallagher et al. utilisaient un champ électrique pour régler la transition  $n_s + n_s \rightarrow np + (n-1)p$ , pour  $n$  de l'ordre de 20, sur la résonance [SAF 81], [GAL 82]. Les résultats obtenus montraient que la section efficace de collision ( $\approx 10^9 \text{ \AA}^2$ ) est à peu près 1000 fois plus importante que la section géométrique, qui elle est déjà très grande pour des atomes de Rydberg et qui représente la section efficace pour des processus de collisions non-résonnantes. De telles sections efficaces mènent à des temps d'interaction de l'ordre de la nanoseconde, ce qui correspond à des largeurs de résonances de l'ordre du Gigahertz. De telles largeurs correspondent plutôt au domaine de la spectroscopie que des collisions entre atomes. Ces remarquables caractéristiques sont la conséquence directe des moments dipolaires importants ( $\approx n^2$  unités atomiques) des atomes de Rydberg, ce qui permet une interaction résonnante dipôle-dipôle à longue portée très efficace.

L'utilisation de ce type de collisions a également permis des études de collisions sous rayonnement où un ou plusieurs photons microonde peuvent être absorbés au cours de la collision. Ces expériences très similaires, à un facteur d'échelle près, aux expériences des collisions induites par laser (LICET) ont permis des études théoriques précises du comportement de ces collisions en régime de champ électromagnétique fort [KAC 82], [PIL 83], [PIL 87].

Depuis ces premières expériences, de nombreuses études ont été réalisées en utilisant d'autres niveaux d'énergie pour Na, ou d'autres atomes tels que K, et Rb [REN 94a], [REN 94b]. En particulier, pour K, le processus de collision  $29s + 27d \rightarrow 29p + 28p$  a été longuement étudié et ceci entre autres pour des collisions entre atomes dans un jet sélectionné en vitesse par un chopper mécanique [REN 91]. Ces expériences où la vitesse de collision est de l'ordre du m/s livrent des raies de résonance de quelques MégaHertz de largeur. Ces largeurs correspondent à des temps de collision de l'ordre de la microseconde, ce qui implique que les collisions commencent à être limitées par transformée de Fourier, comme le temps d'interaction devient plus court que le temps de collision. D'autre part le même processus de collision résonnante a permis de déterminer le défaut quantique  $\delta_p$  de K avec une précision 25 fois meilleure que les études spectroscopiques précédentes [STO 87].

Nous avons repris des expériences de collisions résonnantes en considérant l'atome de césium. Le but de notre étude est d'obtenir l'évolution des collisions résonnantes en fonction de la vitesse de collision. Globalement ce chapitre sera divisé en deux grandes parties distinctes. Dans la première partie, je commencerai par décrire les expériences réalisées sur un jet atomique thermique, et la possibilité de réaliser de telles expériences sur un jet ralenti. Une analyse théorique du processus permet d'évaluer l'évolution du comportement en fonction de la vitesse de collision. Dans la deuxième partie de ce chapitre je décrirai des expériences similaires réalisées dans un piège magnéto-optique à trois dimensions. Dans ce cas, la vitesse des atomes est si faible que ceux-ci sont presque immobiles. Pour pouvoir faire le lien et pour marquer les différences entre les collisions thermiques et les collisions froides, je détaillerai dans ces deux parties la théorie décrivant les phénomènes. On verra que dans la première partie, les processus qui sont rencontrés dans nos expériences sont décrits par une vision classique en tant que collisions entre deux atomes de Rydberg isolés. Dans le cas d'atomes de Rydberg ultra-froids, cas que l'on rencontre dans le piège magnéto-optique à trois dimensions, on assistera à des phénomènes relativement nouveaux. On verra des collisions où les atomes sont quasiment immobiles pendant toute la durée de l'interaction. On ne peut plus traiter le problème en tant que collision entre deux atomes isolés. Il faut en effet tenir compte de l'ensemble des atomes qui sont tous en interaction deux à deux entre eux. On est donc dans une situation où un comportement global ou collectif peut apparaître. On se trouve en présence d'atomes de Rydberg immobiles interagissant les uns avec les autres. On appellera un tel système un gaz de Rydberg gelé. On sera tenté de faire le rapprochement avec des propriétés de la physique du solide et de comparer notre système avec un "cristal désordonné".

## **A - Collisions résonnantes entre atomes de Rydberg dans jet atomique**

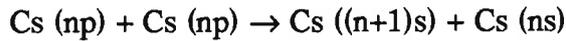
Dans la première partie de ce chapitre, je vais décrire les expériences qu'on a réalisées sur un jet atomique de césium dans le but d'étudier les collisions résonnantes entre atomes de Rydberg. Je commencerai par une partie théorique relativement détaillée du sujet, pour ensuite passer aux expériences réalisées sur un jet atomique thermique et aux résultats de ces expériences. Je conclurai sur les possibilités d'étendre ces études à des collisions entre atomes d'un jet ralenti dense. Pour fixer les idées et faciliter la compréhension de la partie théorique, je donne dans la suite un bref aperçu sur le principe élémentaire des collisions résonnantes entre atomes de Rydberg telles qu'elles sont rencontrées lors de nos expériences.

### **III - 2 - Principe élémentaire des collisions résonnantes entre atomes de Rydberg**

Considérons une collision résonnante entre deux atomes de Rydberg. Comme toute collision, ce processus peut être décrit par une vitesse de collision et un paramètre d'impact, qui caractérisent les trajectoires atomiques, et une section efficace. Au cours d'une collision résonnante, un des deux atomes perd de l'énergie interne, tandis que son partenaire de collision en gagne. Ces transferts d'énergie, comme la collision est résonnante, se produisent, en ayant une importante section efficace, si le gain en énergie interne du premier atome est exactement égal à la perte en énergie interne de l'autre atome, c'est à dire si la condition de résonance est satisfaite. Une telle collision constitue un cas particulier des collisions avec transfert d'énergie ("energy pooling collisions").

Examinons maintenant le cas concret d'une telle collision résonnante entre deux atomes de Rydberg, tel qu'on le rencontre dans nos expériences. Avec un laser on excite un certain état de Rydberg, l'état  $np$ . Cet état se trouve, en champ nul, dans le schéma des niveaux d'énergie à peu près à mi-chemin entre deux autres états de Rydberg vers lesquels il peut faire

des transitions dipolaires, les états  $ns$  et  $(n+1)s$ . Ceci est montré sur le schéma III-1 indiquant l'allure de ces niveaux d'énergie en fonction d'un champ électrique externe Stark. La collision résonnante qu'on va étudier suit donc le schéma:



En champ Stark nul, la condition de résonance pour cette collision n'est cependant pas satisfaite, on n'assistera donc à aucun transfert d'énergie interne entre nos deux atomes de Rydberg. Comme on l'a vu au chapitre précédent, les atomes de Rydberg possèdent de très larges moments dipolaires. Ainsi, leurs états d'énergie sont facilement déplacés par effet Stark en appliquant des champs électriques statiques relativement faibles. Dans le cas de l'atome de césium, en appliquant un champ électrique Stark, on déplace les niveaux d'énergie  $np$ , tandis que les états  $ns$  ne sont pratiquement pas déplacés (voir figure III-1). En faisant varier la valeur du champ électrique Stark, on arrive donc à déplacer le niveau  $np$  de telle manière à satisfaire la condition de résonance, c'est à dire de telle manière à ce qu'il se trouve exactement à mi-distance entre les niveaux  $ns$  et  $(n+1)s$ , pour une certaine valeur  $F_R$  du champ Stark (voir figure III-1).

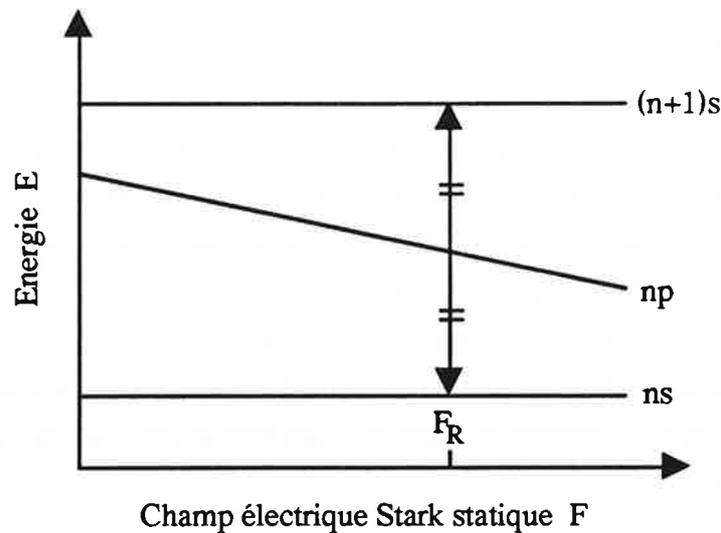


Figure III-1: Diagramme Stark des niveaux d'énergie du césium impliqués dans la collision résonnante  $np + np \rightarrow (n+1)s + ns$ .  $F_R$  représente la valeur de champ Stark où la condition de résonance est satisfaite, c'est à dire où le niveau  $np$  est exactement à mi-distance entre les niveaux  $(n+1)s$  et  $ns$ .

En mettant la valeur  $F_R$  pour le champ Stark, la section efficace du processus de collision résonnante prend une valeur très importante qui dépasse de quelques ordres de grandeurs la taille géométrique d'un atome de Rydberg. A ce moment on assiste à une transition dipolaire entre les niveaux  $n_p$  et  $n_s$  pour un atome et entre  $n_p$  et  $(n+1)s$  pour l'autre atome (voir figure III-1).

En observant le taux de transfert en fonction de la valeur du champ Stark appliqué, on peut faire des études de la forme des raies de résonance pour ce processus de collision. On remarque que ces raies présentent des largeurs très fines d'au maximum quelques centaines de mégahertz. On est donc bien en présence d'un processus de collision présentant une résonance très marquée. Dans la suite, je présenterai des études théoriques relativement générales permettant de décrire le cas particulier des collisions résonnantes entre atomes de Rydberg.

### III - 3 - Théorie des collisions résonnantes

Toutes les considérations théoriques au sujet des collisions résonnantes sont basées sur le fait que celles-ci induisent des transitions dipolaires dans les atomes de Rydberg qui se croisent. Dans la suite de ce paragraphe je décrirai deux théories relativement simples pour décrire les processus des collisions résonnantes, qui sont toutes les deux basées sur la description des atomes de Rydberg en tant que dipôles électriques induisant des transitions dipolaires pendant la collision. La première description théorique présentée permet d'avoir un point de vue relativement simple et d'obtenir des ordres de grandeurs pour les facteurs les plus importants des collisions résonnantes. Une deuxième approche théorique exposée va un peu plus loin que la première et permet la description des formes des raies des résonances attendues dans ces collisions.

#### III - 3 - 1 - Calcul simple de collisions dipôle-dipôle

Ce premier calcul est présenté pour donner une rapide évaluation de l'ordre de grandeur pour les sections efficaces et les largeurs des résonances dans une collision résonnante et est basé sur un travail de Purcell [PUR 52] pour des transitions  $2s - 2p$  de l'hydrogène induites par des électrons. Le calcul qui suit est réalisé en unités atomiques.

Considérons deux atomes de Rydberg initialement dans l'état 0. Durant le processus de collision, ils vont subir des transitions vers les états 1 et 2, et ceci en tant que transitions dipolaires avec les éléments de matrice dipolaire  $\mu_1$  et  $\mu_2$ , comme ceci est montré sur la figure III-2. Supposons également que les atomes suivent des trajectoires rectilignes sans être déviés, en passant l'un à côté de l'autre à une vitesse relative  $v$  et un paramètre d'impact  $b$ , comme cela est décrit par la figure III-3.

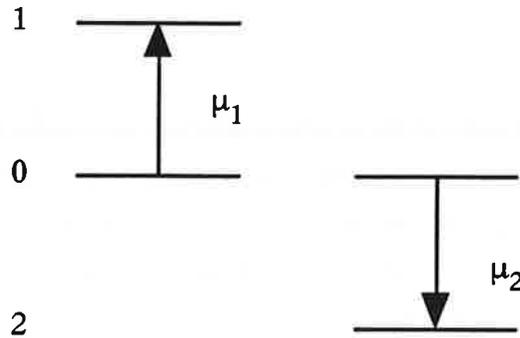


Figure III-2: Transitions et états en jeux dans la collision résonnante.

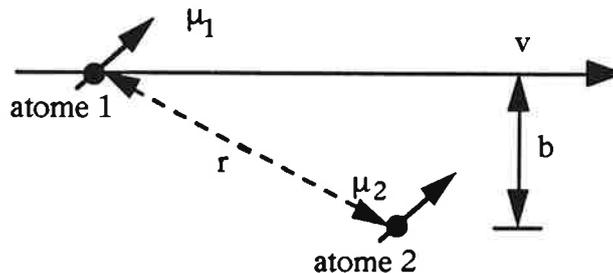


Figure III-3: Géométrie de la collision résonnante.

Essayons maintenant de calculer la probabilité pour les atomes de faire les transitions de l'état 0 vers les états 1 et 2 pendant une collision pour laquelle la condition de résonance est satisfaite, c'est à dire à l'instant où l'état 0 se trouve exactement au milieu entre les états 1 et 2. Une première approche est de considérer un des deux atomes (disons l'atome 2) comme étant un dipôle classique de grandeur  $\mu_2$ , oscillant avec une fréquence  $\omega$ . Ceci va donc nous fournir un champ oscillant qui induit la transition pour l'autre atome, l'atome 1 [GAL 82]. En effet, classiquement parlé un élément d'une matrice dipolaire se transforme en un dipôle d'amplitude égale à l'élément de matrice et oscillant à la fréquence de la transition. Ainsi on peut s'imaginer l'atome 2 comme une collection de dipôles qui correspondent tous aux transitions dipolaires permises à partir du niveau 0. La plupart de ces transitions sont hors résonance (en les comparant avec  $0 \rightarrow 2$ ) et on peut donc les négliger. La transition de 0 vers 1 de l'atome 2

peut également être ignorée, en considérant la conservation d'énergie. Donc la seule transition qui importe pour l'atome 2 est celle de 0 vers 2. Dans ce cas, le champ produit par l'atome 2 à l'endroit de l'atome 1 est donné par  $E_2 \approx \mu_2/r^3$ , où  $\mu_2$  est l'élément de matrice dipolaire pour la transition  $0 \rightarrow 2$  et  $r$  la séparation internucléaire des deux atomes. Ce champ est en résonance avec la transition  $0 \rightarrow 1$  de l'atome 1 et peut donc induire cette transition si l'interaction est assez forte. En général, d'après des considérations de calcul perturbatif, l'atome 1 va subir la transition  $0 \rightarrow 1$  si :

$$E_2 \cdot \mu_1 \cdot \tau \approx 1 \quad (\text{III - 1})$$

où  $\tau$  est le temps d'interaction. D'après cette équation, la condition pour induire une transition est que l'interaction intégrée sur le temps d'interaction soit égale à l'unité. Comme on peut le voir à l'aide de la figure III-4, le champ  $E_2$  prend des valeurs proches de sa valeur maximale  $E_2 = \mu_2/b^3$  que si on se trouve à l'intérieur d'un temps d'interaction de l'ordre de  $\tau = b/v$ . Plus précisément on voit qu'on peut remplacer ce champ, en utilisant la relation pour la trajectoire atomique  $r=(b^2+v^2t^2)^{1/2}$ , par la fonction créneau suivante:

$$\begin{cases} E_2 = \frac{\mu_2}{b^3} & r \leq \sqrt{2} b \\ E_2 = 0 & r > \sqrt{2} b \end{cases} \quad (\text{III - 2})$$

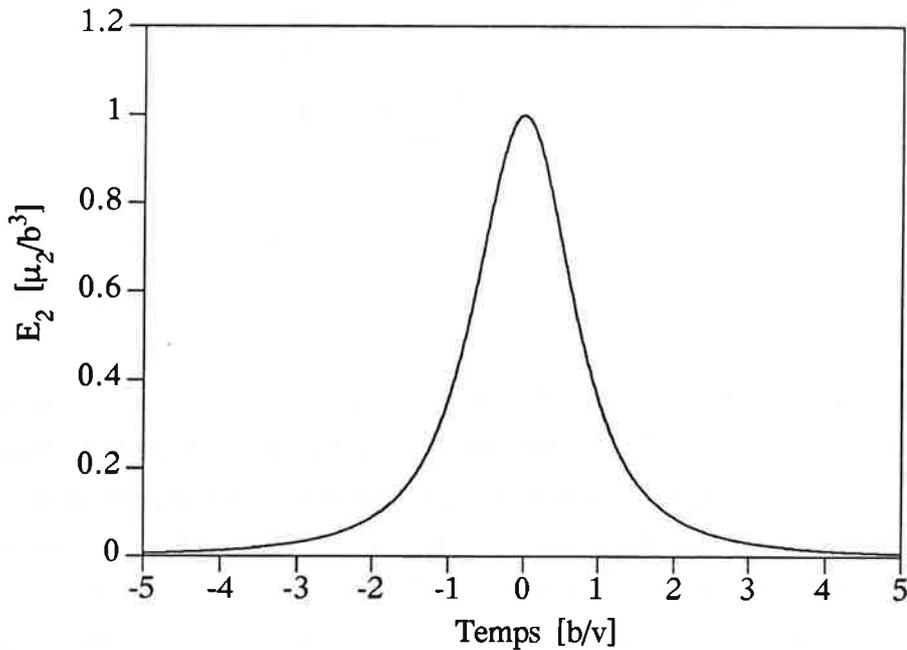


Figure III-4: Champ  $E_2$  produit par l'atome 2 à l'endroit où se trouve l'atome 1 en fonction du temps, qui équivaut à la distance internucléaire  $r=(b^2+v^2t^2)^{1/2}$ , pendant le processus de collision. Au temps  $t=0$  les atomes se trouvent séparés du paramètre d'impact  $b$ .

En remplaçant dans l'équation (III - 1) on trouve ainsi:

$$\frac{\mu_1 \mu_2}{b^2 v} = 1 \quad (\text{III - 3})$$

En résolvant l'équation (III - 3) pour  $b^2$ , on trouve pour la section efficace des collisions résonnantes  $\sigma_R$  (en omettant des facteurs de  $\pi$ ):

$$\sigma_R \approx b^2 = \frac{\mu_1 \mu_2}{v} \quad (\text{III - 4})$$

Ainsi, on peut aisément calculer le temps de collision:

$$\tau = \frac{b}{v} = \frac{\sqrt{\mu_1 \mu_2}}{v^{3/2}} \quad (\text{III - 5})$$

et on obtient pour la largeur de la résonance:

$$\Gamma = \frac{1}{\tau} = \frac{v^{3/2}}{\sqrt{\mu_1 \mu_2}} \quad (\text{III - 6})$$

Comme pour des transitions dipolaires entre niveaux excités d'un atome de Rydberg, les éléments de matrice dipolaire  $\mu_1$  et  $\mu_2$  sont de l'ordre de  $n^2$ , on trouve que:

$$\sigma_R = \frac{n^4}{v} \quad (\text{III - 7})$$

et  $\tau = \frac{n^2}{v^{3/2}}$

La section efficace est donc donnée par la section efficace géométrique divisée par la vitesse de collision. Pour une collision thermique, on a  $v \approx 10^{-4}$  (en unités atomiques), ce qui correspond à  $v \approx 220$  m/s, ce qui nous donne  $\sigma_R \approx 10^4 n^4$ , donc dix mille fois plus grande que la taille d'un atome de Rydberg. Pour des niveaux de  $n = 20$ , on trouve donc une section efficace de l'ordre de  $10^9 a_0^2$  ou bien de  $2 \cdot 10^8 \text{ \AA}^2$ , section efficace qui est très importante pour

le domaine de la physique atomique. Un autre aspect intéressant est donné par l'ordre de grandeur des temps de collision pour les collisions résonnantes. Pour  $n = 20$  et  $v = 10^{-4}$  on trouve  $t = 4 \cdot 10^8$  ou à peu près  $10^{-8}$  s. Ce temps de collision de l'ordre de la nanoseconde est beaucoup plus long que les temps typiques de collisions atomiques qui sont de l'ordre de la picoseconde. On peut, bien entendu, essayer d'étendre cette discussion, faite pour des collisions dipôle-dipôle, à des processus mettant en jeu des multipôles plus élevés. Si nos atomes 1 et 2 ont maintenant des moments  $2k$  polaires, valant  $n^{2k}$  et  $n^{2k'}$  respectivement, l'interaction  $V$  due à ceux-ci pour une distance  $r$  entre les deux atomes, s'élève à:

$$V = \frac{n^{2k} n^{2k'}}{r^{1+k+k'}} \quad (\text{III - 8})$$

En faisant les mêmes approximations pour les trajectoires,  $v$ ,  $b$  et l'interaction  $V$  que pour le cas des collisions dipôle-dipôle, on trouve pour la section efficace de collision:

$$\sigma \approx b^2 = \frac{n^4}{v^{2/(k+k')}} \quad (\text{III - 9})$$

Pour une collision dipôle-dipôle,  $k = k' = 1$  et on retrouve l'équation (III - 7). Si les facteurs  $k$  et  $k'$  augmentent, le facteur  $v^{2/(k+k')}$  va augmenter lui aussi pour tendre vers l'unité et la section efficace décroît jusqu'à être égale à la taille géométrique de l'atome.

#### Remarque

Il faut néanmoins noter que l'hypothèse selon laquelle les atomes suivent des trajectoires rectilignes n'est pas strictement valable pour des collisions multipolaires mélangées, comme pour toute collision où le moment angulaire interne des atomes n'est pas conservé. Cependant, la quantité de moment angulaire du mouvement translationnel est normalement tellement importante que de petits changements de celle-ci n'affectent pas significativement les trajectoires des atomes en collision. Ceci ne restera en effet plus valable pour le cas de collisions entre atomes froids, où les vitesses de collisions sont extrêmement faibles.

### III - 3 - 2 - Calcul basé sur une théorie à deux états

En effet, l'équation (III - 4) pour la section efficace de collision, basée sur une théorie relativement simplifiée, donne une très bonne première approximation pour la valeur de la section efficace. Mais cette théorie fort simple n'est pas capable de donner une expression quelconque pour la forme de la résonance, qu'on peut observer dans les expériences de collisions résonnantes. Pour décrire le processus de collision en plus de détail, on va donc présenter un traitement un peu plus élaboré de celui-ci.

Considérons deux atomes de césium dans des états de Rydberg  $n|ml\rangle$  et  $n'|m'l'\rangle$  (où  $l, l' = 1/2, 3/2$ ) qui sont en collision selon l'équation de transfert collisionnel d'énergie résonnant suivant:



Ce traitement spécifique au problème des collisions dipôle-dipôle dans un champ électrique est basé sur les travaux de Gallagher et al. [GAL 82], Fiordilino et al. [FIO 87] et Thomson et al. [THO 89] qui ont développé cette théorie.

Considérons une collision atomique vue dans le référentiel de repos d'un des deux atomes (voir figure III-3). Un des deux atomes est donc supposé au repos à l'origine, tandis que l'autre se trouve à une distance  $\vec{r}$  et se déplace à la vitesse  $\vec{v}$  (vitesse relative des deux atomes) dans ce référentiel. Comme le paramètre d'impact concerné est important, on peut considérer que les atomes ne sont pas déviés de leurs trajectoires rectilignes par la collision. Dans ce cas, la distance interatomique  $\vec{r}$  peut s'écrire  $\vec{r} = \vec{b} + \vec{v}t$  où  $\vec{b}$  est le paramètre d'impact. On veut maintenant calculer la probabilité de transition  $P(b)$  de l'état initial à l'état final durant une collision caractérisée par un paramètre d'impact  $b$ . En intégrant cette probabilité sur  $b$ , on trouve finalement la section efficace.

A cause des temps d'interaction relativement longs observés pour ces collisions, on considère que le potentiel d'interaction peut être décrit adéquatement par le terme d'interaction dipôle-dipôle:

$$V = \frac{\vec{\mu}_1 \cdot \vec{\mu}_2}{r^3} - \frac{3(\vec{\mu}_1 \cdot \vec{r})(\vec{\mu}_2 \cdot \vec{r})}{r^5} \quad (\text{III} - 11)$$

où  $\vec{\mu}_1, \vec{\mu}_2$  sont les moments dipolaires électriques des atomes.

L'équation de Schrödinger associée à ce problème, a donc pour Hamiltonien:

$$H(t) = H_0 + V(\vec{r}, \vec{\mu}_1, \vec{\mu}_2, t) \quad (\text{III} - 12)$$

où  $H_0 = H_{01} + H_{02}$ , qui sont les Hamiltoniens des deux atomes individuels non interagissants dans le champ électrique statique, ayant comme états propres les états  $\Psi_{nlm}(1)$  et  $\Psi_{nlm}(2)$  correspondants aux énergies propres  $W_{nlm}(1)$  et  $W_{nlm}(2)$ .

On peut construire à partir de ceci les états de produits moléculaires qui ont comme fonctions d'onde spatiales:

$$\Psi_i = \Psi_{npm}(1) \otimes \Psi_{npm}(2) \quad (\text{III} - 13)$$

et 
$$\Psi_f = \Psi_{ns}(1) \otimes \Psi_{(n+1)s}(2)$$

où  $\Psi_{nlm}(1)$  et  $\Psi_{nlm}(2)$  sont les fonctions d'onde atomiques des atomes 1 et 2 dans l'état nlm. Ces états produits sont des solutions indépendantes du temps de  $H_0$  ayant comme énergies propres  $W_i = W_{npm} + W_{npm}$  et  $W_f = W_{ns} + W_{(n+1)s}$ .

L'interaction dipôle-dipôle  $V$  dans l'Hamiltonien total a la forme d'une matrice 2x2 ayant des termes diagonaux qui vont légèrement décaler les énergies, et des termes non diagonaux, qui eux vont induire les transitions dans les collisions. Comme  $V$  dépend de  $\vec{r}$ ,  $V$  est dépendant du temps et la fonction d'onde à l'instant  $t$  est donnée par la solution de l'équation de Schrödinger dépendante du temps:

$$H \Psi = i \frac{\partial \Psi}{\partial t} \quad (\text{III} - 14)$$

A tout instant, la solution est une superposition des deux états  $\Psi_i$  et  $\Psi_f$  et prend donc la forme:

$$\Psi(t) = C_i(t) \Psi_i + C_f(t) \Psi_f \quad (\text{III} - 15)$$

où toute la dépendance en temps réside dans les coefficients  $C_i(t)$  et  $C_f(t)$ . En insérant cette fonction d'onde dans l'équation de Schrödinger dépendante du temps, on trouve un système de deux équations différentielles couplées pour les coefficients  $C_i(t)$  et  $C_f(t)$ :

$$\begin{cases} i \dot{C}_i = W_i C_i(t) + V_{ii} C_i(t) + V_{if} C_f(t) \\ i \dot{C}_f = W_f C_f(t) + V_{ff} C_f(t) + V_{fi} C_i(t) \end{cases} \quad (\text{III} - 16)$$

où  $V_{if} = \langle \Psi_i | V | \Psi_f \rangle = \int \Psi_i^* V \Psi_f d\tau_1 d\tau_2$  est l'élément de matrice de l'interaction  $V$  entre les deux fonctions d'onde spatiales.

Dans les équations (III - 16), les éléments de matrice de  $V$  dépendent du temps, puisque la distance internucléaire est une fonction du temps, tout comme le sont les coefficients  $C_i(t)$  et  $C_f(t)$ . En général, les équations (III - 16) ne peuvent pas être résolues analytiquement, sauf pour quelques cas spéciaux comme on va le voir dans la suite à l'aide de deux exemples.

### 2 - a - Approximation par un puits de potentiel rectangulaire

On suppose les éléments de matrice  $V_{ii}$  et  $V_{ff} = 0$  [GAL 82], et vu que l'interaction  $V$  est à peu près nulle sauf pour  $r = b$  où elle présente un maximum, on fait l'approximation:

$$\begin{cases} V_{if} = V_{fi}^* = \frac{\mu_1 \mu_2}{b^3} & \text{pour } r < \sqrt{2} b \\ V_{if} = V_{fi} = 0 & r > \sqrt{2} b \end{cases} \quad (\text{III} - 17)$$

Ces approximations sont équivalentes au traitement usuel pour la résonance magnétique dans un jet moléculaire par Ramsey [RAM 56].

On doit donc résoudre le système:

$$\begin{cases} i \dot{C}_i = W_i C_i(t) + V_{if} C_f(t) \\ i \dot{C}_f = V_{fi} C_i(t) + W_f C_f(t) \end{cases} \quad (\text{III} - 18)$$

avec les conditions initiales:  $C_i(0) = 1$  et  $C_f(0) = 0$ .

En remplaçant l'équation (III - 18b) dans l'équation (III - 18a), on trouve, comme on peut négliger tout les termes en  $\dot{V}$ , l'équation différentielle découplée du second ordre pour  $C_f$ :

$$\ddot{C}_f + i(W_i + W_f)\dot{C}_f - (W_i W_f - |V_{if}|^2)C_f = 0 \quad (\text{III - 19})$$

Une solution qui satisfait la condition initiale  $C_f(0) = 0$  est donnée par:

$$C_f(t) = a \sin(bt) \exp(ct) \quad (\text{III - 20})$$

En remplaçant celle-ci dans l'équation différentielle découplée (III - 19), on trouve une solution pour  $C_f(t)$  qui, remplacée dans l'équation (III - 18), nous donne comme solutions finales pour  $C_f$  et  $C_i$ :

$$C_i(t) = \left[ \cos \frac{1}{2}\Omega t + i \frac{(W_i - W_f)}{\Omega} \sin \frac{1}{2}\Omega t \right] \exp\left(-\frac{i}{2}(W_i + W_f)t\right) \quad (\text{III - 21})$$

$$C_f(t) = i \frac{2|V_{if}|}{\Omega} \sin \frac{1}{2}\Omega t \exp\left(-\frac{i}{2}(W_i + W_f)t\right)$$

avec:  $\Omega = \sqrt{(W_i - W_f)^2 + 4|V_{if}|^2}$

$$V_{if} = \frac{\mu_1 \mu_2}{b^3}$$

La probabilité  $P$  pour que les deux atomes aient faits des transitions vers les états  $s$  est donnée par  $P(b) = |C_f(\frac{b}{v})|^2$ .

$$\Rightarrow P(b) = \frac{4|V_{if}|^2}{\Omega^2} \sin^2\left(\frac{1}{2}\Omega \frac{b}{v}\right) \quad (\text{III - 22})$$

$$= \frac{4\left(\frac{\mu_1 \mu_2}{b^3}\right)^2}{(W_i - W_f)^2 + 4\left(\frac{\mu_1 \mu_2}{b^3}\right)^2} \sin^2\left(\frac{1}{2}\sqrt{(W_i - W_f)^2 + 4\left(\frac{\mu_1 \mu_2}{b^3}\right)^2} \frac{b}{v}\right)$$

Cette équation décrit des résonances de forme Lorentzienne aux largeurs  $\approx \left( \frac{v^3}{\mu_1 \mu_2} \right)^{\frac{1}{2}}$

en concordance avec l'équation (III - 6). Tandis que les largeurs sont correctement décrites, la forme des résonances, qui dépend de la forme de l'interaction durant la collision, n'est que très approximative.

A résonance exacte, c'est à dire pour  $W_i = W_f$ , on trouve pour la probabilité de transition:

$$P(b) = \sin^2 \left( \frac{\mu_1 \mu_2}{b^2 v} \right)$$

et on peut calculer la section efficace de collision résonnante à l'aide de la formule:

$$\sigma = \int_0^{\infty} 2\pi b P(b) db \quad (\text{III - 23})$$

On trouve ainsi:  $\sigma = \frac{\pi^2}{2} \frac{\mu_1 \mu_2}{v}$ .

En utilisant la valeur  $b_0^2 = \frac{2}{\pi} \frac{\mu_1 \mu_2}{v}$  pour laquelle  $P(b_0) = 1$ , on a:

$$\sigma = \frac{\pi^3}{4} b_0^2 = 7,75 b_0^2 \quad (\text{III - 24})$$

Cette valeur pour la section efficace vient s'intercaler entre les résultats de différents calculs ayant déjà été faits auparavant par d'autres personnes:

[AND 49]:  $\sigma = \pi^2 \frac{8}{9} b_0^2 = 8,77 b_0^2$

[GAL 82]:  $\sigma = 2,3 \pi b_0^2 = 7,23 b_0^2$

**2 - b - Approximation de la résonance exacte**

Un autre cas qui peut être traité analytiquement est le cas où on se trouve exactement à résonance, c'est à dire  $W_i = W_f$ , si en plus de cela, on admet que  $V_{ii} = V_{ff} = 0$  et que  $V_{if} = V_{fi}$ , c'est à dire que l'élément de matrice responsable pour le couplage est réel, et que les moments dipolaires permanents sont considérés négligeables. Ceci n'est effectivement le cas qu'en champ électrique faible, tant que les états propres sont des états purs de moment angulaire  $l$ . Dans ce cas, on peut facilement découpler les équations différentielles (III - 16), ce qui nous donne deux équations différentielles du deuxième degré identiques et découplées. L'équation pour  $C_i(t)$  est donnée par:

$$\ddot{C}_i(t) = \frac{\dot{V}_{if}}{V_{if}} \dot{C}_i(t) - V_{if}^2 C_i(t) \quad (\text{III - 25})$$

L'équation pour  $C_f(t)$  est exactement identique à cette équation différentielle. En posant les conditions initiales:  $C_i(t = -\infty) = 1$  et  $C_f(t = -\infty) = 0$ , on trouve comme solutions à l'équation (III - 25):

$$C_i(t) = \cos \left[ \int_{-\infty}^t V_{if}(t') dt' \right] \quad (\text{III - 26})$$

et

$$C_f(t) = \sin \left[ \int_{-\infty}^t V_{if}(t') dt' \right]$$

La probabilité de faire une transition durant une collision résonnante sera donc donnée par:

$$P(\infty) = |C_f(\infty)|^2 = \sin^2 \left[ \int_{-\infty}^{+\infty} V_{if}(t') dt' \right] \quad (\text{III - 27})$$

où  $V_{if}$  est donné par l'équation (III - 11). Pour calculer la probabilité de transition, il faut donc tout d'abord connaître exactement la forme de l'interaction  $V$ . Pour obtenir une expression explicite pour  $V_{if}$  à partir de l'équation (III - 11), il est nécessaire de définir la

géométrie de la collision. Pour le cas d'une collision en champ nul, le choix logique de l'axe de quantification serait naturellement donné par la vitesse relative des deux atomes. Comme dans notre cas la collision se déroule en présence d'un champ électrique statique, le choix qui s'impose pour l'axe de quantification est donné par la direction de ce champ  $\vec{F}$ , puisque les états propres de  $H_0$  sont le plus facilement décrits ainsi. On va donc définir l'axe  $z$  selon cette direction, tel que  $\vec{F} // z$ . Dans ce repère, le paramètre d'impact  $\vec{b}$  va faire un angle  $\vartheta$  avec l'axe  $z$ , comme on peut le voir sur la figure III-5. On suppose, sans pour cela restreindre la généralité, que le vecteur  $\vec{b}$  se trouve dans le plan  $x-z$ . La vitesse relative des deux atomes, c'est à dire la vitesse de collision  $\vec{v}$ , qui est représentée par un vecteur constant dans le temps, puisqu'on a fait la supposition que les atomes ne sont pas déviés par la collision, est orthogonale au paramètre d'impact  $\vec{b}$  et fait un angle  $\phi$  avec l'axe  $x'$ , qui se trouve dans le plan  $x-z$  et est perpendiculaire à  $\vec{b}$ , comme cela est visible sur la figure III-5. Supposons que les atomes sont les plus proches les uns des autres, c'est à dire à  $\vec{b}$ , au moment  $t = 0$  et on pourra donc écrire pour la séparation internucléaire entre ces deux atomes:  $\vec{r} = \vec{b} + \vec{v} t$ . Si l'atome 1 se trouve toujours à l'origine du repère  $xyz$  (repère où l'atome 1 est au repos), les coordonnées de l'atome 2 se trouvant à  $\vec{r}$  de celui-ci sont données par:

$$\begin{cases} y = -v t \sin \phi \\ x = b \sin \vartheta - v t \cos \phi \cos \vartheta \\ z = b \cos \vartheta + v t \cos \phi \sin \vartheta . \end{cases} \quad (\text{III} - 28)$$

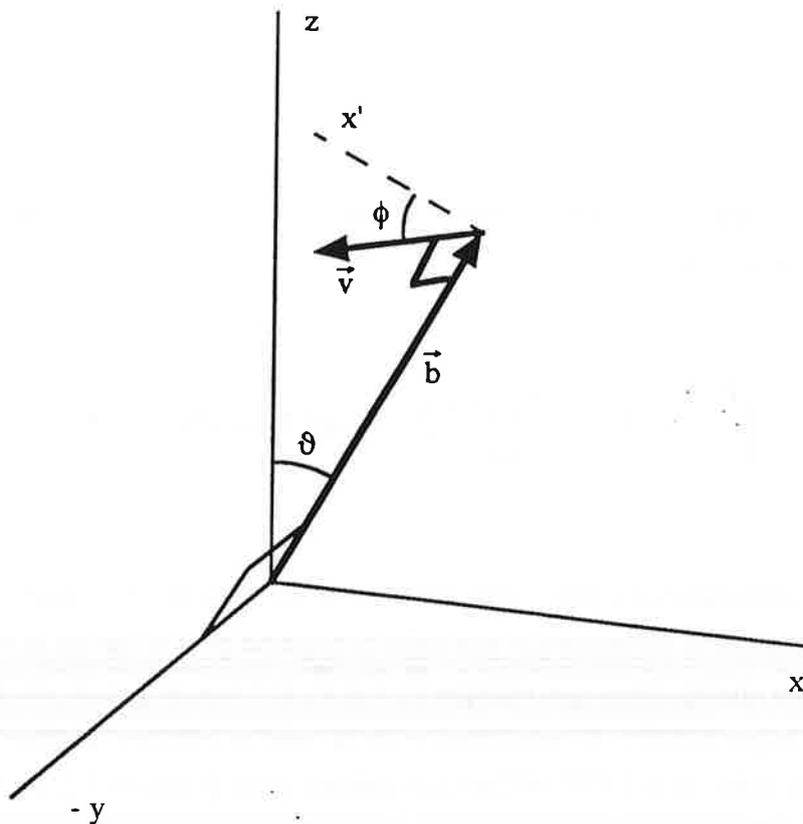


Figure III-5: Géométrie d'une collision résonnante.

En utilisant ces coordonnées, on peut évaluer les éléments de matrice de  $V$  en substituant pour les moments dipolaires dans l'équation (III - 11), les éléments de matrice dipolaire entre les états initiaux et les états finaux de la collision. En réalisant ceci, on obtient directement les éléments de matrice  $V_{if}(t)$  qui dépendent explicitement du temps. Ce calcul a été réalisé pour le cas spécifique d'une transition avec  $\Delta m = 0$  durant la collision par Fiordolino et al. [FIO 87] pour décrire les expériences de Gallagher et al. [THO 89]. Comme ce cas, plus simple n'est pas le cas rencontré dans toutes nos expériences, je vais rapidement décrire les résultats pour les deux cas concernant nos expériences.

*a) cas pour des transitions avec  $\Delta m = 0$*

Ce cas est relativement simple à résoudre analytiquement et illustre bien les résultats qu'on trouve généralement. Si on assiste qu'à des transitions où la règle de transition  $\Delta m = 0$  est respectée, les résonances ne concernent que les éléments de matrice de  $\mu_z$  [BET 57] qui sont réels. Ainsi donc l'élément de matrice  $V_{if}(t)$  est donné par:

$$V_{if}(t) = \mu_{z_1} \mu_{z_2} \left\{ \frac{1}{r^3} - \frac{3}{r^5} (b \cos \vartheta + v t \cos \phi \sin \vartheta)^2 \right\} \quad (\text{III - 29})$$

où  $r = (b^2 + v^2 t^2)^{1/2}$ .

En intégrant analytiquement cette expression pour  $V_{if}(t)$  on trouve la probabilité à résonance exacte. Ainsi, on obtient:

$$\int_{-\infty}^{+\infty} V_{if}(t') dt' = \frac{2 \mu_1 \mu_2}{v b^2} (1 - 2 \cos^2 \vartheta - \cos^2 \phi \sin^2 \vartheta) \quad (\text{III - 30})$$

En examinant de près cette intégrale et en utilisant l'équation (III - 27) pour la probabilité de transition, on remarque que celle-ci disparaît pour le cas où la vitesse de collision  $\vec{v}$  est parallèle au champ électrique statique  $\vec{F}$ ,  $\vec{v} // \vec{F}$ ,  $\vartheta = \pi/2$  et  $\phi = 0$ . En effet, cet effet de disparition de la probabilité de transition et de la section efficace à résonance exacte a été observé par Gallagher et al. [THO 89] pour le sodium. Pour le cas de  $\vec{v} \perp \vec{F}$ ,  $\vartheta = 0$  et  $\phi = \pi/2$ , l'intégrale (III - 30) ne disparaît pas et la probabilité de transition passe par un maximum qui se trouve à résonance. Ces deux résultats sont en effet tout à fait prévisibles si l'on examine

l'allure de l'élément de matrice d'interaction qui est donnée par la figure III-6 pour ces deux cas.

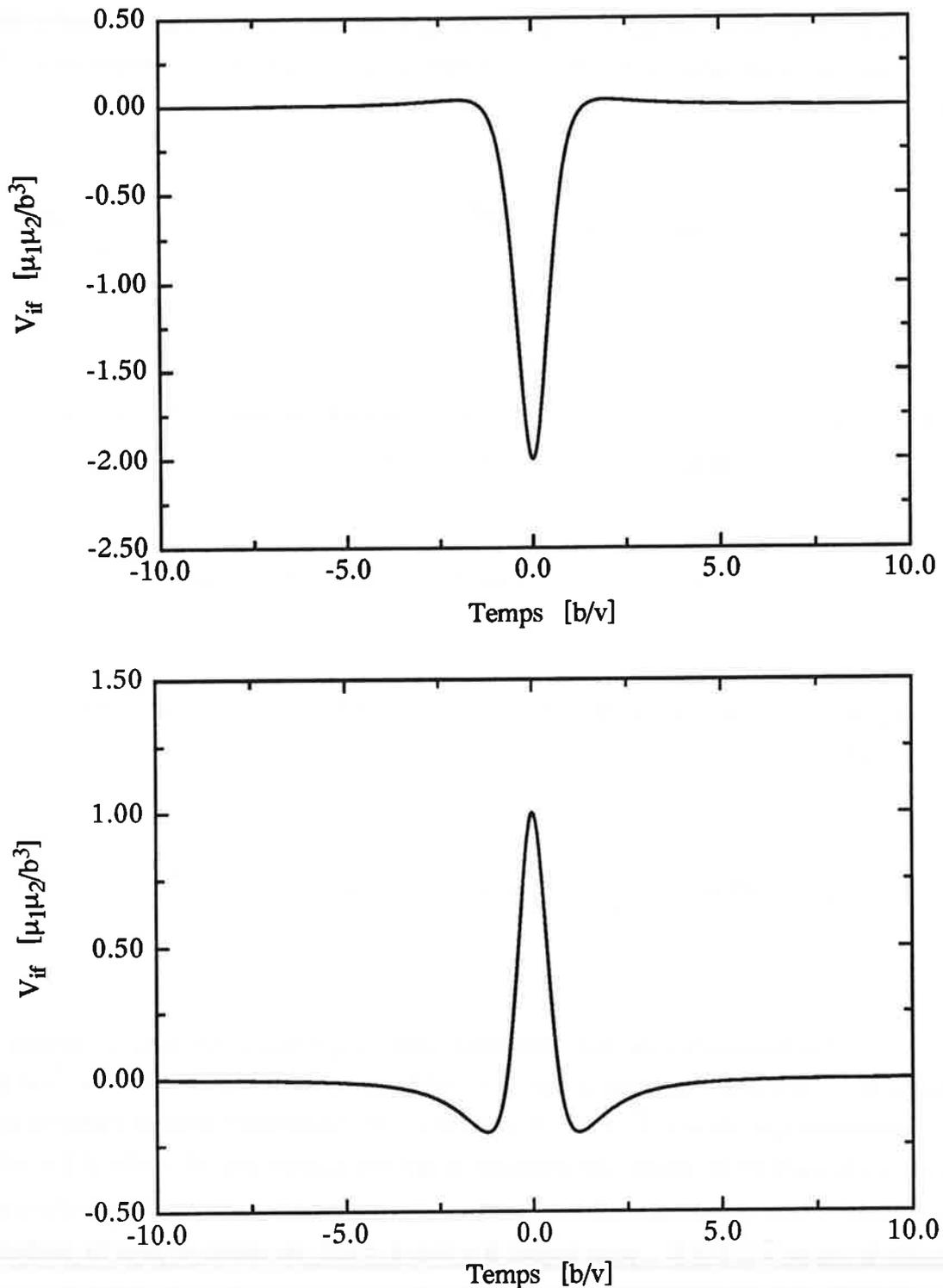


Figure III-6: Élément de matrice d'interaction dipôle-dipôle en fonction du temps d'interaction (ce qui est équivalent à la distance internucléaire) pour les cas: (a)  $\vec{v} \parallel \vec{E}$ ,  $\vartheta = \pi/2$  et  $\phi = 0$ , (b)  $\vec{v} \perp \vec{E}$ ,  $\vartheta = 0$  et  $\phi = \pi/2$ .

$\beta$ ) cas de transition où  $\Delta m = 1$

Un autre cas qu'on observe dans nos expériences est contrairement au précédent un peu plus difficile à résoudre par un calcul analytique. En effet, les éléments de matrice dipolaire en jeu pour une transition  $\Delta m = 1$  sont les éléments  $\mu_x$  et  $\mu_y$  qui eux ne sont pas réels. On a en effet:

$$(\mu_x - i \mu_y)_{nlm}^{n'-1m-1} \sim R_{nl}^{n'-1} \quad (\text{III - 31})$$

et  $(\mu_x + i \mu_y)_{nlm}^{n'-1m-1} = 0$

En mettant pour  $\mu_x = -i \mu_y = \mu$ , on trouve en substituant les équations (III - 31) dans l'équation (III - 11) pour l'élément de matrice  $V_{if}$  l'expression suivante:

$$V_{if} = -\frac{3 \mu_1 \mu_2}{r^5} [b \sin \vartheta - v t (\cos \phi \cos \vartheta + i \sin \phi)]^2 \quad (\text{III - 32})$$

En intégrant analytiquement cette expression pour l'élément de matrice d'interaction dipôle-dipôle, on trouve:

$$\int_{-\infty}^{+\infty} V_{if}(t) dt = -\frac{2 \mu_1 \mu_2}{v b^2} [2 \sin^2 \vartheta + (\cos \phi \cos \vartheta + i \sin \phi)^2] \quad (\text{III - 33})$$

Contrairement au cas précédent, cette expression, et donc la probabilité de transition, ne disparaît plus pour le cas d'une collision où la vitesse de collision  $\vec{v}$  est parallèle au champ électrique statique  $\vec{F}$ ,  $\vec{v} // \vec{F}$ ,  $\vartheta = \pi/2$  et  $\phi = 0$ . Néanmoins celle-ci disparaît pour une autre orientation de la vitesse de collision et qui est donnée par:  $\vartheta = \pi/4$  et  $\phi = \pi/2$ . Ceci correspond à une vitesse de collision dans le plan perpendiculaire au champ électrique. En prenant le cas de  $\vec{v} \perp \vec{F} // \vec{b}$ , pour lequel  $\vartheta = 0$  et  $\phi = \pi/2$ , on retrouve pour la probabilité de transition, l'expression familière:

$$P(\infty) = \sin^2 \left\{ \int_{-\infty}^{+\infty} V_{if} dt \right\} = \sin^2 \left( \frac{\mu_1 \mu_2}{v b^2} \right) \quad (\text{III - 34})$$

***Remarque:***

Comme à la base du calcul de la probabilité de transition dans l'approximation de la résonance exacte on a fait la supposition que  $V_{if}=V_{fi}$  soient réel, il est clair que l'expression pour  $P(\infty)$  ne peut être exacte en utilisant l'expression donnée plus haut pour  $V_{if}$  et  $\int_{-\infty}^{+\infty} V_{if} dt$ . Il faut donc négliger le terme imaginaire pour calculer correctement la probabilité de transition dans une collision dipôle-dipôle avec  $\Delta m=1$ , ce qui conduit finalement à exactement les mêmes résultats quantitatifs discutés plus haut en fonction de l'orientation de la vitesse de collision  $\vec{v}$ .

**2 - c - Calculs numériques**

En regardant de plus près les suppositions faites pour pouvoir calculer analytiquement des solutions pour le système d'équations différentielles (III - 16) on peut se demander si effectivement  $V_{ii}$  et  $V_{ff}$  sont négligeables. Ceci est bien sûr le cas si l'on se trouve en champ électrique nul, car les états propres sont des états de moment angulaire  $l$  purs et ne possèdent pas de moments dipolaires permanents. Ce fait n'est plus valable si l'on se trouve en présence d'un champ électrique externe qui va mélanger les caractères  $l$  des différents niveaux d'énergie. En comparant ainsi les moments dipolaires permanents des états en jeu avec les moments dipolaires d'interaction, on trouve que ceux-ci sont du même ordre de grandeur. Il est donc clair qu'on ne peut pas négliger les moments dipolaires permanents dans un calcul des raies de résonance.

En résolvant numériquement les équations différentielles (III - 16) pour la forme des raies de résonances des collisions, on trouve que la probabilité de transition durant une collision résonnante ne disparaît pas, même si elle est nulle à résonance exacte comme on l'a vu auparavant [THO 89]. Si on prend en compte les moments dipolaires permanents, on observe que les raies des résonances sont légèrement déplacées en position d'à peu près une largeur de raie, comme les moments dipolaires permanents sont comparables à ceux d'interaction. En plus, les raies deviennent légèrement asymétriques, ce qui est dû au fait que l'espacement en énergie des niveaux atomiques dépend désormais de la séparation internucléaire (voir figure III-7).

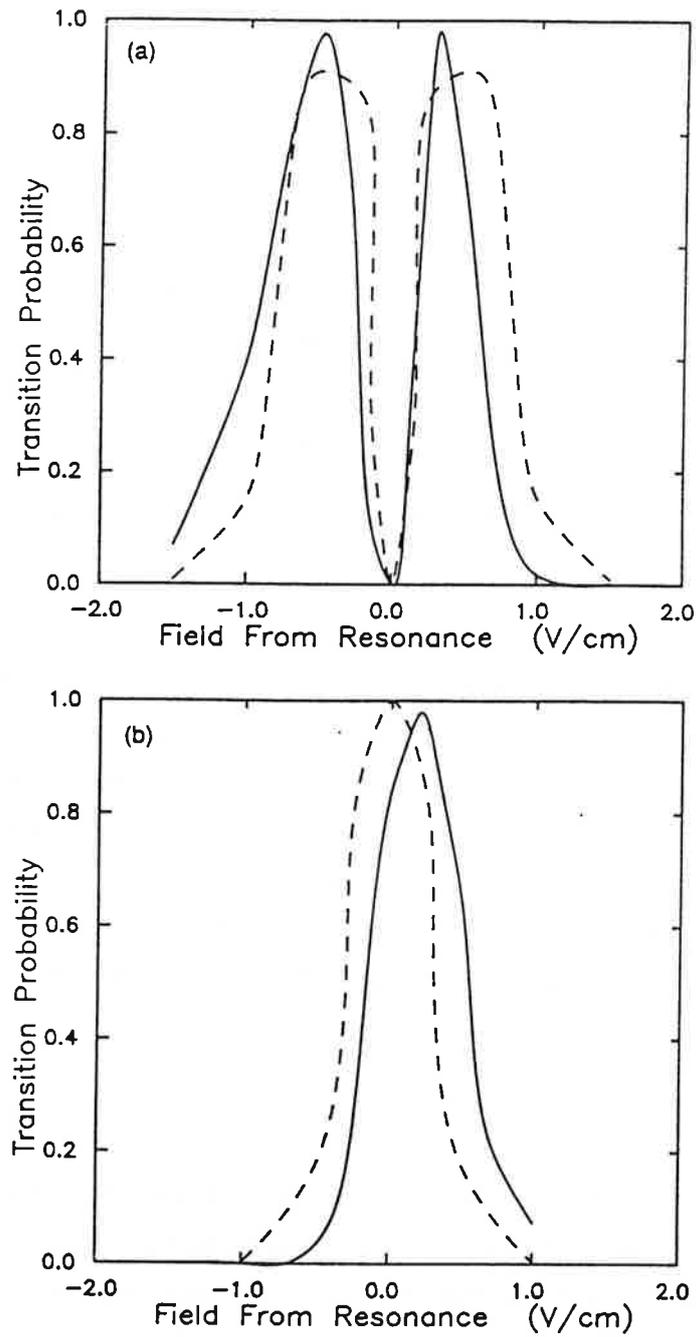


Figure III-7: Allure calculée des raies de résonance pour les deux cas: (a)  $\vec{v} \parallel \vec{F}$ ,  $\vartheta = \pi/2$  et  $\phi = 0$ , (b)  $\vec{v} \perp \vec{F}$ ,  $\vartheta = 0$  et  $\phi = \pi/2$ . Ces figures sont tirées de la référence [GAL 94].

### III - 3 - 3 - Dépendance en vitesse des résonances de collisions

Un des aspects les plus intéressants et aussi les plus prometteurs des collisions résonnantes est que, d'après la théorie, le temps de collision augmente et la largeur de raie de la résonance diminue quand on diminue la vitesse de collision  $v$ . D'après l'équation (III - 5) le temps de collision est proportionnel à  $1/v^{3/2}$ . Ainsi des collisions entre atomes thermiques ayant des températures de l'ordre de 500 K vont provoquer des largeurs de collisions qui sont typiquement de l'ordre de quelques centaines de MegaHertz pour  $n=20$ . En principe, on peut donc observer des largeurs de raies beaucoup plus fines en réduisant la vitesse de collision.

Une telle réduction de la vitesse de collision a été faite par le groupe de T.F. Gallagher en sélectionnant en vitesse les atomes d'un jet thermique par un chopper mécanique [REN 91]. On arrive ainsi à réduire la vitesse de collision d'un facteur de 10, ce qui conduit à une réduction de la largeur de raie d'un facteur 30 et à des largeurs de l'ordre de la dizaine de MHz. En réalisant ces expériences en champ électrique faible pour éviter tout élargissement de raie par des inhomogénéités de champ, la valeur du défaut quantique pour les états  $n_p$  du potassium a pu être déterminée avec une incertitude 5 fois plus faible par rapport à l'ancienne valeur [STO 87]. On voit donc que les collisions résonnantes sont, à cause de leurs grands temps d'interaction, plutôt du domaine de la spectroscopie que de celui des collisions.

Bien que des résonances d'une largeur de 5 MHz présentent un certain intérêt pour le domaine de la spectroscopie, il existe un autre aspect encore plus intéressant. Une largeur de raie de 5 MHz implique que le processus de collision dure au moins 200 nanosecondes, un temps qui devient comparable au temps pendant lequel on laisse évoluer le système avant d'appliquer l'impulsion du champ d'ionisation. Ainsi, si on peut réduire la largeur des résonances jusqu'à l'inverse du temps qu'on laisse au système pour faire des collisions, les résonances de collisions commencent à devenir limitées par transformée, et on peut dire à quel moment débute et finit chaque collision.

Thomson et al. [THO 90] ont effectivement observés ce phénomène sur des collisions résonnantes pour le potassium d'une largeur de résonance d'un MegaHertz, donc d'un temps d'interaction d'une microseconde. Dans ces expériences, la forme des résonances est analysée en réduisant le temps d'interaction de  $1 \mu\text{s}$  à  $0.4 \mu\text{s}$ . On observe clairement dans ces expériences que les résonances s'élargissent du fait qu'elles sont limitées par transformée de Fourier. Dans ce régime de collision on peut donc dire quand commence et se termine une

collision, et on peut essayer de perturber les atomes se heurtants à un moment bien défini de la collision, par exemple quand ils sont les plus proches l'un de l'autre.

On peut donc imaginer faire ces mêmes expériences sur un jet ralenti au lieu de sélectionner en vitesse un jet thermique. Dans un jet ralenti, les atomes froids présentent une distribution de vitesse d'une largeur d'environ 5 m/s, ce qui réduit la vitesse de collision d'un facteur 100 par rapport au cas du jet thermique. Pour de telles collisions, on devrait être dans le même régime que celui décrit ci-dessus et donc trouver des largeurs de raies de résonance de l'ordre du MégaHertz correspondant à des temps de collision de l'ordre de la microseconde.

### III - 4 - Principe de l'expérience

Le principe des expériences étudiant les processus de collisions résonnantes est relativement simple. Tout d'abord on excite un échantillon d'atomes dans un état de Rydberg bien défini, prenant comme exemple le cas correspondant à nos expériences, le niveau  $np$  (voir figure III-8). On laisse interagir quelque temps ces atomes de Rydberg (typiquement 2 à 4 microsecondes), puis on détecte sélectivement les états de Rydberg à l'aide de la méthode de l'ionisation par champ pulsé. Dans ce signal d'ionisation on observe donc en majorité des atomes de Rydberg dans l'état  $np$ , mais aussi quelques atomes de Rydberg dans des états voisins ayant été transférés par l'interaction avec la radiation du corps noir et quelques atomes ayant été photoionisés. Tout ces états peuvent a priori être distingués à l'aide de cette méthode de détection.

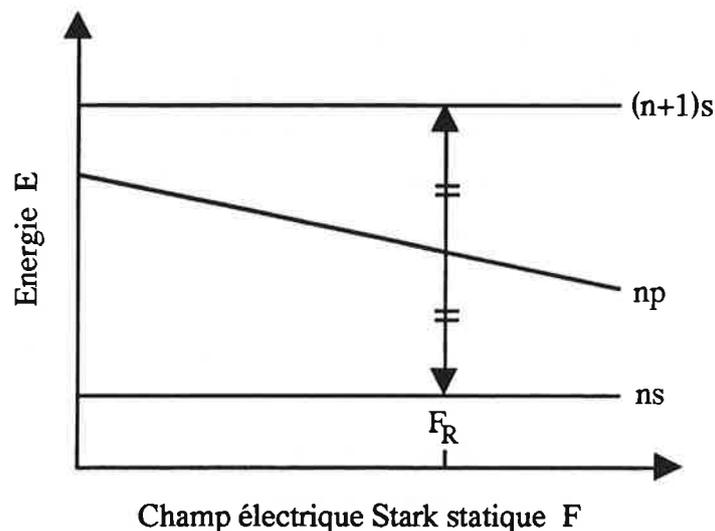


Figure III-8: Schéma du principe de l'expérience de collisions résonnantes.

Excitons maintenant les atomes de Rydberg en présence d'un champ électrique statique Stark. Bien que le niveau d'énergie excité puisse être décalé en énergie, on ne s'attend pas à des observations spectaculaires. Que va t'il maintenant se passer si le champ électrique Stark possède une valeur  $F_R$  telle qu'il existe deux niveaux d'énergie  $n_s$  et  $(n+1)_s$  se trouvant à la même distance du niveau  $n_p$ , mais l'un ayant une énergie plus basse et l'autre ayant une énergie plus importante que le niveau  $23p$  (voir figure III-8)? Dans ce cas, comme on l'a vu auparavant, la condition de résonance pour une collision avec transfert d'énergie entre deux atomes de Rydberg dans l'état  $n_p$  est satisfaite. Comme ce processus possède (à résonance) une section efficace relativement importante, on doit donc retrouver dans notre signal d'ionisation par champ une certaine partie d'ions (ou d'électrons) correspondant aux atomes de Rydberg dans les états  $n_s$  et  $(n+1)_s$ . En mesurant le signal d'ions correspondant à ces deux états en fonction du champ Stark appliqué, on observe le signal de collisions résonantes.

Concrètement dans nos expériences, la séquence temporelle est donnée par la figure III-9. L'excitation d'états de Rydberg se fait à une cadence de 10 Hz par une impulsion laser de 7 nanosecondes en présence d'un champ électrique statique. Pour balayer à travers la résonance de collision, on fait varier le champ électrique Stark sur une échelle de temps relativement longue par rapport à la mesure d'un signal d'ions, et qui est de l'ordre d'une vingtaine de secondes à une minute pour un balayage de quelques Volts. On laisse les atomes ayant été excités dans l'état  $n_p$  évoluer librement et faire des collisions entre eux pendant un temps de 2 microsecondes après leur excitation par le laser. Ce temps est suffisant pour que des atomes lents du jet atomique soient rattrapés et dépassés par des atomes plus rapides. La vitesse de collision est donc donnée approximativement par la largeur de la distribution de vitesse du jet. Après la période de 2 microsecondes pendant laquelle les collisions ont lieu, une impulsion de haute tension est appliquée à la grille du bas entourant la zone d'interaction. L'amplitude de cette impulsion est réglée de telle manière à ioniser les atomes de Rydberg dans l'état  $(n+1)_s$ , l'état final de la collision ayant plus haute énergie, mais cependant sans ioniser les atomes dans l'état initial  $n_p$ .

Les ions (ou électrons) produits par l'ionisation par champ sont expulsés de la région d'interaction située entre les deux grilles de champ et heurtent un détecteur de particules, qui consiste en des galettes micro-canaux, se trouvant au-dessus de la zone d'interaction. Le signal de ce détecteur est enregistré à l'aide d'un boxcar et les résonances sont observées en regardant le signal d'ionisation par champ tout en balayant lentement le champ Stark à travers les résonances.

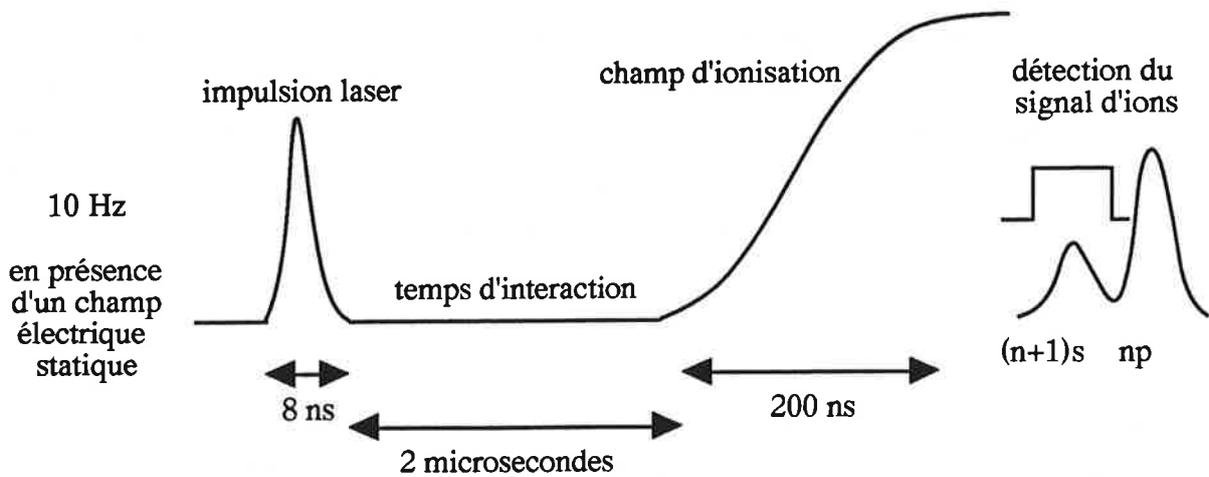


Figure III-9: Séquence temporelle de l'expérience de collision résonnante.

### III - 5 - Montage expérimental

Le montage du dispositif expérimental ayant été utilisé est similaire à ceux utilisés pour les expériences de spectroscopie à haute résolution des croisements évités [NOS 95] et pour la mise en place du piège magnéto-optique à deux dimensions [YU 94]. Néanmoins, il diffère de ceux-ci sur quelques points que je détaillerai par la suite tout en rappelant le reste du dispositif utilisé.

En gros, le montage expérimental peut être divisé en ces parties distinctes:

- Four et jet atomique de césium
- Lasers
- Champs électriques
- Détection et traitement des signaux

Voici point par point le descriptif de ces parties.

### III - 5 - 1 - Four et jet atomique de césium

Les études de collisions résonnantes entre atomes de Rydberg dans un jet atomique ont été réalisées sur le même jet atomique de césium que celui décrit dans la partie I-4-1. Le seul changement majeur consiste en un changement de l'embouchure du four de césium, afin d'obtenir une augmentation de la densité du jet atomique pour une même température du four. La sortie du four de césium n'est plus constituée de la pièce contenant une série de micro-canaux, mais consiste simplement en un trou de 0,5 mm de diamètre et de 5 mm de longueur. Ainsi, on gagne à peu près un facteur trois sur la densité du jet. Le désavantage de ce changement est qu'en même temps le jet devient plus divergent qu'auparavant, ce qui se traduit par une nette augmentation de la consommation de césium. Ainsi, il nous est arrivé de ne pouvoir travailler que deux ou trois jours avec le chargement d'un gramme de césium à des températures allant jusqu'à 270°C.

Pour s'assurer du bon fonctionnement du jet dans ces conditions, il est nécessaire d'utiliser quelques points froids dans l'enceinte à vide, pour éliminer des vapeurs résiduelles de césium et éviter ainsi la formation d'une cellule de césium à l'intérieur de celle-ci. Ces points froids consistent en des plaques et des diaphragmes en cuivre qui sont refroidis en étant en contact avec de l'azote liquide se trouvant dans des réservoirs à l'extérieur de l'enceinte à vide. Ces écrans froids sont nécessaires pour minimiser les dépôts de césium sur les plaques métalliques formant les champs électriques, ce qui pourrait conduire à des inhomogénéités de champs, et sur les galettes micro-canaux utilisées pour la détection d'ions, ce qui pourrait conduire à une nette diminution de leur gain ou voire même de leur durée de vie.

Pour pouvoir réaliser des expériences de collisions résonnantes sur des atomes de Rydberg ayant des vitesses de collision bien plus faibles, le jet peut être ralenti et comprimé à l'aide du piège magnéto-optique à deux dimensions. Le montage et les caractéristiques de ce jet sont décrits dans le premier chapitre de cette thèse.

### III - 5 - 2 - Lasers

Toute la partie laser servant au ralentissement et à la compression du jet a déjà été détaillée dans la partie I-4-3. Je me contenterai donc par la suite de détailler le montage laser servant à l'excitation dans des états Rydberg des atomes de césium du jet atomique.

Pour obtenir une excitation Rydberg relativement efficace, on a opté pour une excitation à deux étages résonnants. Le premier étage consiste à exciter le niveau  $6P_{3/2}$  du césium à partir du niveau fondamental  $6S_{1/2}$  (raie  $D_2$ ) à l'aide d'une diode laser continue lasant à 852 nm. A partir du niveau  $6P_{3/2}$ , on excite sélectivement des états de Rydberg du césium ayant un nombre quantique principal  $n$  aux alentours de 20, à l'aide d'un laser à colorant pulsé dont la longueur d'onde varie autour de 514 nm. Par la suite, je donnerai de plus amples détails sur les caractéristiques de ces deux systèmes lasers.

## 2 - a - Laser 1<sup>er</sup> étage

Comme transition de premier étage, on a choisi la transition  $6S_{1/2} \rightarrow 6P_{3/2}$ , c'est à dire la raie  $D_2$  du césium. Ce choix fut motivé ou imposé par le fait qu'on avait à notre disposition bon nombre de diodes lasers lasants sur cette transition, qui furent utilisées pour les expériences de ralentissement et de piégeage du jet atomique qui font le sujet du premier chapitre de cette thèse.

La diode utilisée est une diode SDL5412 couplée à un réseau en cavité externe. Sa puissance est d'environ 10 mW et sa largeur spectrale d'une centaine de kHz. Cette diode éclaire en permanence le jet perpendiculairement à son axe sur la transition fermée  $6S_{1/2} F = 4 \rightarrow 6P_{3/2} F' = 5$ .

Un deuxième type de diode laser a été utilisé pour finalement remplacer le système décrit ci-dessus. Il s'agit d'une diode laser SDL5712, qui est une diode laser DBR où le réseau de diffraction est intégré dans la diode elle-même lors de sa fabrication. Cette diode livre une émission laser d'à peu près 50 mW avec une largeur spectrale inférieure à 3 MHz. Une telle diode offre un moyen très facile pour obtenir de la lumière laser de puissance tout en réunissant une excellente qualité spectrale et une bonne stabilité en fréquence.

En interchangeant les deux systèmes pour le premier étage de l'excitation Rydberg, on ne remarque pas de différence notable, ce qui est prévisible puisque la transition atomique est saturée dans les deux cas.

## 2 - b - Laser 2<sup>ième</sup> étage

Pour exciter un état de Rydberg du césium avec  $n$  aux environs de 20, ce qui est relativement proche de la limite d'ionisation (à peu près  $270 \text{ cm}^{-1}$  pour  $23p$ ), à partir du niveau  $6P_{3/2}$ , il nous faut combler à peu près  $19400 \text{ cm}^{-1}$ , ce qui correspond à une transition d'une longueur d'onde autour de 515 nm. Pour espérer saturer cette transition, il faut bien sûr le maximum de puissance possible, et comme toute l'expérience se fait en régime pulsé, on choisit comme source de lumière un laser à colorant pompé par un laser Nd:YAG pulsé. Il s'agit d'un laser à colorant Quantel TDL50, qui utilise, pour obtenir du bleu-vert, comme colorant de la Coumarine 500, et qui est pompé par la fréquence triplée (UV: 355 nm) d'un laser Nd:YAG Quantel travaillant à une fréquence de répétition de 10 Hz.

### *a) Le laser pompe*

Le laser pompe est un laser Nd:YAG pulsé qui est déclenché en externe à une fréquence de 10 Hz par des signaux d'une boîte qui pilote tous les déclenchements et les retards utilisés pour les lasers, les champs électriques et la détection. Ces signaux sont transformés en signaux optiques, qui eux sont envoyés par des fibres optiques vers le laser YAG, où ces signaux lumineux sont retransformés en signaux TTL adéquats. Les trois signaux nécessaires au déclenchement du laser sont utilisés pour la charge des lampes de pompe, pour la décharge des mêmes lampes et pour le déclenchement de la cellule de Pockels, c'est à dire pour le tir laser lui-même. Pour obtenir un maximum de puissance du laser YAG, il est nécessaire d'optimiser le délai de l'ouverture de la cellule de Pockels par rapport au déclenchement des flashes de pompe. Pour notre laser, il s'avère que cette valeur optimale pour le délai est de  $390,4 \mu\text{s}$ .

Le laser pompe émet des impulsions de durée de 8 ns et de puissance 300 mJ en infrarouge à 1064 nm. Cette longueur d'onde est doublée dans un cristal de KDP pour livrer 120 mJ en vert à 532 nm. Les deux fréquences sont mélangées dans un cristal tripleur et on sort environ 35 mJ à la longueur d'onde en UV de 355 nm nécessaire pour pomper le laser à colorant. L'UV est séparé des autres fréquences générées par le laser pompe par le passage sur deux miroirs dichroïques.

### *β) Le laser à colorant*

La lumière laser nécessaire pour exciter des atomes de césium dans des états de Rydberg à partir du niveau  $6P_{3/2}$  nous est livrée par un laser à colorant Quantel TDL50 dont je vais décrire les caractéristiques dans la partie suivante.

#### - Principe de fonctionnement

Ce laser à colorant utilise un réseau en incidence rasante en configuration Littman pour régler la longueur d'onde émise. Pour avoir une bonne sélectivité de longueur d'onde, il est nécessaire d'utiliser des réseaux de haute résolution. La solution pour avoir un taux de fluorescence de l'oscillateur le plus bas possible réside chez ce laser dans la configuration de pompage et dans la façon dont l'énergie est sortie de la cavité laser (voir figure III-10). Une partie du faisceau dans la cavité subit une réflexion interne totale de la face de la cellule de colorant. Cette configuration assure que la direction principale de l'émission de la fluorescence ne coïncide pas avec la direction du faisceau laser.

L'oscillation laser prend naissance entre deux miroirs totalement réfléchissants. L'énergie est sortie par diffraction à l'endroit d'un des coins de la cellule de colorant de l'oscillateur. Cette configuration assure que la fluorescence revenant des amplificateurs ne frappe aucune surface réfléchissante avant d'atteindre le réseau, la dispersant ainsi et la réduisant à un niveau très faible.

Le laser à colorant TDL50 possède un oscillateur et deux amplificateurs. Les cellules à colorant de l'oscillateur et du premier amplificateur (préamplificateur) sont toutes les deux rectangulaires. Le dernier amplificateur est du type capillaire. Toutes les cellules de colorant sont pompées transversalement. Pour rendre le laser le plus compact possible, le chemin du faisceau laser est replié deux fois par des prismes à réflexion interne totale. Des lentilles divergentes et des lentilles convergentes ajustables assurent le diamètre et la divergence correctes du faisceau.

Le chemin du faisceau pompe est lui aussi replié deux fois. Une lame non traitée dévie 5% de l'énergie du faisceau pompe dans l'oscillateur et une lame séparatrice achromatique dévie 10% de l'énergie pompe dans le préamplificateur. Le reste est utilisé pour pomper

l'amplificateur final.

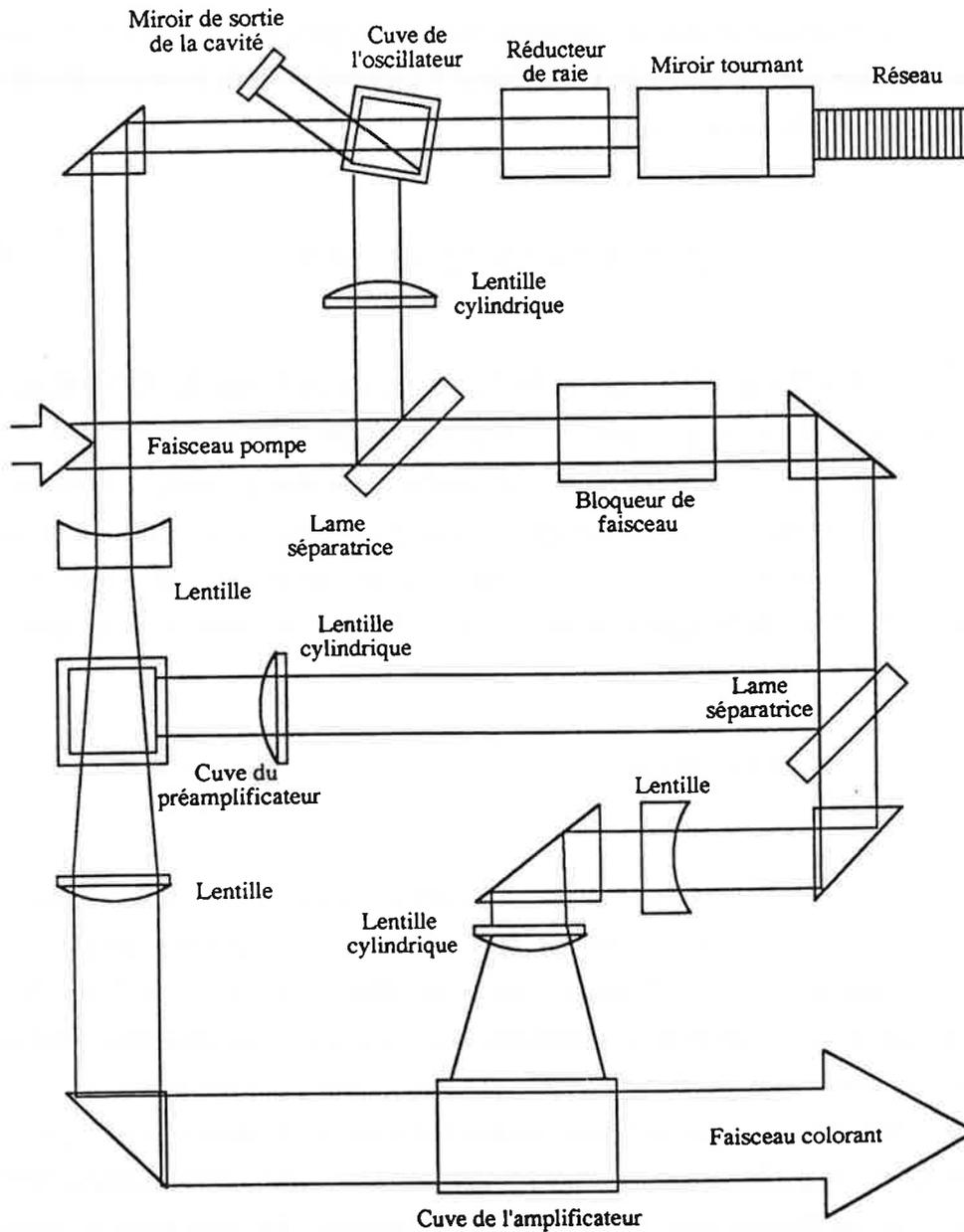


Figure III-10: Schéma du montage du laser à colorant servant comme laser de deuxième étage dans l'excitation Rydberg.

- Réglage de la longueur d'onde du laser à colorant

La longueur d'onde du faisceau laser est réglée en tournant le miroir en face du réseau se trouvant dans la cavité de l'oscillateur. La variation de la longueur d'onde en fonction de l'angle de ce miroir est donnée par:

$$\lambda = \frac{d}{m} (\sin \alpha + \sin \beta) \approx \frac{d}{m} (1 + \sin \beta) \quad (\text{III - 35})$$

où  $d$  est l'espacement des traits du réseau,  $m$  est l'ordre de diffraction,  $\alpha$  est l'angle d'incidence sur le réseau (à peu près  $90^\circ$ ) et  $\beta$  est l'angle entre la normale sur le réseau et le miroir de réglage. Le mécanisme permet d'accéder à un changement linéaire de la longueur d'onde à partir d'un mouvement mécanique linéaire. Une platine à translation linéaire induit une rotation d'un bras de levier "sinus" qui à son tour tourne le bras du miroir de réglage. Le mouvement résultant et la variation de longueur d'onde obéissent à la relation sinusoïdale donnée plus haut.

- Colorant utilisé

On excite des états de Rydberg du césium à partir de son état excité  $6P_{3/2}$ . Pour ceci, il faut combler un écart en énergie de  $19400 \text{ cm}^{-1}$ , ce qui correspond à une longueur d'onde avoisinant les 515 nm. Ayant à notre disposition la lumière à 355 nm du laser YAG, obtenue à l'aide d'un mélange de son émission à 1064 nm avec sa fréquence doublée à 532 nm dans un cristal mélangeur de fréquence, en tant que faisceau pompe, notre choix s'est porté sur la Coumarin 500 dilué dans le méthanol comme colorant. La dilution utilisée, qui correspondait à un optimum de la qualité du faisceau laser, était de 1/2 gramme de Coumarin 500 par litre de méthanol pour l'oscillateur et de 1/4 de gramme par litre pour les deux amplificateurs.

- Caractéristiques de la lumière émise

En utilisant comme colorant de la Coumarin 500 diluée dans du méthanol, le domaine spectral pouvant être atteint par le laser à colorant sans trop de pertes de puissance s'étend de 490 à 530 nm. Pour une puissance du laser pompe de 35 mJ à 355 nm, on obtient à peu près 1 mJ de lumière à 515 nm à la sortie du laser à colorant. Celui-ci fonctionne en régime pulsé à un taux de répétition de 10 Hz livrant ainsi des impulsions d'à peu près de 8 ns de durée. La largeur spectrale de ces impulsions est d'à peu près 10 GHz.

### III - 5 - 3 - Champs électriques

Pour les expériences de collisions résonnantes dans un jet atomique, on nécessite deux champs électriques distincts: un champ électrique statique Stark servant à réaliser la condition de résonance en déplaçant les niveaux Rydberg, et un champ électrique d'ionisation pulsé servant à la détection sélective des états de Rydberg en jeu dans la collision. Ces deux champs électriques ont été décrits dans le paragraphe II-4-3-a et sont identiques à ceux du montage des expériences de spectroscopie de croisements évités.

### III - 5 - 4 - Détection et traitement des signaux

La détection des produits des collisions résonnantes se fait de façon similaire à celle utilisée dans les expériences de spectroscopie de croisements évités. La zone d'interaction se trouve située entre deux plaques sur lesquelles sont appliquées les champs électriques. Cette zone se trouve située à environ 130 mm du four de césium dont provient le jet atomique. Les électrons arrachés aux atomes de Rydberg par l'impulsion du champ d'ionisation et sont envoyés sur des galettes micro-canaux. Le principe et le fonctionnement de celles-ci sont décrit dans le paragraphe II-4-3-a. En regardant le signal provoqué par l'impact d'un seul électron sur celles-ci, on peut calibrer le gain de ce système. Un signal typique d'un électron frappant les galettes micro-canaux et enregistré par un oscilloscope numérique est illustré sur la figure III-11. La calibration du gain des galettes micro-canaux en fonction de la tension leur étant appliquée, réalisée à l'aide de ces signaux est montré sur la figure III-12. On voit que le gain augmente à peu près linéairement avec la tension appliquée et qu'à partir d'une certaine tension ce gain sature et tend vers une valeur constante de  $2 \text{ à } 3 \cdot 10^8$ .

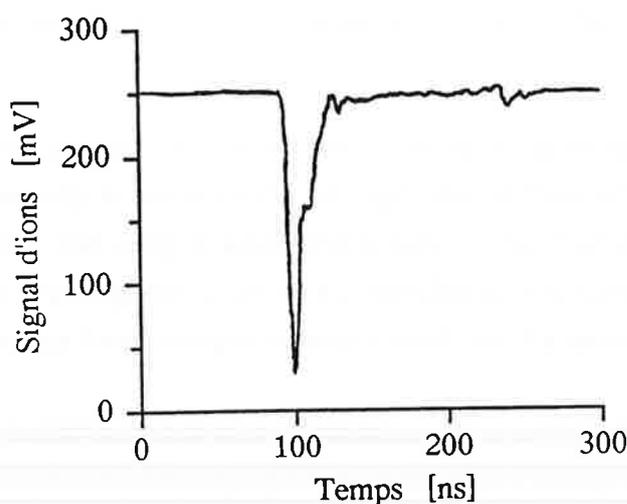


Figure III-11: Signal récolté par un oscilloscope numérique d'un électron frappant sur les galettes micro-canaux pour une tension leur étant appliquée de 2.5 kV.

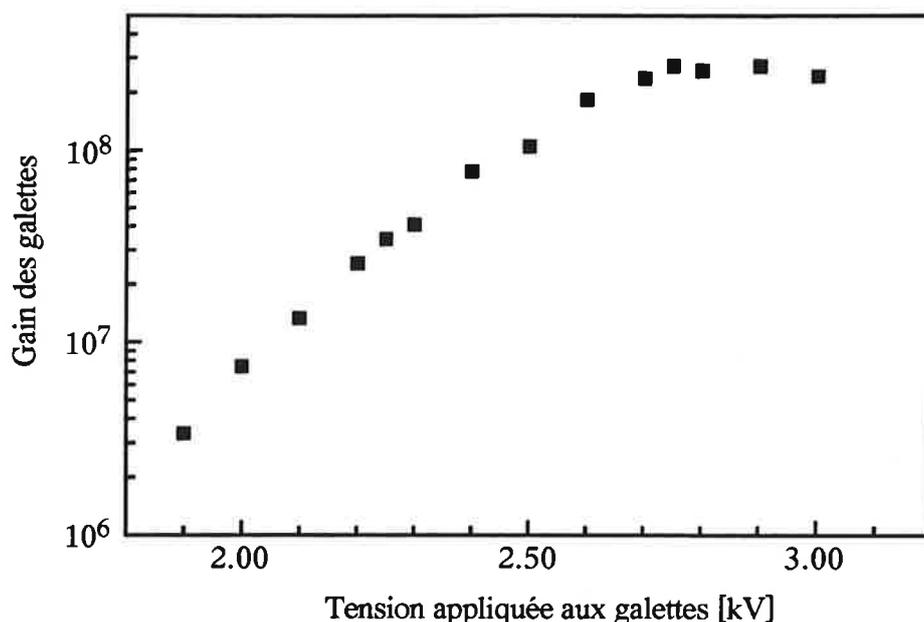


Figure III-12: Courbe de gain des galettes micro-canaux utilisées dans nos expériences en fonction de la tension qui leur est appliquée.

Les signaux provenant des galettes micro-canaux sont envoyés sur un oscilloscope pour la visualisation et dans un "boxcar averager" pour le traitement. A l'aide de celui-ci, les signaux à l'intérieur d'une porte électronique, qui est variable en durée et en délai, peuvent être intégrés. Ce signal intégré est finalement envoyé sur une table traçante qui enregistre les signaux pendant qu'on balaye ou bien le champ Stark (pendant les expériences de collisions) ou bien la fréquence du laser d'excitation Rydberg (pendant des expériences de spectroscopie Rydberg). Parallèlement à ce signal, on peut enregistrer sur la table traçante la variation du champ électrique statique Stark ou alors la variation de la longueur d'onde du laser à colorant.

Normalement dans une expérience de collisions résonnante, on positionne la porte électronique du "boxcar averager" de telle façon à intégrer le signal d'ionisation correspondant au produit de collision présentant le seuil d'ionisation le plus bas. Ce signal est ensuite enregistré sur la table traçante tout en balayant lentement le champ Stark, qui est enregistré en parallèle. Les résultats obtenus à l'aide de ce dispositif expérimental sont réunis dans la partie qui suit.

## III - 6 - Résultats expérimentaux

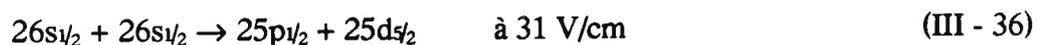
Dans la partie suivante de ce chapitre, je vais détailler les résultats qu'on a obtenus grâce à nos expériences de collisions résonnantes entre atomes de Rydberg dans un jet atomique. On peut distinguer deux expériences différentes, pour lesquelles je décrirai les résultats, et qui sont des collisions résonnantes entre atomes de Rydberg dans un jet atomique thermique et dans un jet atomique ralenti.

### III - 6 - 1 - Collisions résonnantes dans un jet atomique thermique

Les premières expériences de collisions résonnantes qu'on a réalisées ont été faites sur des atomes de Rydberg dans un jet atomique thermique. C'est cette expérience qui est à la base de toute expérience de collisions résonnantes que ce soit sur des atomes froids ou non. On a donc essayé de trouver des signaux pour différents types de collisions résonnantes, dont je décrirai les résultats cas par cas dans la suite.

#### 1 - a - Collisions résonnantes du type $ns+ns \rightarrow (n-1)p+(n-1)d$

Un type de collisions résonnantes qu'on a essayé d'étudier pour des atomes de Rydberg est donné spécifiquement pour un certain niveau par la réaction suivante:



On voit bien que ces collisions sont interdites si elles se font exclusivement par des transitions dipolaires. Cependant si la condition de résonance pour une telle collision est satisfaite à un champ électrique statique suffisamment élevé pour provoquer un mélange des états purs dans les niveaux Stark, il doit être possible d'observer de telles collisions par interaction dipôle-dipôle entre les états mélangés.

Dans le cas de nos expériences, on n'a malheureusement jamais pu mettre en évidence la présence de collisions résonnantes selon ce schéma. On voit en effet que la condition de résonance se trouve réalisée à un champ électrique relativement faible (31V/cm

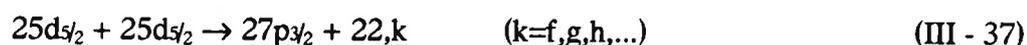
pour 26s), champ où les niveaux Stark sont encore relativement purs et où les transitions par interaction dipolaire entre les niveaux en jeu sont interdites.

Ce type de collision a été essayé pour les niveaux 26s et 27s, et pour des températures du four allant jusqu'à 250°C sans donner de résultats notables, ce qui était somme tout prévisible, vu que les processus de collision en jeu sont en grande partie interdits. On a donc laissé tomber ce type de collisions pour nous tourner vers des schémas de collisions théoriquement beaucoup plus probables.

### 1 - b - Collisions résonnantes du type $nd+nd \rightarrow (n-2)p+(n-3),k$

Dans une expérience de collisions résonnantes il existe deux conditions qui doivent être réalisées pour pouvoir observer de telles collisions. Les collisions doivent premièrement avoir lieu, il ne doit donc pas s'agir de transitions interdites. De plus il faut que les produits d'une collision résonnante soient détectables pour observer des résonances.

Plus haut, on a vu que si la première condition n'est pas strictement remplie, on n'assiste pas à des collisions résonnantes. On a donc choisi le schéma de collisions résonnantes qui est permis par des transitions dipolaires suivant:  $nd + nd \rightarrow (n+2)p + (n-3)k$ . La seconde condition est-elle aussi réalisée? En effet il est relativement facile de détecter les produits de cette collision si elle a lieu, comme on peut le voir à l'aide d'un exemple concret. On a:



Cette collision est facilement détectable (si elle a lieu), comme le seuil d'ionisation du niveau  $27p_{3/2}$  final est bien différent de celui du niveau initial  $25d_{5/2}$ . Ceux-ci valent respectivement 1130 et 1350 V/cm, ce qui nous permet de détecter le niveau  $27p_{3/2}$  sans avoir de signal du niveau  $25d_{5/2}$  pour perturber les signaux de collisions.

En balayant lentement le champ Stark et en observant le signal d'ionisation correspondant au niveau  $27p_{3/2}$  (ou correspondant à un état présentant un seuil d'ionisation légèrement inférieur à celui de  $25d_{5/2}$ ), on remarque des structures dans le signal, qui ne présentent certes pas un très bon rapport signal sur bruit, mais qui sont tout de même reproductibles. Il semble en effet s'agir de résonances de collisions (voir figure III-13).

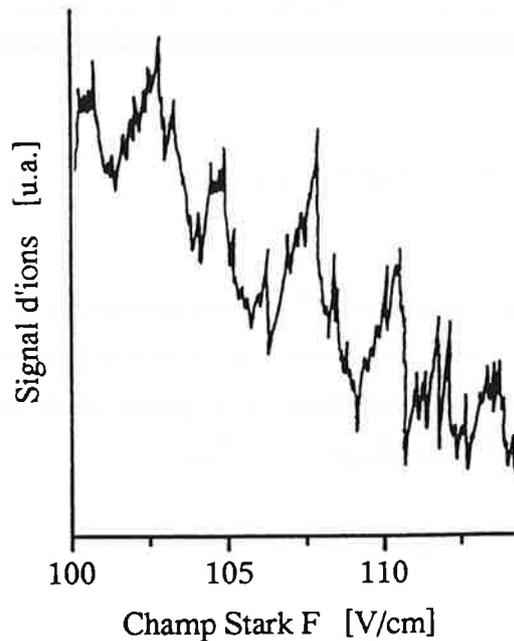


Figure III-13: Signaux de collisions résonnantes résultants du niveau initial  $25d_{5/2}$ .

L'énorme bruit de fond provient du fait que le signal du niveau  $27p_{3/2}$  s'additionne à un fond non résonnant et fluctuant qui correspond à un transfert par radiation du corps noir d'atomes de Rydberg dans le niveau  $25d_{5/2}$  vers d'autres niveaux plus élevés. En choisissant des délais très courts ( $\approx 500$ ns) entre l'impulsion laser et la détection, on arrive à faire diminuer ce fond, mais en même temps le signal de transfert par collisions résonnantes chute dans les mêmes proportions. On peut aussi essayer de diminuer la température du four de césium pour améliorer le rapport signal sur bruit, mais ceci a le même effet que la diminution du délai sur le rapport signal sur bruit. Pour ce type de collisions résonnantes, on a donc toujours observé un signal avec un rapport signal sur bruit relativement faible, ce qui le rendait difficilement exploitable.

En examinant de plus près les structures dans le signal obtenu, on remarque que ces structures ne se trouvent pas toutes à des valeurs de champ électrique où on s'attendrait à des résonances de collisions de ce type. En regardant le schéma des niveaux Stark pour les niveaux concernés par ce type de collisions résonnantes (figure III-14), on voit qu'on s'attend à une première résonance de collision à 105 V/cm pour la collision (III-37). Cependant, en balayant le champ Stark à des valeurs inférieures à 100 V/cm, on observe toujours des structures, et ceci jusqu'à des champs d'environ 50 V/cm. Ces structures ne peuvent pas correspondre au type de collision que l'on vient de discuter. Il y a en effet un autre type de collision résonnante qui est

possible, et ceci presque en permanence si le champ Stark est supérieur à 50 V/cm. Ces collisions résonnantes suivent un autre schéma de collision mettant en jeu d'autres niveaux finaux:

$$25d_{5/2} + 25d_{5/2} \rightarrow 23,k + 22,k' \quad (k, k'=f,g,h,\dots) \quad (\text{III} - 38)$$

On voit sur le schéma III-14 des niveaux Stark qu'il y a en effet une multitude de possibilités pour de telles résonances aux alentours des résonances recherchées. C'est donc la raison pour laquelle on voit des structures reproductibles à des endroits où on ne s'attend pas à en voir d'après les calculs de diagrammes Stark.

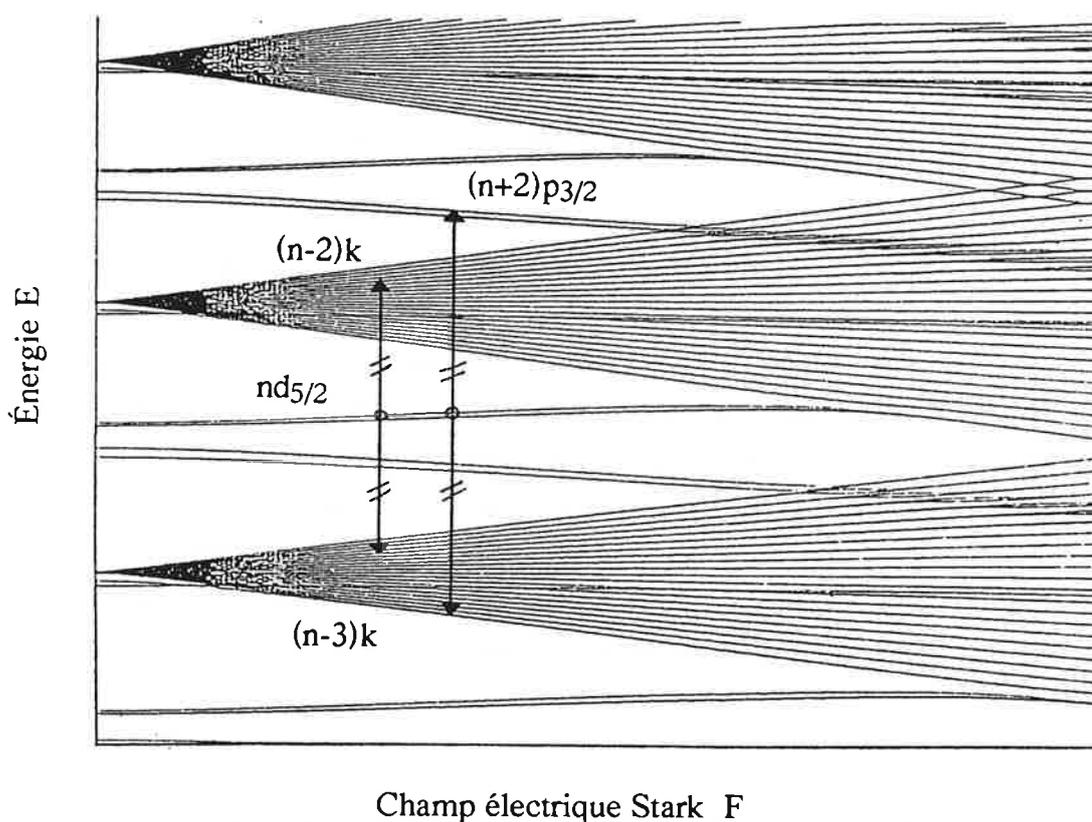


Figure III-14: Schéma des niveaux Stark impliqués dans les types de collisions résonnantes décrits ci-dessus.

On aurait pu croire que ce deuxième type de collision serait moins efficace que le premier type recherché, comme dans cette collision sont impliqués deux états issus de multiplicités différentes, tandis que dans l'autre cas une seule multiplicité est impliquée dans la

collision. On remarque que ce genre de raisonnement n'est pas tout à fait juste en examinant les valeurs des éléments de matrice dipolaire impliqués dans les deux types de collisions différents. A l'aide d'un calcul on trouve pour les éléments de matrice dipolaire en champ nul:

$$\langle 25d_{5/2} | r | 27p_{3/2} \rangle = 109 \text{ unités atomiques}$$

$$\langle 25d_{5/2} | r | 22f_{7/2} \rangle = 230 \text{ unités atomiques}$$

$$\langle 25d_{5/2} | r | 23f_{7/2} \rangle = 310 \text{ unités atomiques}$$

Les éléments de matrice dipolaire entre  $25d_{5/2}$  et un état  $n,l$  d'une multiplicité sont donnés par la multiplication de l'élément de matrice dipolaire entre  $25d_{5/2}$  et l'état  $nf_{7/2}$ , qui est donné plus haut, avec le pourcentage de caractère  $f$  contenu dans l'état mélangé  $n,l$  de la multiplicité. Si le mélange est maximal, c'est à dire si on se trouve à un champ Stark assez élevé, ce pourcentage de caractère  $f$  dans le mélange est d'à peu près de  $\sqrt{n-3}$ . La valeur du champ électrique statique à laquelle se passent les collisions résonnantes est en effet suffisamment élevée pour garantir un bon mélange des niveaux dans les multiplicités, puisque sur les spectres Stark on voit clairement apparaître tous les niveaux de la multiplicité avec la même intensité. On trouve ainsi pour le produit des moments dipolaires donnant la section efficace à la vitesse de collision près dans le cas des deux types de collisions:

- premier cas (III-37):  $\mu_1 \cdot \mu_2 = 5750$

- deuxième cas (III-38):  $\mu_1 \cdot \mu_2 = 3658$

On voit que ces deux chiffres sont du même ordre de grandeur, ce qui va aussi être le cas pour la section efficace des deux processus différents. On n'aura donc pas de signal de résonance beaucoup plus marqué pour l'un des deux cas.

On a fait des études pour le cas du niveau  $25d_{5/2}$  et ceci pour des températures du four de césium allant de 160 à 260°C. Malheureusement il est pratiquement impossible d'exploiter les signaux de collisions à cause de leur faible rapport signal sur bruit et de la multitude de résonances brouillant en partie le signal.

**1 - c - Collisions résonnantes du type  $np+np \rightarrow (n+1)s+ns$** 

Ayant eu, jusqu'à ce moment, relativement peu de succès avec les expériences de collisions résonnantes, on s'est tourné vers un autre type de collision résonnante. Celui-ci implique le niveau  $np_{3/2}$  en tant que niveau initial et les niveaux  $ns$  et  $(n+1)s$  en tant que niveaux finaux, comme on peut le voir sur la figure III-15. Les transitions impliquées dans ce type de collisions résonnantes sont toutes autorisées par interaction dipolaire, ces collisions résonnantes peuvent donc avoir lieu.

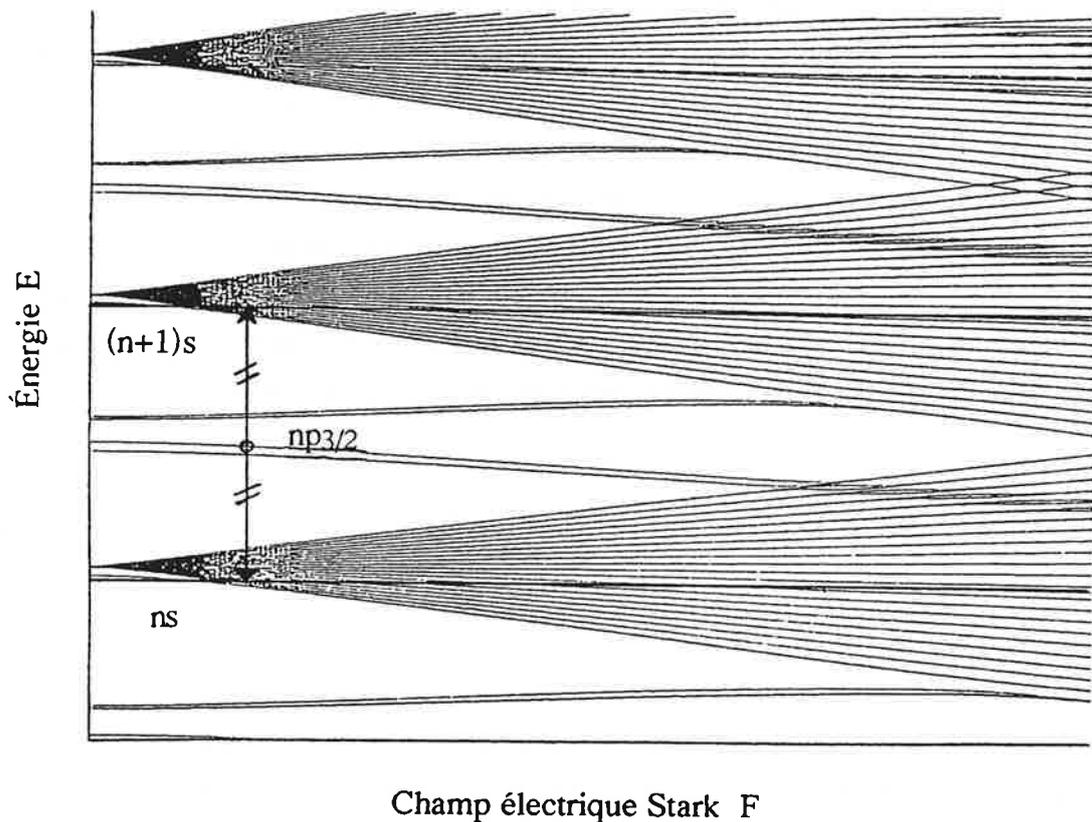


Figure III-15: Schéma des niveaux Stark impliqués dans les collisions résonnantes du type  $np + np \rightarrow (n+1)s + ns$ .

Examinons maintenant le cas concret de la collision résonnante suivante:

$$23p_{3/2} + 23p_{3/2} \rightarrow 24s_{1/2} + 23s_{1/2} \quad , \text{ pour } 80.5 \text{ V/cm.} \quad (\text{III - 39})$$

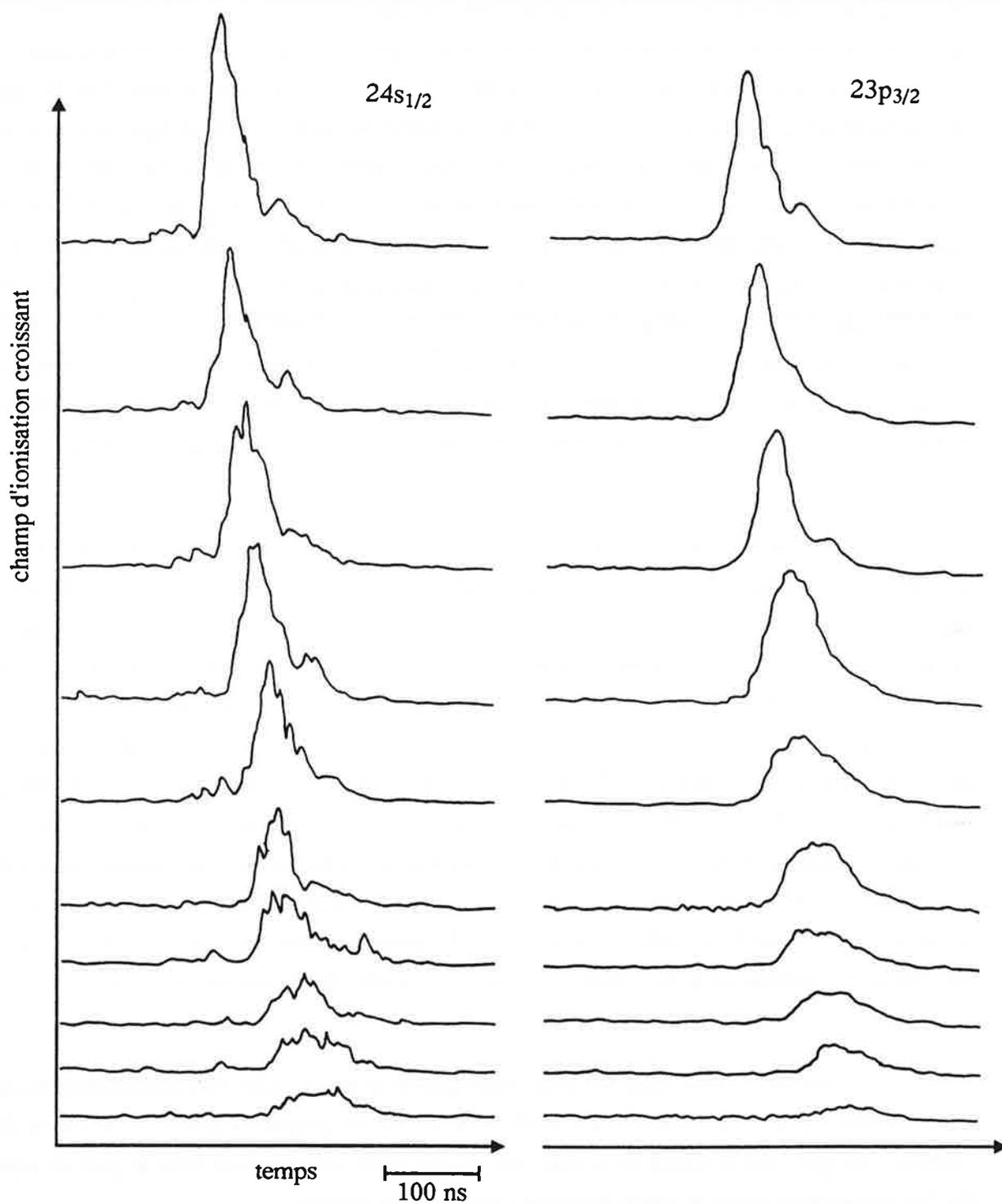


Figure III-16: Étude des seuils d'ionisation pour le niveau  $23p_{3/2}$  et le niveau  $24s_{1/2}$ . On voit des signaux d'ions recueillis pour différentes valeurs du champ d'ionisation.

Si l'on regarde de près les seuils d'ionisation du niveau initial  $23p_{3/2}$  et du niveau final  $24s_{1/2}$ , on observe que ceux-ci ne sont pas très différents (voir figure III-16). En effet, le niveau  $23p$  s'ionise à peu près à la même valeur de champ électrique que le niveau  $24s$ , bien que celui-ci soit nettement supérieur en énergie, et à une valeur de champ nettement inférieure que le niveau tout juste supérieur, c'est-à-dire  $25d$ . De plus pour le niveau  $24s$ , le signal d'ionisation par champ présente plusieurs pics et seuils distincts, ce qui indique que ce niveau n'ionise pas par un seul chemin, mais suit plusieurs chemins à travers la multiplicité, ce qui est probablement dû à la présence de croisements évités entre niveaux dans cette région. Ce fait est particulièrement augmenté dans le cas du césium à cause de la structure fine importante. Il est donc relativement difficile de séparer dans un signal d'ions, les niveaux  $23p$  et  $24s$ . Le niveau final  $23s$  quant à lui est pratiquement indétectable dans nos expériences, car le signal de  $23p$  survenant à un champ d'ionisation plus faible sature complètement les galettes micro-canaux et masque tout signal arrivant juste après celui-ci. Il s'avère donc relativement difficile de détecter les signaux dus aux processus des collisions résonnantes du type mentionné ci-dessus.

Un autre facteur limitant la détectabilité des produits de collisions résonnantes consiste dans le transfert de population entre états de Rydberg voisins par l'interaction avec la radiation du corps noir. Comme la zone d'interaction se trouve à proximité du four atomique de césium, qui est chauffé à des températures environnantes les  $250\text{ }^{\circ}\text{C}$ , ce transfert est relativement important et ceci même pour des temps d'interaction de moins de  $5\text{ }\mu\text{s}$  (voir figure III-17). Le transfert par radiation du corps noir livre donc un fond continu d'atomes transférés vers le niveau  $24s$  qu'on désire détecter. Les fluctuations de ce fond non résonnant peuvent être très importantes et masquer tout signal dû à des transferts par collisions résonnantes. En fait, le transfert par radiation du corps noir semble être en partie responsable pour la coïncidence des seuils d'ionisation des signaux  $23p$  et  $24s$ . Il s'avère que dans des expériences en piège magnéto-optique où le transfert par radiation du corps noir est bien plus faible, on arrive parfaitement à distinguer le seuil d'ionisation du niveau  $24s$  de celui du niveau  $23p$ .

Pour les collisions résonnantes impliquant le niveau  $23p$ , on a néanmoins réussi à observer des signaux de résonances de collisions, et ceci en plaçant la porte électronique d'un "boxcar averager" sur le signal du niveau  $24s$ , qui est situé juste à l'avant dans le pied du signal de  $23p$ , et en enregistrant le signal résultant sur une table traçante.

Pour pouvoir observer des raies de résonances présentant un bon rapport signal sur bruit, il faut se limiter à des temps d'interaction inférieurs à  $2\text{ }\mu\text{s}$ . Au-delà de ce délai, on observe un fond de transfert non résonnant, dont les fluctuations brouillent en grande partie les signaux de collision. Sur la figure III-17, on voit nettement apparaître ce grand fond situé à

l'avant du signal d'ionisation correspondant au niveau  $23p_{3/2}$ . Ce fond vient se superposer aux signaux correspondants aux transferts par collision. L'apparition de ce grand transfert non résonnant est probablement due à des transferts par radiation du corps noir et par des collisions dans le jet qui est relativement dense pour les températures de four auxquelles on travaille.

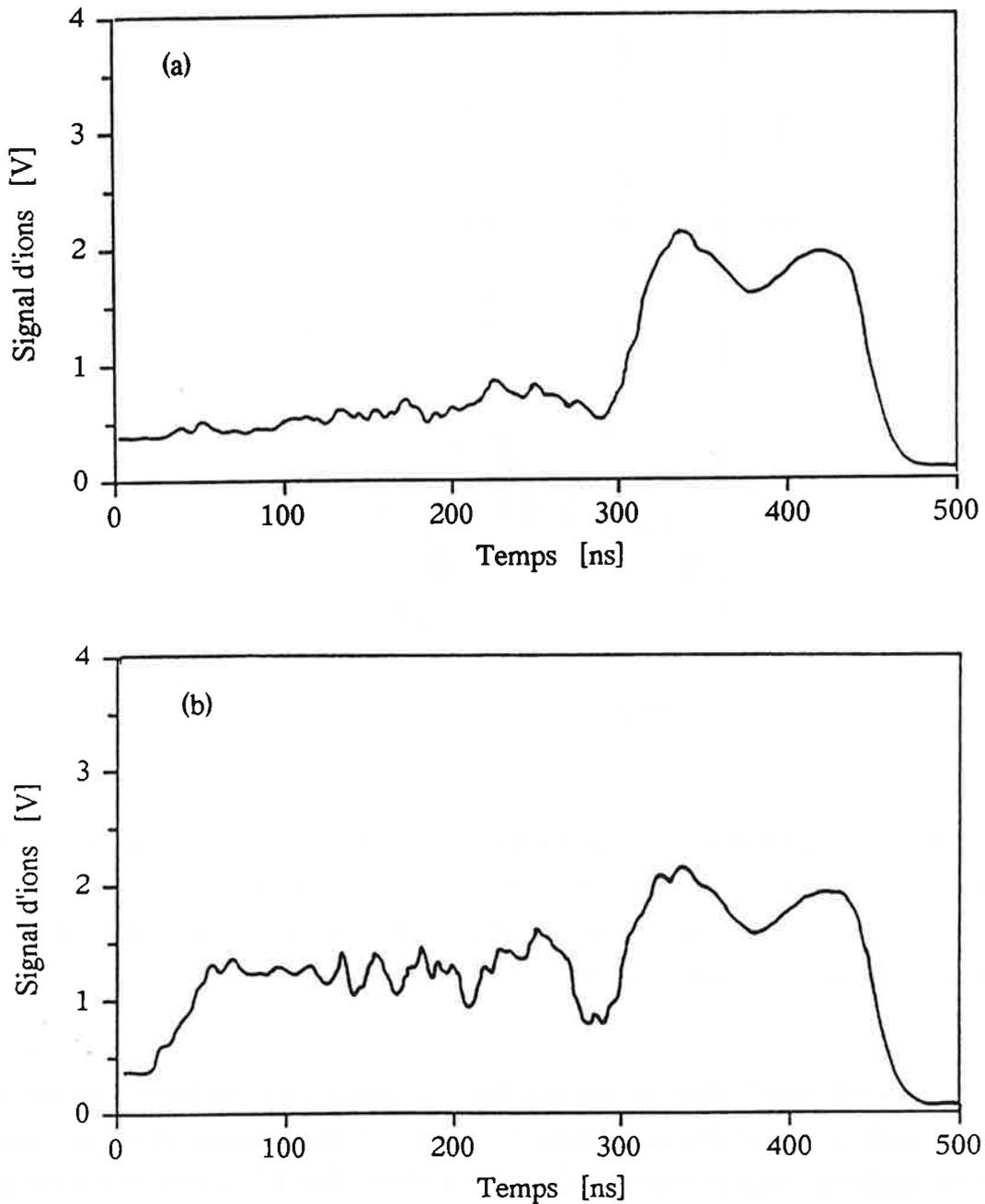


Figure III-17: Signal d'ionisation récolté après excitation du niveau  $23p_{3/2}$  et un délai avant l'analyse de: (a) 200 ns, (b) 5  $\mu$ s.

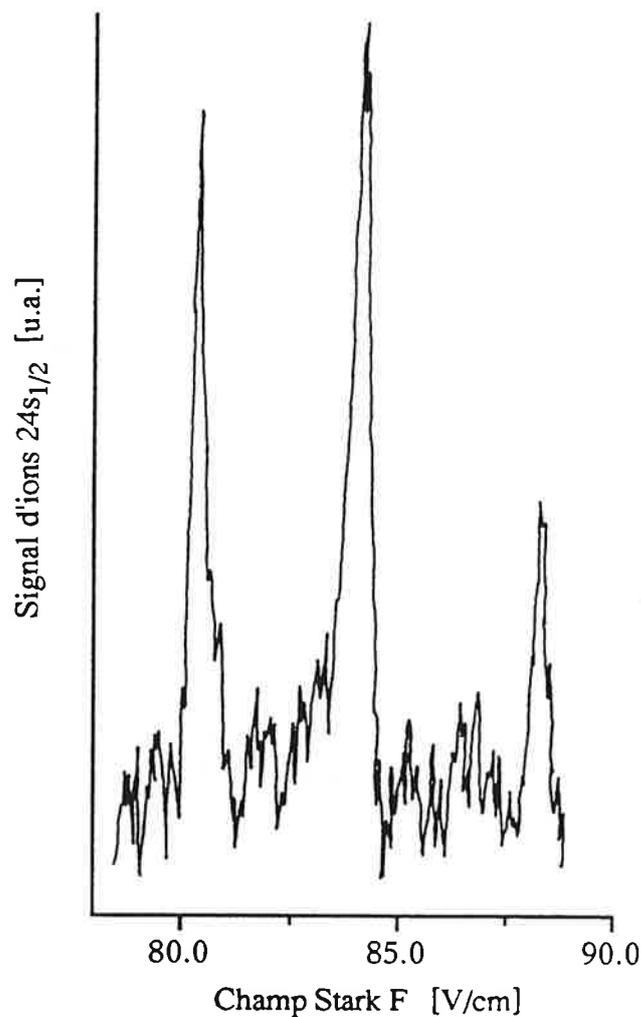
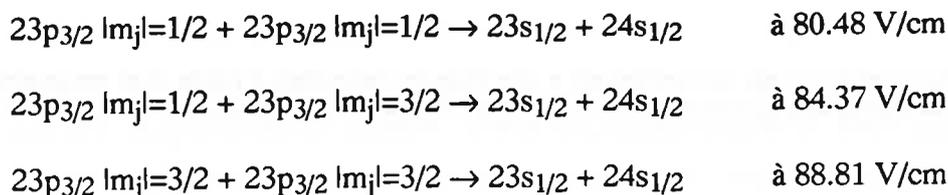


Figure III-18: Signal expérimental de collisions résonnantes. Ces signaux sont obtenus en excitant le niveau  $23p_{3/2}$  et en détectant le signal d'ions correspondant au niveau  $24s$  en fonction du champ Stark statique. Le délai entre l'excitation laser et l'analyse est de  $2 \mu\text{s}$  et la température du four de césium est de  $250^\circ\text{C}$ .

En balayant le champ électrique Stark aux alentours de  $80 \text{ V/cm}$ , on observe trois raies de résonance bien distinctes, comme on peut le voir sur la figure III-18, qui montre un signal expérimental typique pour une collision  $23p+23p \rightarrow 24s+23s$ . Celles-ci correspondent à trois collisions résonnantes différentes, ce qui est dû au fait qu'on ne se trouve pas en présence d'un seul état initial  $23p_{3/2}$ , mais de deux. Il existe en effet deux niveaux pratiquement superposés en énergie (à l'échelle de la largeur spectrale du laser) et qui sont les états  $23p_{3/2} |m_j|=1/2$  et  $23p_{3/2} |m_j|=3/2$ . On assiste donc aux collisions résonnantes suivantes:



Que ceci est bel et bien le cas est illustré par les raies de résonance de la figure III-19. Ces raies de résonance ont été enregistrées pour le cas de deux polarisations différentes du laser à colorant excitant les niveaux Rydberg. Si, en effet, la polarisation de celui-ci est parallèle au champ électrique Stark, on excite sélectivement que le niveau  $23p_{3/2} |m_j|=1/2$ , tandis que pour une polarisation orthogonale au champ Stark, on excite le niveau  $23p_{3/2} |m_j|=3/2$ . Comme la polarisation du laser à colorant n'était pas rigoureusement linéaire, on voit sur les signaux que les excitations des différents niveaux ne sont pas pures à 100%. Le grand fond en pente sur lequel sont superposés les raies de résonance est dû à la raie spectrale du laser d'excitation Rydberg et est causé par un signal de fond  $23p$  qui augmente avec la puissance laser.

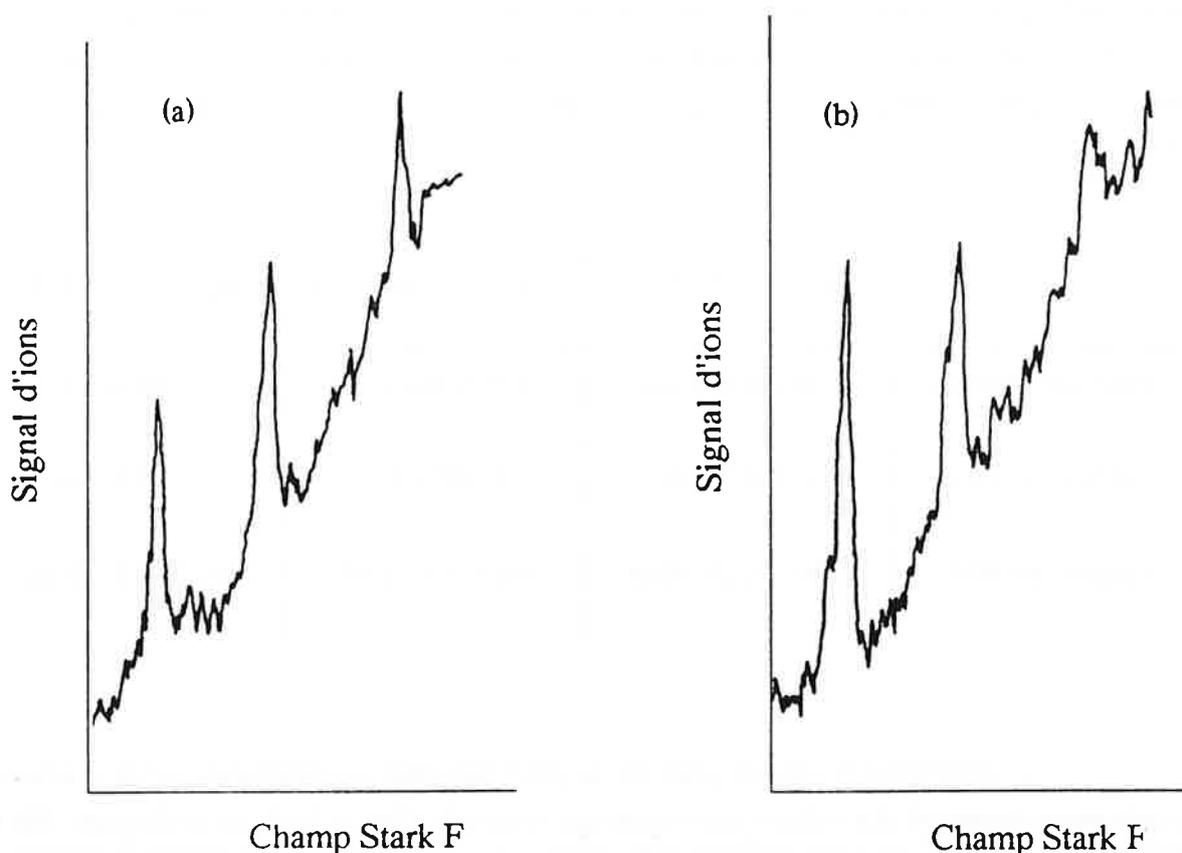


Figure III-19: Signaux de collisions résonnantes pour différentes polarisations du laser à colorant d'excitation Rydberg: (a) polarisation parallèle au champ électrique Stark, (b) polarisation orthogonale au champ électrique Stark.

Examinons maintenant les positions et les largeurs des raies de résonance trouvées expérimentalement pour les comparer à des valeurs calculées à l'aide d'un programme calculant les niveaux Stark en diagonalisant une matrice Hamiltonienne tronquée. On trouve ainsi pour les positions des collisions résonnantes ayant comme niveau initial 23p:

	$ m_j =1/2 +  m_j =1/2$	$ m_j =1/2 +  m_j =3/2$	$ m_j =3/2 +  m_j =3/2$
Position mesurée	$80.3 \pm 0.5$ V/cm	$84.1 \pm 0.5$ V/cm	$88.2 \pm 0.5$ V/cm
Position calculée	80.48 V/cm	84.37 V/cm	88.81 V/cm

On voit que les positions mesurées et calculées sont en effet en bon accord. Les valeurs pour les largeurs de raies de résonance peuvent être converties en MégaHertz en utilisant les pentes des niveaux aux alentours des résonances qui ont été calculées comme décrit ci-dessus. Les valeurs de ces pentes et des largeurs mesurées des raies de résonance sont résumées dans le tableau suivant pour le cas des collisions résonnantes impliquants le niveau 23p:

	$ m_j =1/2 +  m_j =1/2$	$ m_j =1/2 +  m_j =3/2$	$ m_j =3/2 +  m_j =3/2$
Pente des niveaux	366 MHz/V/cm	346 MHz/V/cm	331 MHz/V/cm
Largeur en V/cm	0.536 V/cm	0.550 V/cm	0.555 V/cm
Largeur en MHz	$196.1 \pm 10$ MHz	$190.4 \pm 11$ MHz	$183.7 \pm 15$ MHz

Comparons les valeurs pour les largeurs des raies de résonance qu'on a trouvées expérimentalement à des valeurs théoriques qui sont calculées à l'aide de la formule (III-6). Dans notre cas on a  $\mu_1 \cdot \mu_2 = 38705$  [u.a.] et la vitesse de collision est calculée à l'aide de la formule suivante en fonction de la température du four dont est issu le jet atomique:

$$v = \sqrt{\frac{4kT}{\pi m}} \quad [\text{u.a.}] \quad (\text{III} - 40)$$

On trouve ainsi pour des températures dans la fourchette de 240°C à 270°C, des valeurs pour les largeurs de raies qui sont entre 162 et 170 MHz. Les valeurs expérimentales correspondent à des températures qui sont de cet ordre. Une variation de la largeur de raie sur ce domaine de températures n'a pas pu être observée, car celle-ci serait beaucoup plus faible que l'erreur de mesure propre à nos expériences.

Les valeurs mesurées sont légèrement plus élevées que la valeur théorique. Une température de 250°C correspond à une vitesse de collision théorique de 186 m/s et à une largeur de résonance de 165 MHz, tandis que les largeurs trouvées sont situées autour de 190 MHz. Cette valeur correspond à une vitesse de collision de 204 m/s. Cette valeur semble en effet correcte pour la vitesse de collision compte tenu de la distribution en vitesse de notre jet atomique. Il semble donc que la différence entre les valeurs mesurées et calculées provient d'un calcul de la vitesse de collision probablement inapproprié.

Ce type de collisions résonnantes n'a malheureusement livré de résultats exploitables que pour le seul niveau initial  $23p_{3/2}$ . En augmentant le nombre quantique principal  $n$ , la séparation entre les seuils d'ionisation des niveaux initial  $np_{3/2}$  et final  $(n+1)s_{1/2}$  résultant de la collision étudiée devient pratiquement inexistante. Pour des niveaux de  $n$  plus élevés, on a donc plus été capables de détecter les produits de collisions et on obtenait des signaux complètement brouillés et noyés dans le bruit de fond qui augmentait de ce même fait. Pour espérer obtenir une meilleure séparation des signaux issus de l'ionisation par champ des différents états, il est nécessaire d'utiliser un champ d'ionisation qui présente un temps de montée beaucoup plus lent qu'actuellement. Au lieu de travailler avec un champ ayant un temps de montée de l'ordre de 100 nanosecondes, il serait souhaitable de rallonger celui-ci jusqu'à quelques microsecondes. Ceci devrait permettre d'améliorer la séparation temporelle entre les états initiaux et finaux dans le signal d'ionisation.

On peut donc espérer observer les collisions résonnantes pour des niveaux plus bas en énergie que le niveau  $23p_{3/2}$ . Ceci s'est malheureusement avéré impossible dans le cadre de nos expériences, car l'amplitude maximale disponible du champ d'ionisation n'était pas suffisante pour ioniser et donc détecter des niveaux plus profonds que le niveau  $23p_{3/2}$ . Ici aussi un changement du champ d'ionisation devrait apporter la solution à ce problème.

Les signaux de collision trouvés correspondent à des températures du four de 240°C à 270°C, ce qui correspond à des densités atomiques du jet de  $10^{10}$  à  $4 \cdot 10^{10}$  atomes  $\text{cm}^{-3}$ . En baissant la température du four on voit graduellement baisser les signaux de résonance

pour disparaître à une température de 210°C dans le bruit de fond. Les largeurs semblent être sensiblement constantes, un effet qui est probablement dû à l'erreur de mesure relativement importante sur la largeur des signaux.

### III - 6 - 2 - Collisions résonnantes dans un jet refroidi

Comme décrit dans la partie III-3-3, le processus des collisions résonnantes dépend de la vitesse de collision des atomes de Rydberg. Ainsi des expériences faites à l'Université de Virginie sur un jet atomique sélectionné en vitesse par un chopper mécanique [REN 91], ont mis en évidence des réductions de largeurs de raies de résonance d'un facteur 500 pour une réduction de la vitesse de collision de pratiquement deux ordres de grandeurs. Ces résonances présentaient des largeurs de l'ordre de 1 MHz. Ceci correspond à des temps de collision d'une microseconde ce qui est de l'ordre du temps de l'interaction [THO 90].

Après avoir obtenu les résultats présentés précédemment pour les expériences de collisions résonnantes dans un jet thermique, on peut être tenté d'essayer les mêmes expériences sur un jet ralenti. Le fait de ralentir le jet atomique implique que ce jet devient pratiquement monocinétique (voir chapitre I). La vitesse de collision devient dans ce cas de l'ordre de quelques mètres par seconde, ce qui est bien plus faible que dans le cas thermique. Ces vitesses de collisions correspondent à des températures aux alentours de 1 Kelvin, ce qui devrait livrer des largeurs de raie de résonance d'approximativement 5 MHz.

Comme on s'attend à des largeurs de raie de résonance de l'ordre du mégahertz, on voit tout de suite survenir un problème majeur, et qui réside dans l'inhomogénéité du champ Stark. Des largeurs de l'ordre du mégahertz correspondent en effet à des largeurs de raie à mesurer de l'ordre de quelques mV/cm. Pour pouvoir observer de telles largeurs extrêmement fines à des champs statiques de pratiquement 100 V/cm, ce champ statique Stark doit être homogène à  $10^{-4}$  à  $10^{-5}$  près. Dans nos expériences de spectroscopie de croisements évités, on a remarqué que le champ Stark est homogène à  $10^{-4}$  près, ce qui devrait être insuffisant pour observer les signaux issus de collisions résonnantes entre atomes de Rydberg froids dans un jet ralenti.

Un autre problème qui semble se présenter si l'on entreprend les expériences de collisions résonnantes sur le jet ralenti réside dans le fait que la densité atomique et donc aussi le signal chute dramatiquement par ce processus de ralentissement. D'une part la zone

d'interaction et de détection pour le jet ralenti se situe à environ 1300 mm de la sortie du four. S'étant donc éloigné d'un facteur 10 de la sortie du four, on perd pratiquement un facteur 100 sur la densité atomique dans le jet rien qu'en changeant de zone d'interaction. D'autre part, on perd encore un facteur 10 supplémentaire sur cette densité par le fait de ralentir le jet atomique. Ce facteur peut néanmoins être aisément compensé par la mise en route du piège magnéto-optique à deux dimensions décrit dans le premier chapitre. En effectuant une telle compression transverse du jet ralenti, on doit gagner relativement facilement un facteur 100 sur la densité d'atomes lents. Donc si tous se déroule idéalement, on perd un facteur 10 sur la densité d'atomes de Rydberg en passant des expériences faites sur le jet thermique décrites auparavant, à des expériences sur un jet ralenti et comprimé.

On a en effet pu observer des collisions résonnantes dans le jet thermique au niveau de la deuxième zone d'interaction qui se trouve à 1300 mm du four. La température du four était dans ces expériences de 270°C, ce qui nous donne une densité atomique de  $4 \cdot 10^8 \text{ cm}^{-3}$  à ce niveau, densité qui est suffisante pour observer des signaux de collisions résonnantes. En ralentissant et comprimant ce jet, on peut donc s'attendre à des densités de  $4 \cdot 10^9 \text{ atomes cm}^{-3}$ , densité qui devrait permettre d'obtenir des signaux de collisions résonnantes entre atomes de Rydberg froids avec un bon rapport signal sur bruit.

Dans toutes les expériences qu'on a réalisées sur les atomes de Rydberg dans le jet ralenti et comprimé, on n'a cependant jamais eu de signal de collision résonnante portant la signature caractéristique de la distribution en vitesse de ce jet ralenti. Les seuls signaux récoltés étaient strictement identiques à ceux obtenus sur un jet sans ralentissement. Il semble donc probable que les inhomogénéités des champs brouillent tout signal de collision froide. Il se peut cependant aussi que la densité d'atomes de Rydberg froids ne suffise pas pour observer des signaux de collisions froides.

En examinant de plus près la distribution en vitesse de notre jet ralenti, on s'aperçoit rapidement de la raison de ce phénomène (voir figure III-20). Le ralentissement décrit dans le premier chapitre de cette thèse ne produit qu'un jet relativement monocinétique que pour des températures du four de césium inférieures à 220°C. En augmentant au-delà la température du four, on n'est plus capable de garantir une monocinéticité du jet ralenti. En fait, dans la distribution en vitesse du jet ralenti, on voit apparaître à l'arrière de cette distribution, c'est-à-dire à des vitesses plus élevées, une bosse relativement large qui devient plus importante que la partie monocinétique du jet à partir de températures de 250°C. La densité d'atomes lents dans le jet ralenti pour une température du four de 270°C n'est donc pas de  $4 \cdot 10^9 \text{ atomes cm}^{-3}$ , comme mentionné plus haut, mais elle est bien plus faible. On peut dire qu'au maximum un tiers des

atomes du jet sont effectivement ralenti, le reste du jet est à peu près thermique. Donc même en comprimant la partie lente du jet ralenti, on n'arrive qu'à obtenir un jet présentant une partie monocinétique et une partie thermique, les deux parties ayant à peu près la même densité atomique, qui est celle du jet initial. Dans ce cas, les signaux de collision résonnante doivent consister d'un signal thermique auquel peut être superposé un signal très fin dû aux atomes froids. Ce signal doit néanmoins être relativement petit par rapport au signal thermique.

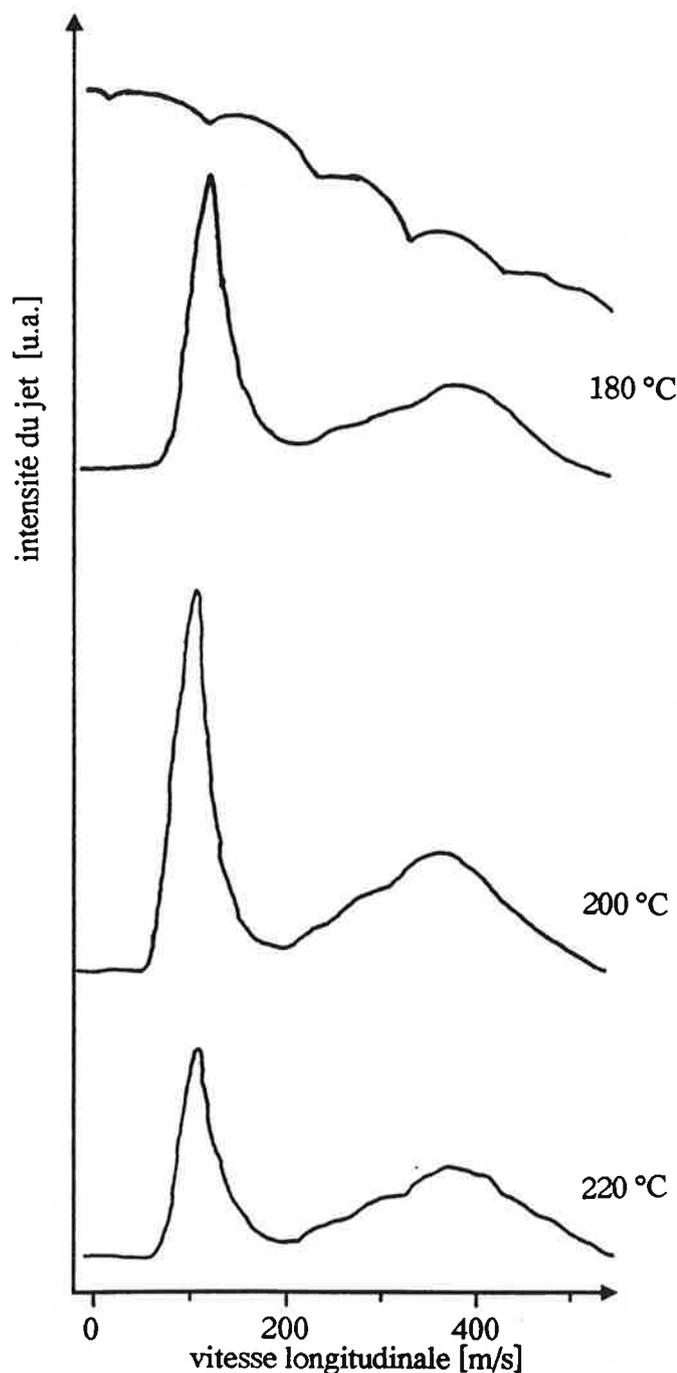


Figure III-20: Distribution en vitesse du jet ralenti en fonction de la température du four de césium.

Pré Conclusion:

Ces raisons nous ont fait abandonner momentanément les collisions résonnantes entre atomes de Rydberg dans un jet ralenti dense. Pour pouvoir observer de telles collisions, on peut penser à utiliser d'autres processus de collisions résonnantes où deux atomes de Rydberg seraient excités dans des niveaux différents. Ceci permettrait de trouver des raies de résonances à des champs Stark relativement faibles, pour lesquels les inhomogénéités de ceux-ci ne seraient pas suffisantes pour brouiller les signaux de collisions.

On a donc abandonné momentanément ce problème pour nous tourner vers une autre sorte de problème. On peut en effet se poser la question ce que deviennent ces collisions résonnantes entre états de Rydberg dans un environnement ultra-froid comme celui que l'on obtient dans un échantillon d'atomes d'un piège magnéto-optique à trois dimensions où la vitesse des atomes est de l'ordre de 1 à 10 cm/s.

## **B - Effets collectifs dans un gaz de Rydberg gelé**

La partie précédente de ce chapitre s'intéressait aux processus de collisions résonnantes entre atomes de Rydberg et à leur étude expérimentale. Ces processus sont effectivement relativement bien décrit par une théorie de collision dipôle-dipôle, et les phénomènes observés ne révèlent pas de particularités surprenantes. On a vu cependant qu'en diminuant la vitesse de collision, on arrivait à atteindre un régime où le temps de collision excède le temps d'interaction entre les atomes. Dans cette deuxième partie du troisième chapitre, je vais m'intéresser aux phénomènes qui apparaissent si on continue à baisser la vitesse de collision de telle manière à entrer dans le domaine des "collisions ultra-froides". On verra que pour ces processus, on ne peut plus réellement parler de collisions. Les atomes de Rydberg sont en effet pratiquement figés sur place pendant toute la durée de l'interaction, et interagissent avec tous les atomes avoisinants. On retrouve donc une situation un peu similaire à un solide où les atomes seraient distribués spatialement aléatoirement tout en interagissant entre eux.

Cette partie se divise en trois points distincts qui s'intéressent aux collisions résonnantes entre atomes de Rydberg froids. Une première partie fera le point sur la théorie expliquant ces processus, une théorie qui se différencie quelque peu de celle des collisions résonnantes dites normales détaillée auparavant. Je continuerai par expliquer les expériences réalisées pour étudier ce sujet, pour finir par éclairer les résultats obtenus pendant celles-ci.

### **III - 7 - Théorie des collisions résonnantes entre atomes de Rydberg froids**

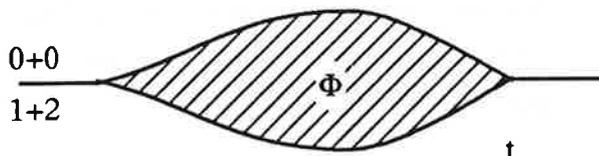
Dans la partie précédente, on a vu le comportement de la largeur de la raie de résonance pour une collision résonnante si on diminue la vitesse de collision de telle manière à ce que le temps de collision devienne comparable au temps pendant lequel on laisse interagir les atomes de Rydberg. Dans la partie théorique qui suit, j'essayerai de développer quelques

considérations pour le cas où l'on continue à diminuer la vitesse de collision entre les atomes de Rydberg, pour voir vers quel régime va tendre une collision résonnante entre deux atomes de Rydberg froids.

Je commencerai par donner quelques idées qualitatives qui peuvent aider à comprendre la transition entre les différents régimes de vitesses de collision et les différents phénomènes rencontrés. Je continuerai en donnant quelques ordres de grandeurs qui sont tout à fait intéressant pour se rendre compte de la différence de régime et les conséquences qui en découlent. Finalement, dans un dernier point, je calculerai la probabilité de transition pour le processus rencontré pour pouvoir donner la forme exacte des raies de résonance qu'on peut espérer obtenir dans une expérience de collision résonnante dans un piège magnéto-optique.

### III - 7 - 1 - Quelques considérations théoriques

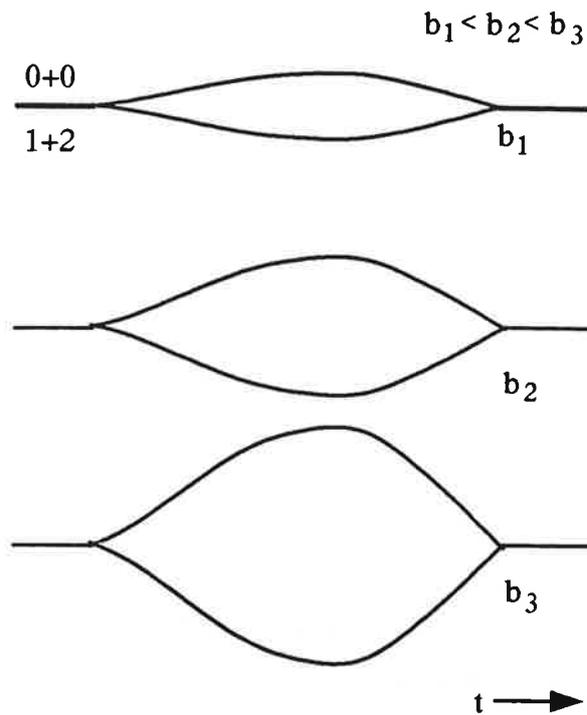
Considérons la collision résonnante dipôle-dipôle qui suit le schéma  $0+0 \rightarrow 1+2$ , comme c'est décrit par la figure III-6. A résonance exacte les niveaux d'énergie suivent plus ou moins le parcours suivant en fonction du temps d'interaction [GAL]:



Au centre de ce parcours, les fonctions propres de l'état intermédiaire sont données par des superpositions des fonctions d'onde propres de l'état initial et final de la collision  $(0,0 \pm 1,2)/\sqrt{2}$ . Ce diagramme décrit la variation des niveaux d'énergie dans le temps pour une collision résonnante se produisant à résonance exacte avec un paramètre d'impact  $b$  donné. La surface qui est entourée par ces niveaux d'énergie durant le processus de collision est donnée par le couplage entre ces deux niveaux (donc entre l'état initial et l'état final de la collision):

$$\Phi = \int \frac{\langle 0|\mu|1\rangle \langle 0|\mu|2\rangle}{r^3} dt \quad (\text{III - 41})$$

En faisant varier le paramètre d'impact  $b$  de la collision, l'allure des niveaux d'énergie impliqués dans cette collision suivent les parcours suivants:



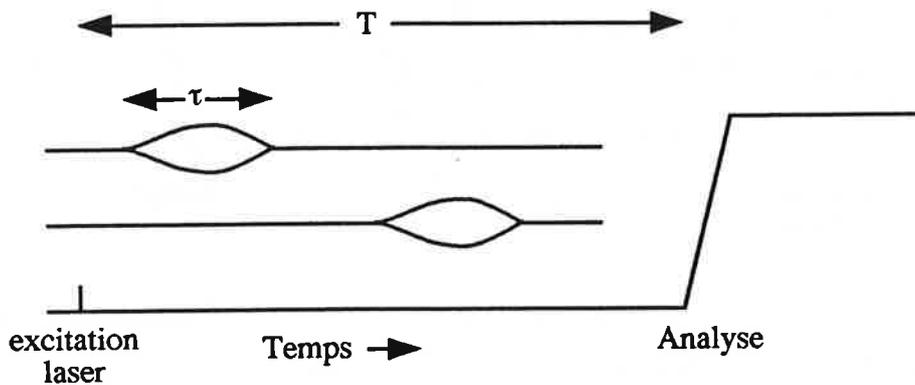
Si la probabilité de transition de l'état initial 0+0 vers l'état final 1+2 durant la collision est de 100%, on a  $\Phi=2\pi$ . Ceci nous donne approximativement pour la section efficace  $\sigma$  et le temps de collision  $\tau$  en utilisant la relation  $\tau/b=1/v$ :

$$2\pi = \frac{\mu_1 \mu_2}{b^3} \tau$$

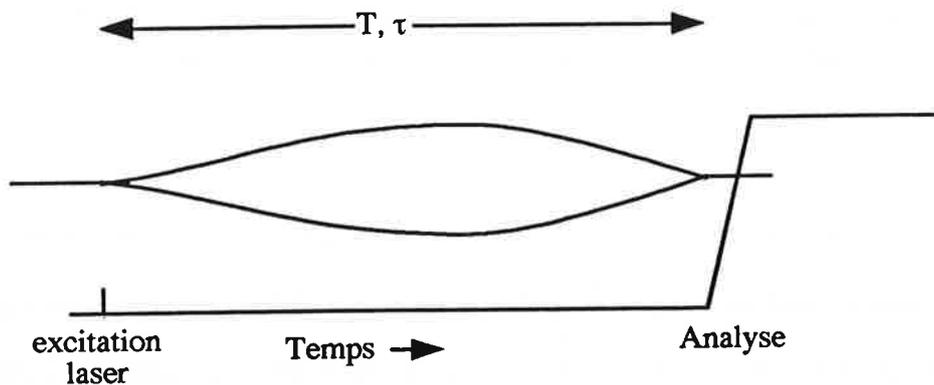
$$\Rightarrow \sigma = b^2 = \frac{\mu_1 \mu_2}{v} \quad \text{et} \quad \tau = \sqrt{\frac{\mu_1 \mu_2}{v^3}} \quad (\text{III - 42})$$

On peut maintenant essayer d'esquisser le parcours des niveaux d'énergie pour des expériences de collisions résonnantes Rydberg-Rydberg. Dans une expérience typique de collision on excite les atomes dans un état Rydberg, on laisse les atomes évoluer et faire des collisions pendant un temps  $T$  avant de détecter les produits de collisions éventuelles.

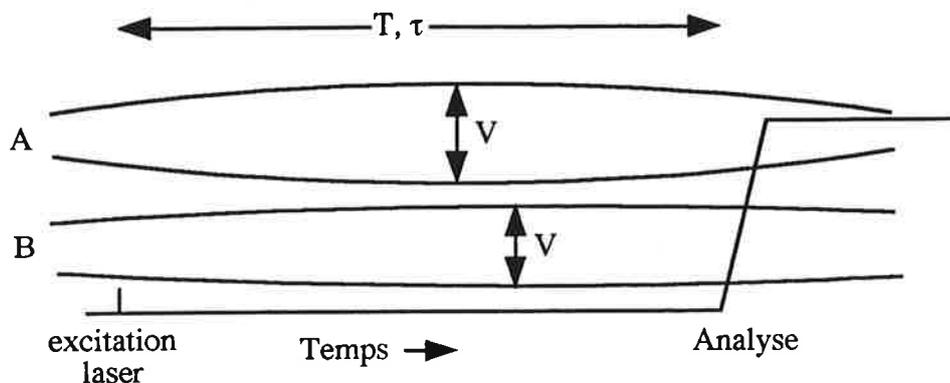
Tant que le temps d'interaction  $T$  est plus grand que le temps de collision,  $T > \tau$ , le processus est correctement décrit en tant que collision. Le cas d'une telle expérience typique où on assiste à plusieurs collisions entre l'excitation et l'analyse est indiqué sur le schéma suivant:



Que se passe-t-il dans une expérience où le temps de collision devient de l'ordre ou plus long que le temps d'interaction, c'est à dire:  $\tau \approx T$  ou  $\tau > T$ ? Le cas où les deux temps sont du même ordre est le cas des collisions limitées par transformée qui a été décrit dans le paragraphe précédent. Cette expérience a été réalisée avec des atomes ayant une température de 1 Kelvin dans un jet atomique sélectionné en vitesse [THO 90]. Cette situation est décrite ainsi:



Si les atomes possèdent une vitesse dix fois plus faible que dans le cas précédent, ce qui correspond à une température de 10 milliKelvin, la situation est décrite par le schéma suivant pour le cas de deux paires d'atomes A et B.



On voit bien que pour les deux collisions différentes l'espacement des niveaux  $V$  est pratiquement constant pendant le temps qu'on laisse aux atomes de Rydberg pour interagir. Pendant le processus de collision les atomes ne bougent pratiquement pas, vu leur température très basse, et l'interaction  $V$  est donnée par l'expression:

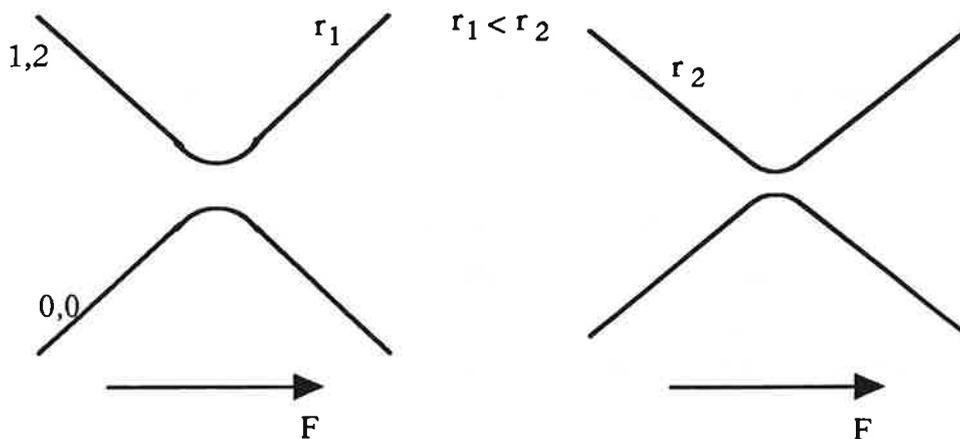
$$V = \frac{\mu_1 \mu_2}{r_{A,B}^3} \quad (\text{III - 43})$$

L'interaction  $V$  dépend donc de la distance interatomique entre les partenaires de collisions, qui elle est pratiquement constante dans le temps et qui peut être différente pour deux paires d'atomes différentes A et B. La valeur moyenne de  $V$  devient donc proportionnelle à la densité des atomes de Rydberg.

Considérons à nouveau une collision résonante  $0+0 \rightarrow 1+2$ . Pour une telle collision, les états propres sont donnés par  $\frac{0,0 \pm 1,2}{\sqrt{2}}$  qui évoluent à différents taux pendant le temps  $T$ . Si l'état initial  $0,0$  est excité, cela revient à dire que la superposition cohérente  $\frac{0,0 + 1,2}{\sqrt{2}} + \frac{0,0 - 1,2}{\sqrt{2}}$  est excitée et celle-ci va créer des battements avec le temps (voir figure III-22). Malheureusement différentes paires d'atomes vont battre à des fréquences différentes, ce qui va probablement rendre impossible la détection de ces battements, sauf peut-être après de très courts délais. Si bien sûr on ne s'intéresse qu'à l'état final 2 (ou 1), on le verra toujours apparaître en passant le champ électrique à résonance exacte.

### III - 7 - 2 - Collision résonnante vue comme un croisement évité.

En regardant le schéma montrant la variation des niveaux d'énergie dans une collision résonnante à résonance exacte, on voit clairement que les états propres du système sont les superpositions  $\frac{0,0 \pm 1,2}{\sqrt{2}}$ , tandis que si l'on ne satisfait plus la condition de résonance, les états propres sont 0,0 et 1,2. On peut donc en fait considérer une expérience de collisions résonnantes en tant qu'expérience de croisement évité. Ainsi pour deux séparations internucléaires  $r_1$  et  $r_2$  différentes on trouve des croisements évités en fonction du champ électrique qui ont l'allure suivante:



Si l'on suppose qu'on excite l'état 0,0 dans une expérience, on a deux possibilités pour poursuivre cette expérience et observer des signaux provenant de collisions résonnantes.

Premièrement, on peut exciter l'état initial à une valeur de champ électrique inférieure à celle de la résonance et appliquer une rampe de champ électrique pour balayer à travers la résonance. On verra donc un transfert si le croisement évité est traversé adiabatiquement. Cette probabilité de transfert adiabatique augmente en effet si la séparation internucléaire diminue et le couplage augmente. Pour de grandes distances internucléaires, on peut donc assister à des transferts diabatiques dans ces croisements évités, ou en d'autres mots assister à des processus de collisions qui sont inefficaces (voir figure III-21).

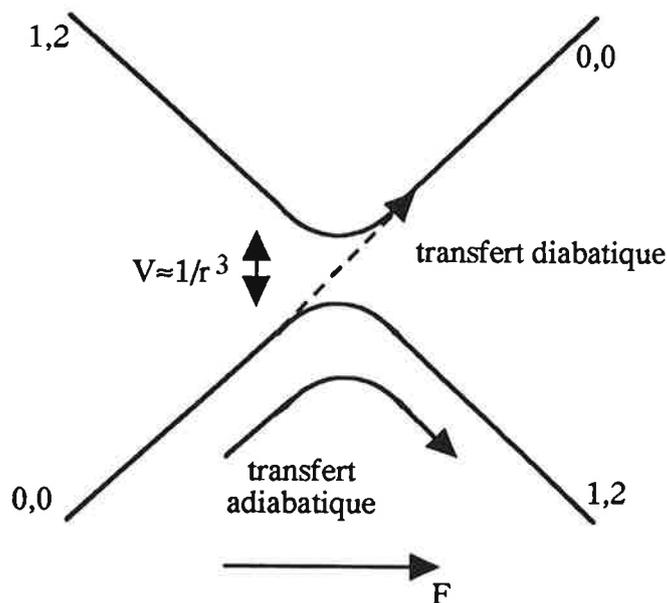


Figure III-21: Principe d'une collision résonnante vue en tant qu'un croisement évité.

Deuxièmement, on peut essayer de détecter les états 1,2 après avoir excité 0,0 à résonance exacte et en gardant le champ électrique fixe sur la résonance. Le signal que l'on va pouvoir détecter dépend du moment auquel on détecte. En regardant l'évolution des états montrée sur la figure III-22, on peut en gros s'attendre à deux types de signaux.

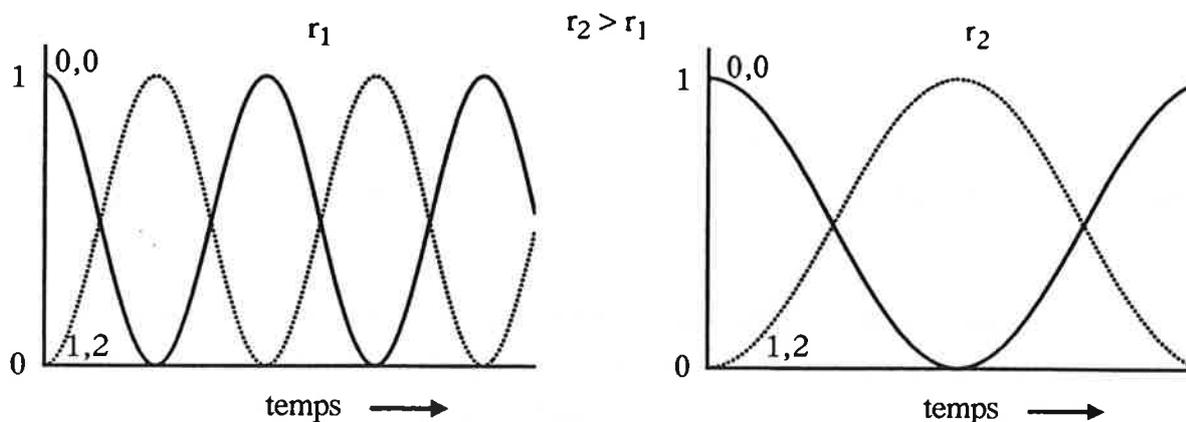


Figure III-22: Battements des niveaux d'un croisement évité correspondant à une collision résonnante excitée à résonance exacte en fonction de la distance internucléaire.

Si on attend un temps suffisamment long, on doit pouvoir observer 50% de 0,0 et 50% de 1,2. Ceci n'est bien sûr que le cas si la résonance de collision se produit toujours au même champ électrique et ceci pour toutes les valeurs de la distance internucléaire  $r$ . Ce fait n'est probablement pas réalisé.

Si on fait l'analyse après des temps relativement courts, on doit pouvoir observer la décroissance initiale de 0,0 ou l'augmentation de 1,2 donnant directement les valeurs des séparations internucléaires les plus faibles.

Remarque:

Si les états ont des moments dipolaires permanents qui vont déplacer les niveaux d'énergie, les résonances correspondantes à des petites et des grandes valeurs de la distance internucléaire ne vont plus se produire pour une même valeur du champ électrique, mais elles seront déplacées les unes par rapport aux autres.

Mettons nous, par exemple, dans le cas d'une expérience du type où on essaye de détecter les états 1,2 après avoir excité 0,0 à résonance de la collision et attendu un temps long. On s'attend donc à voir le signal montré sur la figure III-23 pour des atomes se trouvant à la distance  $r$ .

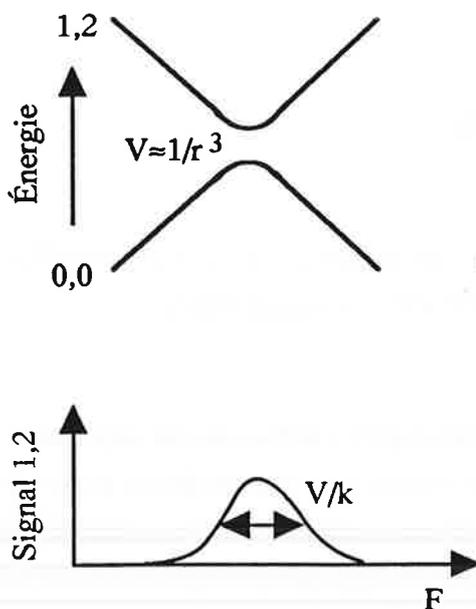


Figure III-23: Signal attendu dans une expérience de collisions résonnantes.

Dans la figure III-23,  $k$  représente la différence des déplacements Stark de 0,0 et 1,2. La largeur du signal de croisement évité (ou de la collision résonante) est proportionnelle à l'interaction  $V$  et donc directement à la densité Rydberg  $d$ :

$$\text{Largeur} \approx V \approx \frac{1}{r^3} \equiv d$$

### III - 7 - 3 - Quelques ordres de grandeurs

Dans cette partie, pour illustrer les différences entre les régimes des collisions résonnantes entre atomes de Rydberg froids ou non, je donnerai quelques estimations et ordres de grandeurs pour certains paramètres caractéristiques de ces collisions.

La vitesse de collision entre deux atomes dans un échantillon à la température  $T$  est donnée par la formule suivante en unités atomiques:

$$v = \sqrt{\frac{8 k T}{\pi \mu}} \quad (\text{III - 44})$$

où  $m$  est la masse réduite des partenaires de collision. Pour deux atomes identiques on a donc:

$$v = \sqrt{\frac{4 k T}{\pi m}} \quad (\text{III - 45})$$

Pour le cas de l'atome de césium on a:  $m = 2.22 \cdot 10^{-22} \text{g}$ , et la vitesse de collision est donc donnée par:  $v = 8.1 \cdot 10^2 \sqrt{T}$   $v[\text{cm/s}]$ ,  $T[\text{K}]$ .

On a donc pour les trois régimes différents correspondant au cas d'un jet thermique, d'un jet ralenti ou sélectionné en vitesse et d'atomes froids dans un piège magnéto-optique à trois dimensions ( $10^{-3}$  à  $10^{-4}$  K):

T	vitesse de collision
500 K	$1.3 \cdot 10^4$ cm/s
1 K	$8.1 \cdot 10^2$ cm/s
$10^{-3}$ K	26 cm/s
100 $\mu$ K	8.2 cm/s

Pour le cas d'atomes de Rydberg de césium dans un niveau avec  $n=25$ , on trouve pour la section efficace d'une collision résonnante, qui est donnée par la formule:

$$\sigma = \frac{\mu_1 \mu_2}{v} = \frac{n^4}{v} \quad [\text{u.a.}]$$

T	section efficace $\sigma$
500 K	$1.8 \cdot 10^9$ Å <sup>2</sup>
1 K	$3 \cdot 10^{10}$ Å <sup>2</sup>
$10^{-3}$ K	$9.2 \cdot 10^{11}$ Å <sup>2</sup>
100 $\mu$ K	$3 \cdot 10^{12}$ Å <sup>2</sup>

Si on laisse aux atomes de Rydberg un temps d'interaction de, par exemple, 3  $\mu$ s avant d'analyser les produits de collision, on peut supposer qu'un taux de collision de l'ordre de  $\Gamma=3 \cdot 10^4 \text{s}^{-1}$  est suffisant pour être observable expérimentalement [GAL]. En utilisant la relation  $\Gamma=d\sigma v$ , on arrive à calculer la densité d'atomes de Rydberg qui est nécessaire pour un tel taux de collision:

$$d = \frac{\Gamma}{\sigma v} \quad (\text{III} - 46)$$

Pour une température de 500 K (jet thermique), on obtient pour cette densité la valeur de  $d=1.3 \cdot 10^7 \text{cm}^{-3}$ . Comme la section efficace est proportionnelle à l'inverse de la vitesse de collision, on obtient la même valeur pour la densité nécessaire, quelle que soit la vitesse de collision ou la température.

Cependant dans ce raisonnement on a négligé un paramètre qui va induire une différence notable entre ces différents régimes de vitesse de collision. Dans le raisonnement précédent, on a supposé qu'on se trouve toujours au maximum de la section efficace, et que les

collisions résonnantes prennent une certaine durée donnée par  $\tau = n^2/v^{3/2}$ . Calculons ce temps de collision pour les différents régimes de vitesse:

$$\tau = \frac{n^2}{v^{3/2}} \quad [\text{a.u.}] = 7.8 \cdot 10^{-5} \frac{n^2}{v^{3/2}} \quad [v \text{ en cm/s}], [\tau \text{ en s}] \quad (\text{III} - 47)$$

On a donc pour l'atome de césium avec  $n=25$ :

T	temps de collision $\tau$
500 K	0.2 $\mu\text{s}$
1 K	2.1 $\mu\text{s}$
$10^{-3}$ K	367 $\mu\text{s}$
100 $\mu\text{K}$	2 ms

On voit bien que pour le cas d'atomes de Rydberg froids (1mK) le temps de collision excède de quelques ordres de grandeurs le temps d'interaction qui est typiquement de 3  $\mu\text{s}$ . La collision résonnante devient donc dans ce cas une collision où les partenaires sont immobiles. On ne peut donc plus décrire le processus en tant que collision classique où les atomes se rencontrent avec une certaine section efficace et voient donc une interaction qui change durant la collision pour passer par un maximum quand ils se trouvent éloignés du paramètre d'impact  $b$ , pour rediminuer plus tard. Comme ce processus se déroule à une distance internucléaire constante pour des atomes de Rydberg froids, ceux-ci subissent pendant tout le temps d'interaction une interaction constante, qui ne dépend que de la distance séparant les partenaires de collision, donc de la densité de ceux-ci.

Normalement les éléments de matrice d'interaction  $V$  sont reliés à l'inverse du temps de collision par la relation:  $V \cdot \tau = 1$ .

Ceci n'est plus tout à fait le cas pour une collision froide où le temps d'interaction est plus court que le temps de collision, sauf si la distance internucléaire a la valeur de  $r = \sqrt{\sigma}$ . Les deux atomes se trouvent tout au long d'une telle collision exactement séparés du paramètre d'impact  $b$ . On peut ainsi en dériver la valeur de l'élément de matrice d'interaction dipolaire en fonction de la densité d'atomes de Rydberg froids.

Pour un échantillon d'atomes de Rydberg à la température d'un Kelvin, le temps d'interaction est à peu près identique au temps de collision et la largeur des résonances [GAL ], c'est à dire l'élément de matrice  $V$  est de l'ordre de:  $V \approx 1$  MHz.

Cette valeur nous donne:  $r = \sqrt{\sigma} = 1.73 \cdot 10^{-3}$  cm. Pour des températures plus basses, la valeur de  $V$  ne dépend plus que de la densité  $d$  (ou de la distance  $r$ ) et on obtient pour le cas d'un piège magnéto-optique ( $T = 1$  mK):

densité $d = 1/r^3$	élément de matrice $V$
$2 \cdot 10^8 \text{ cm}^{-3}$	1 MHz
$2 \cdot 10^9 \text{ cm}^{-3}$	10 MHz
$2 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-3}$	1 GHz

On voit que pour pouvoir observer des résonances de collisions avec des largeurs de l'ordre de 100 MHz il faut avoir une densité d'atomes de Rydberg de l'ordre de  $2 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-3}$ , une densité bien plus importante que dans le cas d'un jet thermique où on peut s'attendre au même type de résonances.

### III - 8 - Principe de l'expérience

Le principe des expériences de collisions résonnantes entre atomes de Rydberg se trouvant dans un piège magnéto-optique est tout à fait similaire à celui décrit dans la partie précédente. On excite une partie des atomes d'un piège magnéto-optique à trois dimensions en des états Rydberg à l'aide d'un laser à colorant. Ces atomes de Rydberg froids sont laissés interagir pendant un délai  $\delta t$  qui est typiquement de 1 à 10  $\mu\text{s}$ . Ce délai passé, on ionise les atomes de Rydberg à l'aide d'un champ électrique d'ionisation pulsé. Dans le signal d'ions récolté par des galettes micro-canaux on tente d'isoler les signaux correspondant aux produits des collisions.

Ces signaux sont intégrés à l'aide d'un "boxcar" et enregistrés tout en balayant le champ statique Stark à travers la résonance des collisions.

## III - 9 - Montage expérimental

Pour les expériences de collisions résonnantes sur des atomes de Rydberg ultra-froids, le dispositif peut être divisé en deux grandes parties. La première partie consiste dans le montage expérimental permettant le fonctionnement du piège magnéto-optique qui constitue la source d'atomes. La deuxième partie inclue les lasers d'excitation Rydberg, la détection et le dispositif de traitement des signaux. Cette deuxième partie est pratiquement identique au montage utilisé précédemment sur le jet atomique et qui est donc décrit plus haut. Je serai donc relativement bref dans la description de cette partie, tandis que je débiterai par résumer les caractéristiques du piège magnéto-optique à trois dimensions.

### III - 9 - 1 - Le piège magnéto-optique 3D

Le piège magnéto-optique utilisé pour ces expériences de collisions a été mis en place dans le but d'étudier des phénomènes de photoassociation pour le césium et de faire la spectroscopie, en utilisant ce processus, du dimère de césium. Ces expériences auxquelles j'ai eu l'occasion de participer font le sujet d'une autre thèse [BLE], thèse où le dispositif expérimental est exposé dans tous ses détails. Je me contenterai donc ici de ne donner que les grandes lignes de ce dispositif et d'énumérer ses caractéristiques.

#### 1 - a - Montage du piège magnéto-optique à trois dimensions

L'enceinte à vide est constituée d'une pièce en inox possédant huit hublots servants au passage de faisceaux lasers et à l'observation du piège lui-même. Cette enceinte est pompée par deux pompes ioniques jusqu'à un vide d'environ  $10^{-9}$  mbar. En ouvrant une vanne, on peut faire communiquer cette enceinte avec un réservoir où se trouve un gramme de césium, et on obtient ainsi une cellule de césium.

Le piège magnéto-optique est obtenu à l'aide de six faisceaux laser qui se contrepropagent selon trois directions orthogonales. Ces faisceaux de refroidissement sont issus d'une diode de puissance SDL5412 qui est injectée par une diode laser maître en fonctionnement en cavité étendue et asservie sur la transition  $6S_{1/2} F=4 \rightarrow 6P_{3/2} F'=4$  atomique du césium. A l'aide d'un cristal acousto-optique situé après la diode laser esclave, on peut modifier la fréquence de ce système de refroidissement. En mode de fonctionnement

normal, on utilise une fréquence laser qui est décalée de  $2\Gamma$  (10 MHz) vers le rouge de la transition fermée  $F=4 \rightarrow F'=5$ . Ce laser de refroidissement a une puissance d'environ  $2 \text{ mW/cm}^2$  par faisceau, et ceci sur des faisceaux de 8 mm de diamètre. Pour conserver les atomes dans le sous-niveau fondamental  $F=4$  et garantir un bon refroidissement, il est nécessaire d'utiliser un laser de repompage. Pour cela on utilise une diode SDL5712 DBR, de  $2 \text{ mW/cm}^2$  de puissance utile par faisceau, de largeur spectrale de moins de 3 MHz et asservie sur la transition  $F=3 \rightarrow F'=4$ . Les faisceaux repompeurs sont superposés aux faisceaux de refroidissement par des cubes mélangeurs.

Pour obtenir un piège magnéto-optique, il faut utiliser toute une partie de champs magnétiques. Pour compenser le champ magnétique terrestre, on utilise trois bobines parcourues par un courant électrique en position Helmholtz. Une bonne compensation du champ magnétique terrestre est très importante pour obtenir la formation d'un piège magnéto-optique à l'endroit où le gradient de champ magnétique s'annule. Ce gradient de champ magnétique servant directement au piégeage des atomes est créé à l'aide de deux bobines Helmholtz parcourues à contresens par un courant électrique, ce qui nous donne un champ quadripolaire. Pour une valeur du courant d'environ 4 Ampères, on obtient ainsi au centre de l'enceinte à vide un gradient de champ magnétique de 18 Gauss/cm.

Le piège magnéto-optique peut être observé par une caméra CCD enregistrant la fluorescence induite par les faisceaux lasers du piège. Ces images peuvent être stockées et traitées sur un micro-ordinateur relié à cette caméra. En temps normal, l'image de la caméra CCD sert simplement de moyen de contrôle pour le fonctionnement correct du piège magnéto-optique.

### **1 - b - Caractéristiques du piège magnéto-optique**

Dans les conditions de fonctionnement normales du piège magnéto-optique, on utilise les paramètres suivants. Le laser de refroidissement est décalé de  $2\Gamma$  (10 MHz) vers le rouge de la transition  $F=4 \rightarrow F'=5$ , a une puissance d'environ  $2 \text{ mW/cm}^2$  par faisceau, et ceci sur des faisceaux de 8 mm de diamètre. Le gradient de champ magnétique est maintenu à une valeur de 18 Gauss/cm.

Dans ces conditions de fonctionnement, on obtient un piège d'une taille d'environ  $500 \mu\text{m}$  de diamètre et d'une densité atomique d'à peu près  $10^{11} \text{ atomes cm}^{-3}$ . Ceci nous donne

donc un piège contenant à peu près  $10^7$  à  $10^8$  atomes. La température des atomes piégés est inférieure à 1 mK.

### **III - 9 - 2 - Le dispositif Rydberg**

#### **2 - a - Les lasers d'excitation**

L'excitation Rydberg des atomes piégés se fait à nouveau par un laser à colorant pulsé. Pour ces expériences, on a le choix entre deux schémas d'excitation possible, vu qu'on a à notre disposition deux lasers à colorants séparés.

Un premier laser à colorant permet d'exciter les atomes du piège, excités sur le niveau  $6P_{3/2}$  par les lasers du piège, dans des états Rydberg par un photon de deuxième étage. Ce laser utilisant de la Coumarin 500 dissout dans du méthanol émet à des longueurs d'onde autour de 515 nm, possède une largeur spectrale d'environ 3 GHz et une puissance maximale de 4 mJ.

Un deuxième laser à colorant, pratiquement identique au premier, nous permet d'atteindre des niveaux Rydberg à l'aide de transitions à deux photons rouges, ou à l'aide d'une transition à un photon UV obtenu en doublant la fréquence laser par un cristal doubleur KDP. Ce laser utilise comme colorant du DCM dissout dans du méthanol et émet aux environs de 640 nm. Il possède également une largeur spectrale de 3 GHz et peut livrer une puissance maximale de 1 mJ.

Ces deux lasers à colorant fonctionnent tous les deux à un taux de répétition de dix Hertz, car ils sont pompés optiquement par le même laser Nd:YAG. Le premier est pompé à l'aide de la fréquence triplée (355 nm) de celui-ci, tandis que le deuxième nécessite la fréquence doublée (532 nm) du laser pompe.

#### **2 - b - Détection et traitement des signaux**

La zone du piège est entourée par deux grilles métalliques parallèles situées à 1.5 cm l'une de l'autre. Sur celles-ci on applique les champs électriques qui sont nécessaires aux

expériences de collisions résonnantes. Ces champs sont d'une part le champ électrique statique Stark, qui sert à déplacer les niveaux Rydberg de telle façon à satisfaire la condition de résonance pour les collisions, et d'autre part le champ d'ionisation pulsé, qui sert à ioniser et détecter sélectivement les différents niveaux Rydberg. Ces deux champs ont été présentés dans la partie II-4-3-a du chapitre précédent.

Les ions ou électrons produits par le champ d'ionisation sont envoyés par celui-ci à travers l'une des grilles sur un détecteur qui est constitué de deux galettes micro-canaux en série. Le temps de vol séparant la grille du détecteur est de 15 cm de longueur. Le signal d'ions en résultant est envoyé sur un oscilloscope pour l'observation et dans un "boxcar averager" pour le traitement. Comme dans les expériences précédentes, le signal se trouvant dans une porte électronique est intégré, et tracé en fonction du champ Stark sur une table traçante.

### III - 10 - Résultats expérimentaux

Comme les expériences de collisions dans le piège magnéto-optique viennent de débiter que très récemment, les résultats présentés dans cette partie ne sont que préliminaires et fort incomplets. Des études plus poussées et plus systématiques sont en cours à ce moment précis.

Les collisions étudiés dans le piège sont des collisions résonnantes du type:  $np+np \rightarrow (n+1)s+ns$ . On excite les atomes du piège dans le niveau Rydberg  $23p_{3/2}$  et on essaye de détecter les produits de collisions dans les signaux d'ionisation par champ. En mettant une valeur du champ d'ionisation tout juste suffisante pour ioniser le niveau  $24s_{1/2}$  sans ioniser les niveaux initiaux  $23p_{3/2}$ , on observe des signaux d'ionisation par champ tels qu'ils sont montrés sur la figure III-24. Sur ces signaux, on observe un signal relativement fin qui correspond à un signal d'ions produits par photoionisation par le laser à colorant. Ce signal est le seul observé si le champ Stark se trouve éloigné de la valeur de résonance. Si l'on se rapproche de la condition de résonance, on voit apparaître un signal d'ions décalé dans le temps par rapport à ce signal de photoionisation, il s'agit du signal correspondant au niveau  $24s_{1/2}$ .

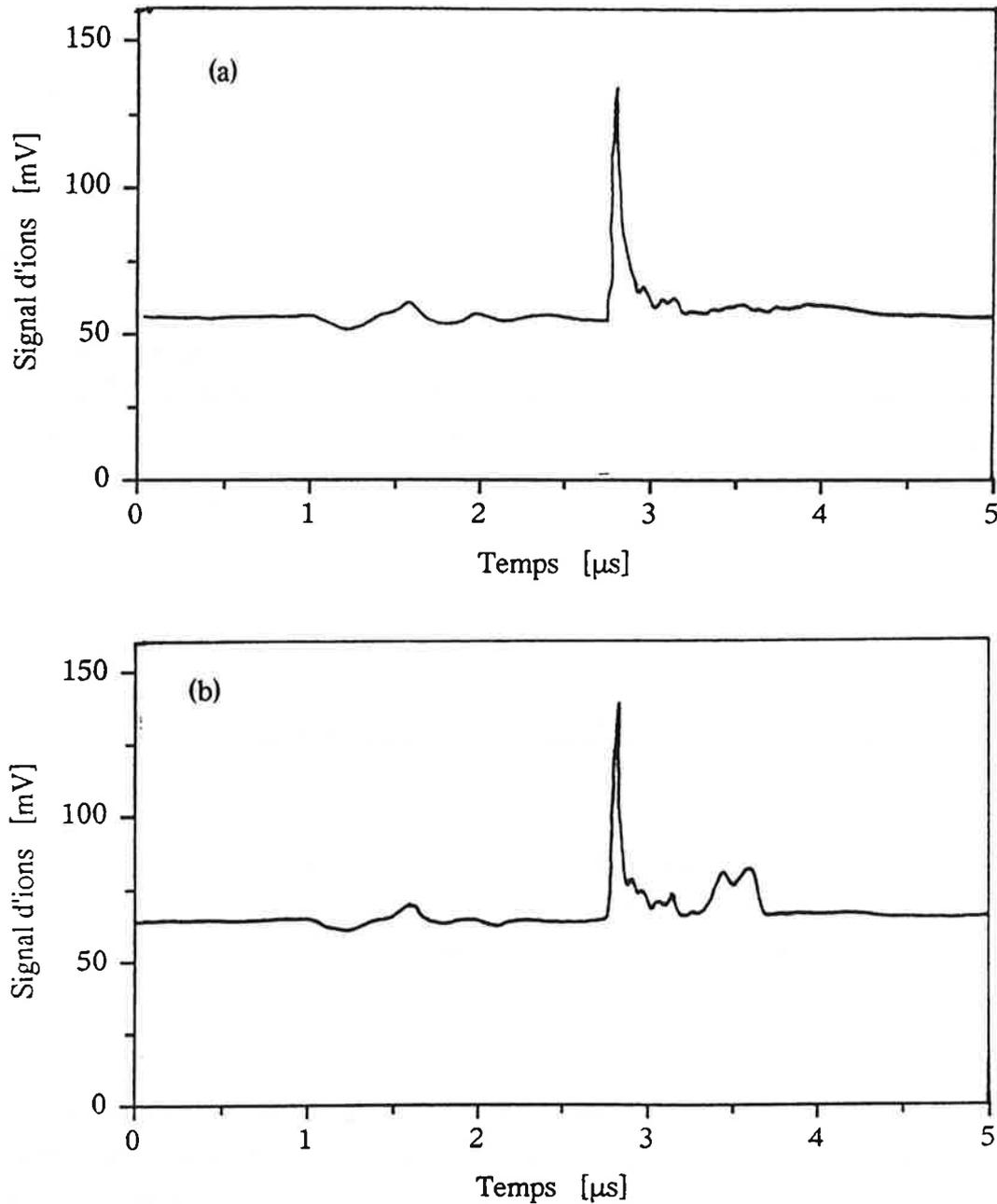


Figure III-24: Signaux d'ions récoltés après excitation des niveaux  $23p_{3/2}$  dans le piège magnéto-optique 3D, avec le champ Stark respectivement: (a) hors résonance, (b) à résonance. Le pic fin visible dans les deux signaux de collision est provoqué par des états photoionisés par le laser d'excitation Rydberg. Le pic plus large et plus petit à l'arrière du signal (b) correspond à l'état final  $24s_{1/2}$  d'une collision résonnante.

En faisant varier le champ statique Stark, et en enregistrant le signal d'ionisation par champ correspondant à l'état  $24s_{1/2}$ , on observe des raies de résonance. En gros on peut distinguer les trois mêmes raies de résonance que dans les expériences sur jet thermique. Ces

raies de résonance sont situés aux mêmes valeurs de champ électrique, mais présentent une structure bien plus complexe que le cas thermique. Les raies de résonance ne possèdent plus toujours des formes de raies selon des courbes Lorentziennes, mais selon les conditions expérimentales, on peut observer des raies présentant une double structure ou alors même des structures bien plus multiples (voir figure III-25). Ces pics secondaires présentent normalement des largeurs de l'ordre d'une vingtaine de mégahertz, tandis que les pics principaux sont plus larges, et peuvent avoir des largeurs allant jusqu'à une centaine de mégahertz.

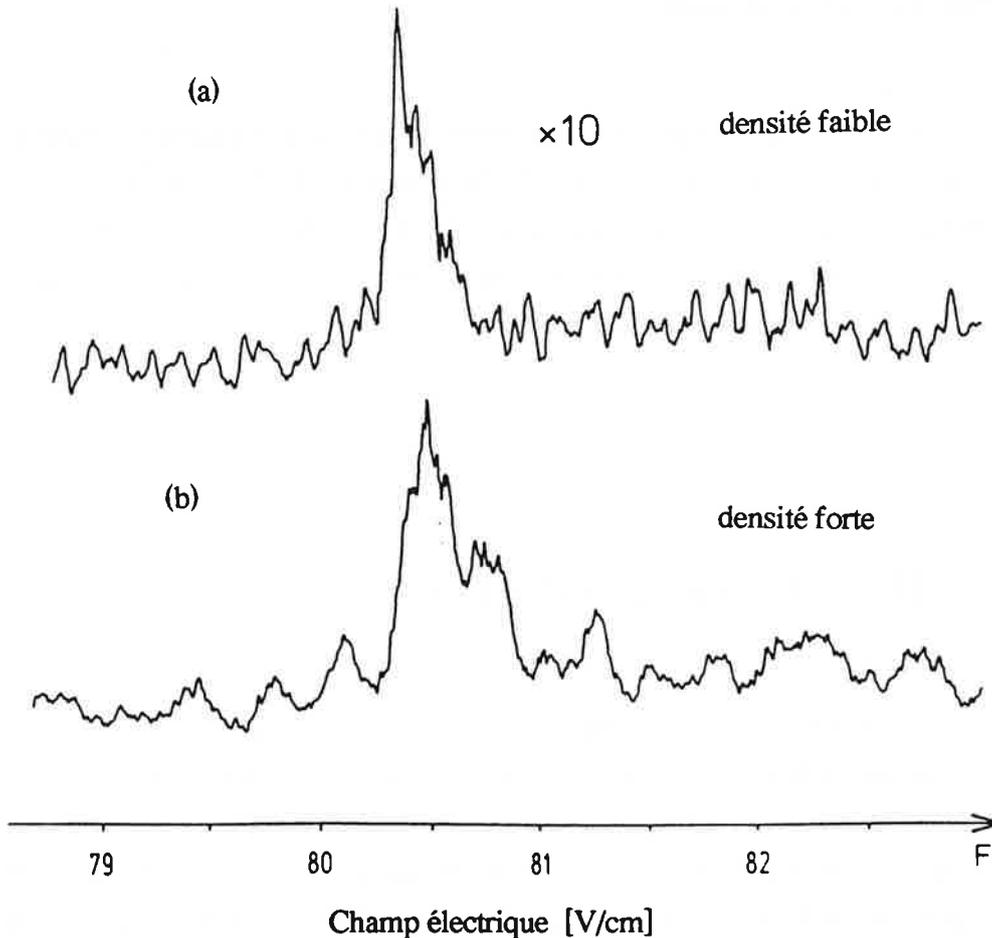


Figure III-25: Raies de résonance obtenues à partir de l'excitation du niveau  $23p_{3/2}$  et en détectant la population du niveau  $24s_{1/2}$  en fonction de la valeur du champ électrique Stark pour le cas d'atomes de Rydberg dans un piège magnéto-optique à trois dimensions.

Dans nos expériences, on essaye d'observer ces phénomènes propres aux collisions entre atomes froids, en variant l'intensité du laser d'excitation laser pour varier la densité de ceux-ci. On peut ainsi observer qu'en baissant l'intensité laser, les raies de résonances deviennent plus fines et les structures autour de celles-ci disparaissent. Il est cependant relativement difficile de faire des mesures quantitatives, car les fluctuations de l'intensité laser brouillent, par le même effet de variation de densité, les structures des raies de résonance. Ces raies risquent d'autre part d'être partiellement brouillées par l'influence des fluctuations du

piège magnéto-optique.

Une expérience intéressante qui n'a pas encore été réalisée, consiste à faire varier le délai  $\delta t$  entre l'excitation laser et l'analyse des produits de collision, et d'examiner les différentes structures des raies de résonance qui apparaissent. Comme on le verra dans la partie théorique qui suit, des petites variations de  $\delta t$  peuvent induire des changements spectaculaires sur la forme des raies de résonance.

Les résultats présentés dans cette partie sont issus d'expériences préliminaires. Pour l'instant, on n'a pas encore pu en tirer de résultats quantitatifs. Les résultats récoltés peuvent être interprétés à l'aide de considérations relativement comme on le verra dans le paragraphe suivant. Les études systématiques de tout les phénomènes d'interaction entre atomes froids de Rydberg feront le sujet d'une autre thèse [MOU 97].

## III - 11 - Interprétation

On vient de voir que la situation des collisions résonnantes entre deux atomes de Rydberg quasi-immobiles était très différente de celle où le processus est décrit par une collision classique avec une section efficace, un paramètre d'impact et une vitesse de collision. Dans cette partie je vais calculer la probabilité de transition et donner la forme de raie à laquelle on peut s'attendre pour une collision résonnante pendant laquelle le temps d'interaction est plus petit que le temps de collision, pour pouvoir interpréter nos résultats expérimentaux.

### III - 11 - 1 - Potentiel d'interaction

Reprenons pour cela le formalisme de la théorie à deux états et donc comme point de départ le système d'équations différentielles (III-16) du paragraphe III-2-2. Dans notre cas, on peut décrire la collision comme processus où deux atomes interagissent pendant un temps donné  $\delta t$  ( $< \tau$ ) et ceci par le biais d'une interaction  $V$  constante dans le temps, puisque la distance entre les atomes  $r$  est constante. Au fait, si on regarde un atome de Rydberg bien précis, on voit que celui-ci ne réagit plus nécessairement qu'avec un seul atome, mais il voit plutôt un potentiel créé par l'ensemble des autres atomes de Rydberg, qui sont pratiquement

immobiles. On se trouve donc dans une situation où les atomes sont localisés dans une sorte de réseau ou de cristal désordonné. Le potentiel moyen vu par un atome est donné par l'expression suivante que l'on trouve en faisant l'approximation du champ moyen, qui consiste à prendre un potentiel moyen et sommer sur tous les atomes présents dans l'interaction:

$$V = \frac{\mu_1 \mu_2}{r^3} = \frac{\chi}{r^3} = \frac{1}{2} \chi N \left\langle \frac{1}{r^3} \right\rangle \quad (\text{III - 48})$$

avec: 
$$\left\langle \frac{1}{r^3} \right\rangle = \frac{4\pi}{\text{Vol}} \int_0^{+\infty} \frac{1}{r^3} r^2 dr = \frac{4\pi}{3} \frac{1}{\text{Vol}} \ln(N) \quad (\text{III - 49})$$

On trouve donc pour le potentiel subi par un atome de Rydberg quand il est en présence d'un échantillon d'atomes de Rydberg froids:

$$V = \frac{4\pi}{3} \chi d \ln(N) \quad (\text{III - 50})$$

L'interaction vue par un atome de Rydberg froid dépend donc à la fois de la densité  $d$  et du nombre total  $N$  des partenaires de collision.

### III - 11 - 2 - Probabilité de transition

En négligeant en même temps les moments dipolaires permanents, ce qui n'est effectivement que le cas si le champ électrique externe est faible de telle manière à ne pas causer de mélange d'état, on trouve le système d'équations différentielles linéaires couplées suivant:

$$\begin{cases} i \dot{C}_i = V C_f \\ i \dot{C}_f = V C_i + \Delta E C_f \end{cases} \quad (\text{III - 51})$$

La solution de ce système où  $\Delta E$  est l'écart en énergie de la condition de résonance est donnée par l'équation (III-21):

$$C_f(t) = i \frac{2V}{\sqrt{\Delta E^2 + 4V^2}} \sin\left(\frac{1}{2} \sqrt{\Delta E^2 + 4V^2} t\right) e^{-\frac{i}{2} \Delta E t} \quad (\text{III - 52})$$

et la probabilité d'une collision résonnante froide qui dure un instant  $\delta t$  est donnée par l'expression suivante:

$$P(\delta t, \Delta E, N, d) = |C_f(\delta t)|^2 = \frac{4V^2}{\Delta E^2 + 4V^2} \sin^2\left(\frac{1}{2} \sqrt{\Delta E^2 + 4V^2} \delta t\right) \quad (\text{III - 53})$$

### III - 11 - 3 - Allures des raies de résonance

Dans ce cas-ci, la forme des raies est correctement décrite par la formule (III-53), contrairement au cas du paragraphe III-2-2-a, car la forme du potentiel ne change pas pendant la collision. La forme des raies de résonance dépend, pour des collisions résonnantes entre atomes de Rydberg froids, du temps d'interaction  $\delta t$ , tant que celui-ci est bien inférieur au temps de collision, et de la densité  $d$  et du nombre total  $N$  d'atomes de Rydberg, par l'intermédiaire de l'interaction  $V$ .

Sur les figures III-26 on voit l'allure des raies de résonance en fonction de la densité des partenaires de collision pour un temps d'interaction  $\delta t$  de  $2 \mu\text{s}$ . On voit que la largeur augmente globalement si l'on augmente la densité atomique. En plus, avec une augmentation de la densité, on voit apparaître des structures dans la raie. D'une part, il y a de plus en plus de raies qui apparaissent autour de la raie centrale, d'autre part la raie centrale peut avoir une structure divisée en deux raies plus ou moins distinctes. Ces formes de raies sont donc une signature caractéristique pour des collisions résonnantes froides, dont on peut tirer directement la densité d'atomes de Rydberg. En faisant varier le nombre total d'atomes de Rydberg  $N$  dans l'échantillon, on assiste au même effet, sauf que la variation de la forme des raies en fonction du nombre  $N$  est beaucoup plus faible qu'en fonction de la densité  $d$ . Cet effet semble bel et bien se produire dans nos expériences de collisions résonnantes dans le piège magnéto-optique à trois dimensions, comme on a pu le constater auparavant.

On peut, au contraire, étudier la forme des raies de résonance en fonction du délai  $\delta t$  entre l'excitation Rydberg et l'analyse pour une densité atomique fixe. En examinant l'expression (III-53) pour la probabilité de transition, on voit facilement que la largeur totale des raies ne change pas avec le temps d'interaction  $\delta t$ , mais que les structures de ces raies vont en effet se multiplier. Ceci est en effet clairement démontré par la figure III-27.

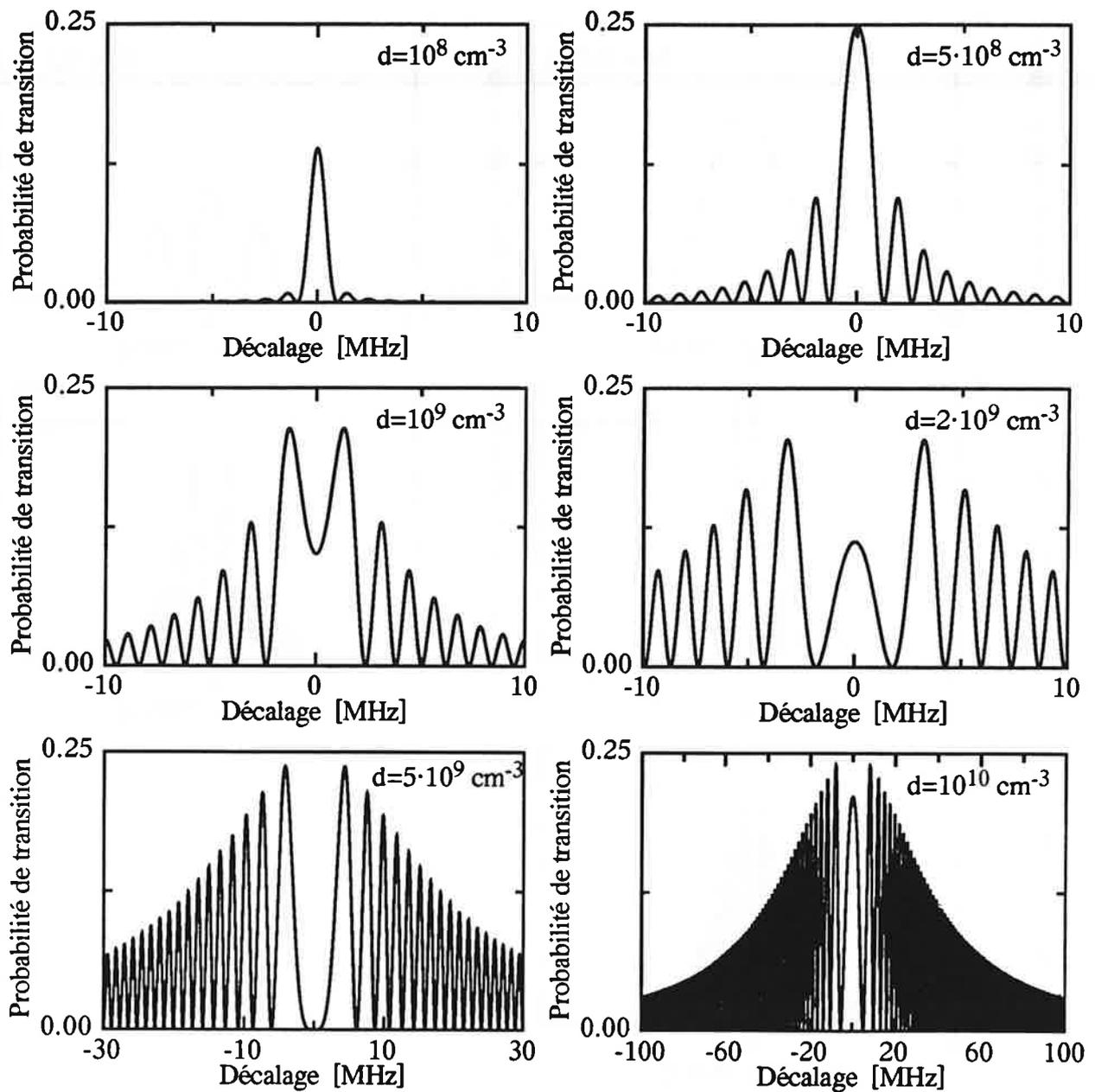


Figure III-26: Allure des raies de résonance pour des collisions résonnantes froides en fonction de la densité atomique  $d$  pour un temps d'interaction  $\delta t$  de  $1 \mu\text{s}$  et pour un piège ayant un diamètre de  $600 \mu\text{m}$ . Dans le calcul de l'interaction  $V$ , on a utilisé la valeur réelle de  $\chi = 38705$  unités atomiques pour le produit des éléments de matrice dipolaire en jeu.

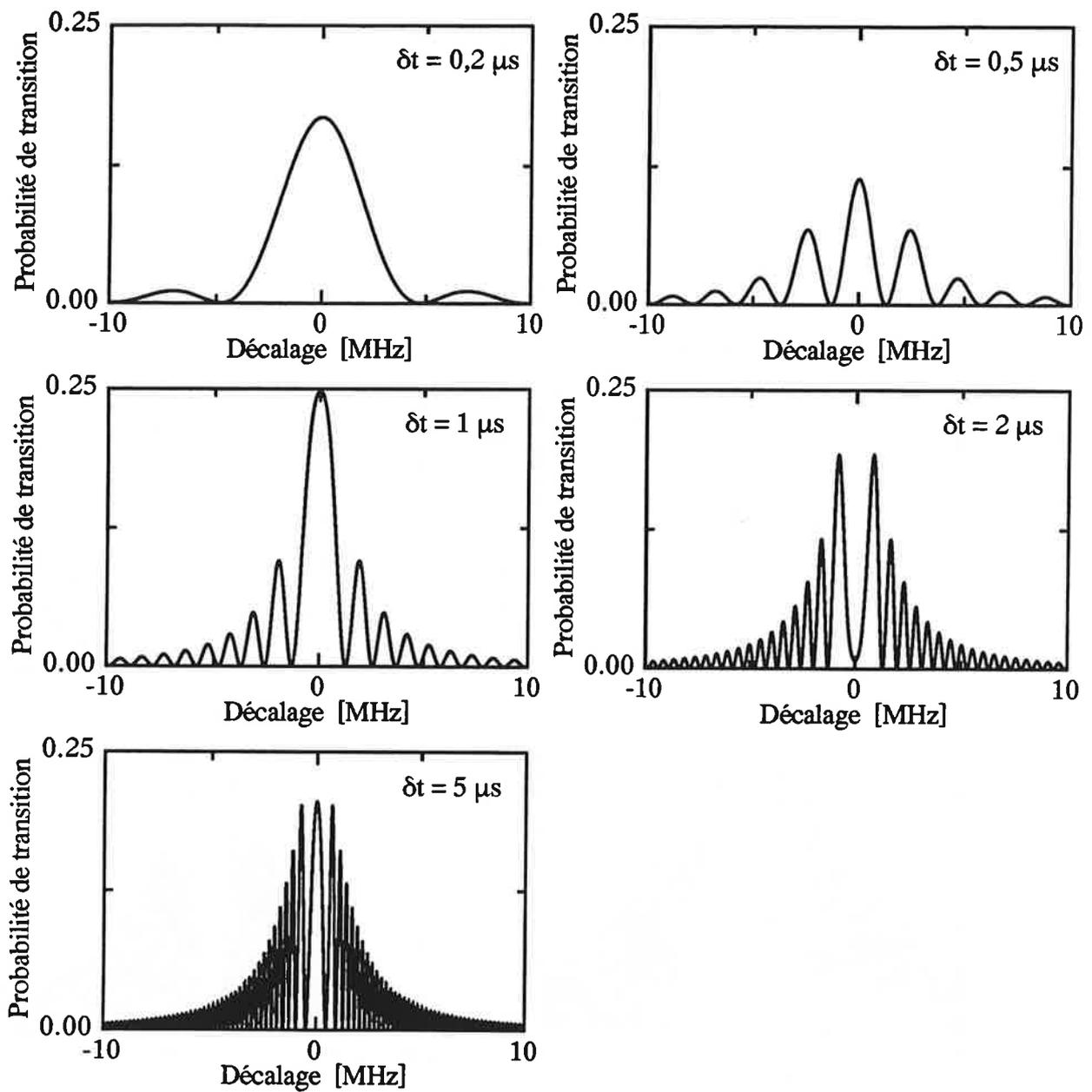


Figure III-27: Allure des raies de résonance pour le cas de collisions résonnantes froides en fonction du temps d'interaction  $\delta t$  pour une densité Rydberg de  $d=5 \cdot 10^8$  atomes  $\text{cm}^{-3}$  et un piège de  $600 \mu\text{m}$  de diamètre .

### III - 11 - 4 - Modèle tenant compte de la délocalisation des atomes froids.

Le modèle ci-dessus suppose que les atomes froids sont plus ou moins localisés dans l'échantillon froid. En effet, ceci ne sera pas nécessairement le cas dans un piège magnéto-optique. Les atomes peuvent se trouver distribués aléatoirement dans celui-ci, et un tel fait peut brouiller les signaux auxquels on s'attend d'après le modèle théorique précédent. En effet, la majeure contribution à l'interaction que verra un atome de Rydberg dépend en grande partie de la distance qui le sépare avec son voisin le plus proche.

On peut donc essayer de perfectionner notre modèle simple en tenant compte d'une position aléatoire du plus proche voisin. On suppose que l'interaction que subit un atome de Rydberg dans l'échantillon d'atomes de Rydberg froids se divise en deux termes. Le premier terme consiste en un potentiel constant qui est identique à celui décrit dans le paragraphe précédent. Ce terme décrit l'interaction entre un atome de Rydberg et l'ensemble de l'échantillon froid par l'intermédiaire d'un potentiel moyen. Le deuxième terme décrit l'interaction entre l'atome de Rydberg considéré et son plus proche voisin qui se trouve immobile à une distance aléatoire  $r$  de celui-ci. Ce terme est donc décrit par un potentiel constant dans le temps qui ne dépend que de cette distance  $r$ . Le potentiel d'interaction total s'écrit donc:

$$V = \frac{1}{2} \chi \left[ \frac{1}{2} \frac{\text{Ln}(N)}{r_{\min}^3} + \frac{1}{r^3} \right] \quad (\text{III} - 54)$$

Dans cette expression  $r_{\min}$  est la distance moyenne entre les atomes dans un échantillon possédant une densité  $d$ . Elle s'écrit en fonction de la densité:

$$r_{\min}^3 = \frac{3}{4 \pi d} \quad (\text{III} - 55)$$

La distance  $r$  entre l'atome considéré et son voisin le plus proche est considérée être entre 0 et  $r_{\min}$ . La probabilité de transition d'un atome vers un autre niveau Rydberg est à nouveau donnée par la formule (III-53), qui dépend maintenant de la distance  $r$ .

$$P(r) = \frac{V^2}{\Delta E^2 + 4V^2} \sin^2 \left[ \frac{1}{2} \sqrt{\Delta E^2 + 4V^2} \delta t \right] \quad (\text{III} - 56)$$

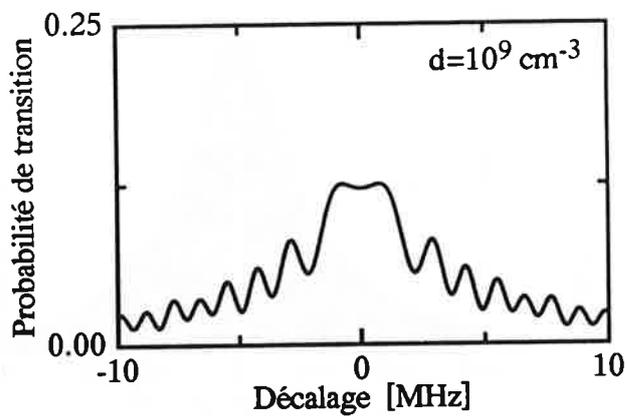
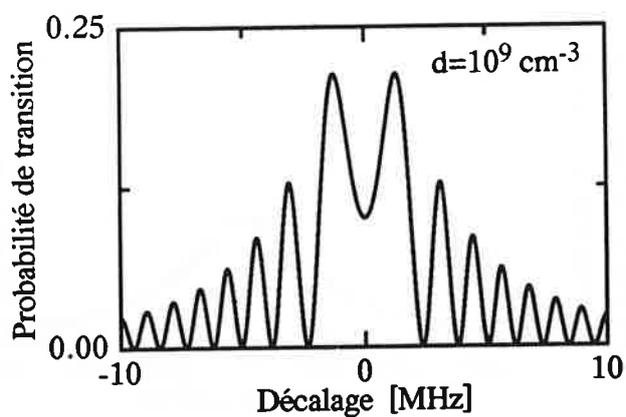
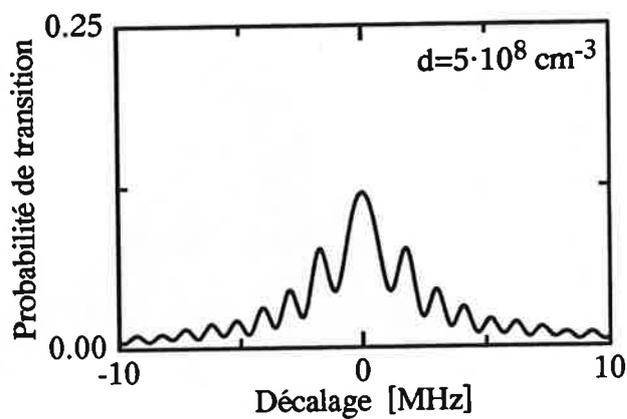
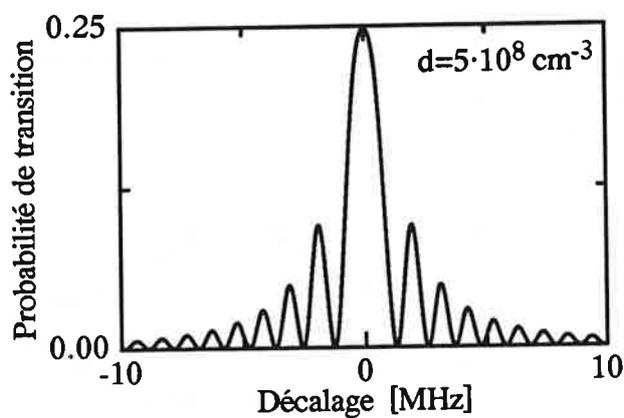
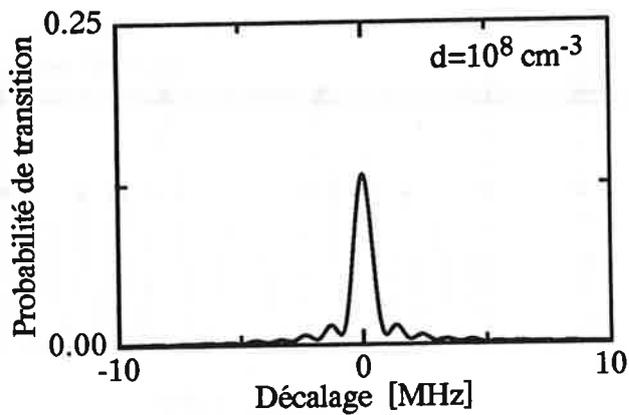
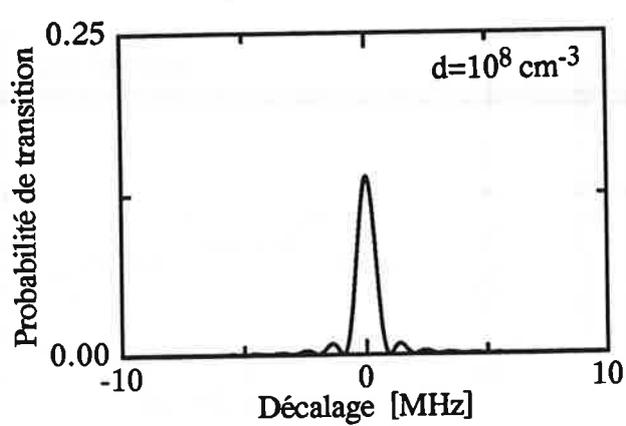
Cette probabilité est en effet la probabilité pour un seul atome de faire une transition lors d'une collision. Si on veut se mettre dans des conditions plus proches de nos expériences, où on n'assiste pas à une seule transition isolée, mais une multitude de transition dans l'ensemble des atomes de Rydberg froids. Ces différentes transitions correspondent toutes à des interactions où la distance  $r$  peut être différente à chaque fois. Les signaux correspondants à chaque distance  $r$  vont donc s'additionner et risquent de brouiller complètement les signaux auxquels on s'attendrait d'après le paragraphe précédent.

Pour obtenir le signal auquel on peut effectivement s'attendre au cours de nos expériences, il faut intégrer les signaux isolés sur la position  $r$  du plus proche voisin. Ce signal s'exprime donc de la façon suivante:

$$\langle P(r) \rangle = \frac{1}{\text{Vol}} \int_0^{r_{\text{min}}} 2\pi r^2 P(r) dr \quad (\text{III} - 57)$$

Sur la figure III-28, on a tracé les signaux auxquels on peut s'attendre si les atomes ne sont pas localisés dans un réseau parfait en fonction de la densité d'atomes de Rydberg. En comparant ces signaux à des signaux où les atomes sont effectivement localisés, comme ceci était le cas pour les calculs du paragraphe précédent, on peut observer qu'une délocalisation des atomes ne brouille que légèrement les signaux pour des faibles densités, tandis à forte densité le signal devient relativement brouillé. On observe cependant toujours les mêmes oscillations dans le signal, que les atomes soient localisés ou non, sauf que leur amplitude décroît graduellement en fonction de la densité sur les signaux brouillés.

En comparant les résultats de ces calculs avec les signaux expérimentaux que nous avons récoltés, on peut en effet supposer que les atomes ne sont pas localisés à l'intérieur de notre piège magnéto-optique, mais sont plutôt distribués aléatoirement en position. Les atomes de Rydberg ultra-froids sont donc situés dans une sorte de réseau désordonné, un gaz de Rydberg gelé. Dans ce gaz, les atomes de Rydberg sont tous en interaction, on assiste donc à des effets collectifs entre eux.



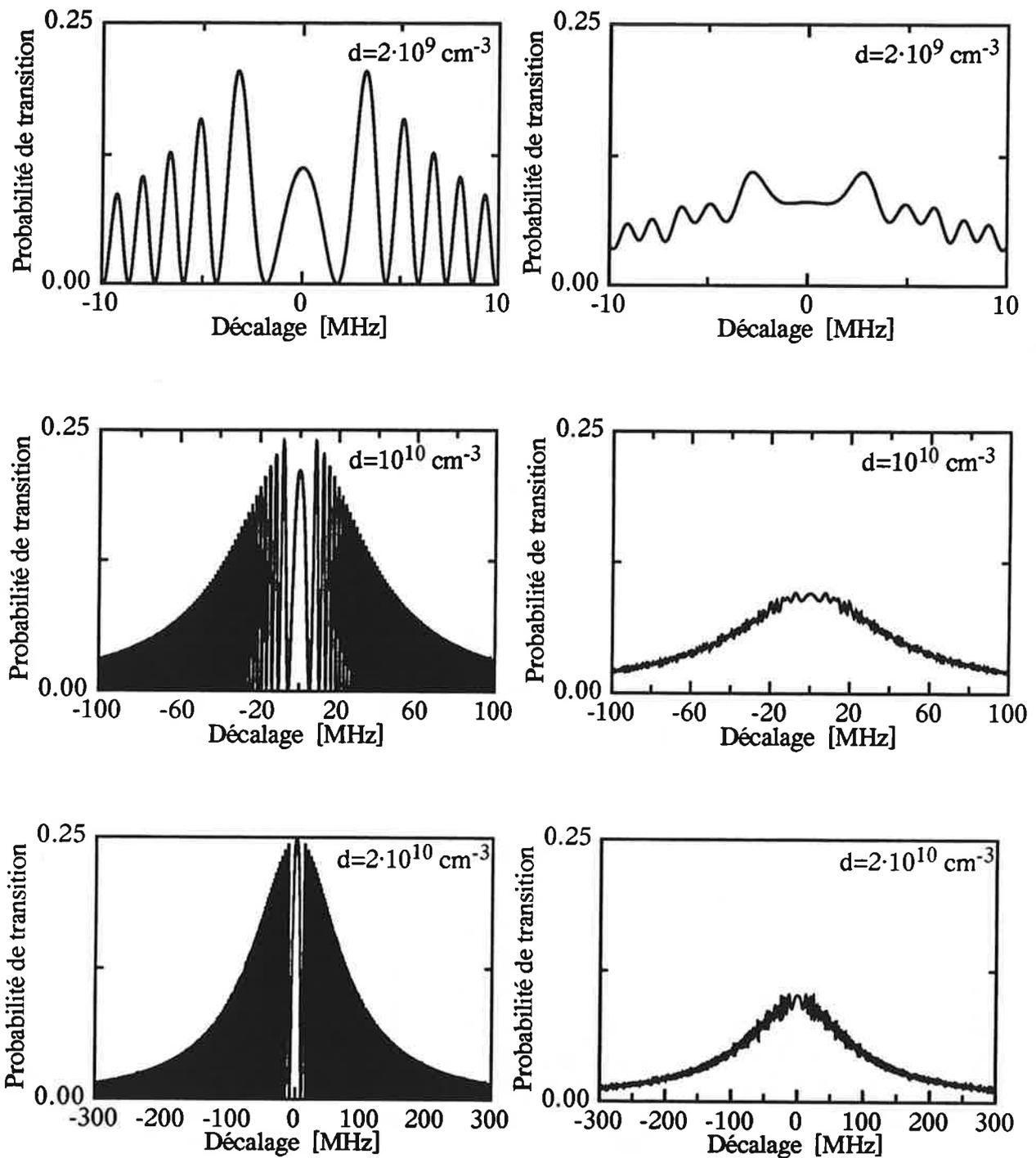


Figure III-28: Allure des raies de résonance en fonction de la densité atomique. A gauche, les raies pour des atomes localisés, et à droite les raies brouillées par une délocalisation de ces atomes. On prend un temps d'interaction  $\delta t$  de  $1 \mu\text{s}$ , et un volume de piège de  $600 \mu\text{m}$  de diamètre.

### III - 12 - Conclusion

Dans ce chapitre, j'ai décrit les aspects théoriques les plus importants relatifs aux collisions résonnantes entre atomes de Rydberg, et les expériences qu'on a menés afin d'étudier celles-ci. On peut distinguer deux régimes de collisions totalement différents les uns des autres. Ces deux régimes sont caractérisés par un temps de collision qui peut être ou bien plus court ou bien beaucoup plus long que le temps qu'on laisse aux atomes pour interagir. Dans les deux cas, une théorie traitant les atomes en tant que systèmes à deux états, et la collision en tant qu'interaction dipôle-dipôle, livre de bons résultats qualitatifs. Cependant les largeurs de raies de résonance observées ne peuvent être expliquées quantitativement dans le cas de collisions entre atomes ultra-froids par la théorie utilisant la théorie du champ moyen. Les phénomènes existants semblent donc être bien plus complexes qu'une simple interaction dipôle-dipôle de tout l'échantillon d'atomes de Rydberg froids.

Si le temps de collision est plus court que le temps d'interaction, le processus est correctement décrit en tant que collision à deux corps possédant un paramètre d'impact et une section efficace. Les expériences correspondantes à ce régime, entre prises sur des atomes de Rydberg dans un jet thermique ont ainsi livrées des raies de résonance de 180 MHz de largeur, pour les collisions résonnantes suivant le schéma:  $23p_{3/2} |m_j| + 23p_{3/2} |m_j| \rightarrow 24s_{1/2} + 23s_{1/2}$  ( $|m_j|, |m_j| = 1/2, 3/2$ ). Ces largeurs correspondent à des vitesses de collisions autour de 200 m/s et des températures supérieures à 500 K. Dans nos expériences, cette réaction est malheureusement la seule ayant pu être observée sur des atomes de Rydberg dans un jet effusif de césium. Certaines modifications du champ d'ionisation devraient permettre une étude plus approfondie en fonction du nombre quantique principal  $n$  de ce type de collision. D'autres mécanismes de collisions ont été étudiés, mais aucun signal de résonance présentant un rapport signal sur bruit acceptable n'a pu être mis en évidence.

Une seconde expérience visait à mettre en évidence des collisions résonnantes sur des atomes se trouvant dans un jet ralenti et refroidi à des températures de l'ordre de 1 Kelvin. Pour ces vitesses de collisions, le temps de collision commence à devenir de l'ordre du temps d'interaction et les raies de résonance attendues devraient présenter des largeurs de l'ordre du MégaHertz. Dans de telles collisions, on peut déterminer quand débute et finit chaque processus de collision, on est dans le régime de collisions limitées par transformée. Dans nos expériences sur le jet ralenti, on n'a malheureusement pas eu l'occasion d'observer des signaux de collisions résonnantes présentant de telles largeurs. Même en comprimant le jet ralenti dans ses directions transversales à l'aide d'un piège magnéto-optique pour augmenter la densité d'atomes

lents, on observait le seul signal de collisions appartenant aux atomes thermiques du jet. Pour pouvoir espérer observer ces collisions dans le jet ralenti, il est nécessaire de travailler à des températures de four plus basses de telle façon à éliminer tout signal thermique grâce à un ralentissement plus efficace, et d'utiliser des processus de collisions résonnantes présentant de plus grandes sections efficaces et une meilleure détectabilité. En changeant de champ d'ionisation, on pourrait satisfaire à ces deux conditions en montant en nombre quantique principal  $n$ .

Le régime des collisions résonnantes où le temps d'interaction est beaucoup plus court que le temps de collision montre l'apparition de nouveaux phénomènes. En effet, comme la vitesse de collision devient très petite, les atomes de Rydberg sont pratiquement immobiles durant tout le temps d'interaction. Les atomes de Rydberg sont donc localisés dans une sorte de réseau cristalin désordonné ou de gaz gelé et voient une interaction qui est constante dans le temps. La taille de cette interaction dépend, selon la théorie développée dans ce chapitre, du nombre total d'atomes de Rydberg dans l'échantillon et de la densité de celui-ci. Une théorie à deux états donne des formes de raies de résonance qui en dépendance de la densité et du temps d'interaction présentent des structures très variées.

Les expériences étudiant ces phénomènes ont été réalisées sur des atomes de Rydberg se trouvant dans un piège magnéto-optique à trois dimensions. Ceux-ci présentent donc des vitesses de collision de l'ordre de 5 cm/s, ce qui correspond à des températures inférieures à 100 microKelvin. Ces expériences préliminaires très récentes indiquent qu'on observe effectivement les structures de raies prédites par la théorie et qu'on est donc bien en présence d'effets collectifs entre atomes de Rydberg dans notre piège magnéto-optique. Des expériences plus approfondies visant à étudier ces phénomènes en détail sont en cours en ce moment.

On a donc, dans ces expériences de collisions résonnantes, pu mettre en évidence la grande différence entre le régime thermique et le régime ultra-froid de celles-ci. Ayant, pour le cas thermique, effectivement une collision où deux atomes se heurtent, on trouve dans le cas ultra-froid un processus n'étant plus réellement une collision à deux corps, mais un processus collectif où l'interaction ne dépend plus que du nombre et de la densité des partenaires de collision et de la durée de l'interaction.

### Références du chapitre III

- [AND 49] P.W. Anderson, *Phys. Rev.* **76**, 647, (1949).
- [BET 57] H.A. Bethe and E.A. Salpeter, *Quantum Mechanics of One- and Two-Electron Atoms* (Springer Verlag, Berlin, 1957).
- [BLE] Anthony Bleton, Thèse de doctorat de l'Université Paris VI, en cours de rédaction.
- [FIO 87] E. Fiordilino, G. Ferrante, and B.M. Smirnov, *Phys. Rev. A* **35**, 3674, (1987).
- [GAL] T.F. Gallagher, communication privée.
- [GAL 80] T.F. Gallagher, G.A. Ruff, and K.A. Safinya, *Phys. Rev. A* **22**, 843, (1980).
- [GAL 82] T.F. Gallagher, K.A. Safinya, F. Gounand, J.F. Delpech, W. Sandner, and R. Kachru, *Phys. Rev. A* **25**, 1905, (1982).
- [GAL 92] T.F. Gallagher, *Phys. Rept.* **210**, 319, (1992).
- [GAL 94] T.F. Gallagher, *Rydberg Atoms*, eds. A. Dalgarno, P.L. Knight, F.H. Read, R.N. Zare (Cambridge University Press, Cambridge, 1994).
- [HOU 81] P.L. Houston, in *Advances in Chemical Physics*, Vol. 47, eds. I. Prigogine and S.A. Rice (Wiley, New York, 1981).
- [MOT 50] N.F. Mott and H.S.W. Massey, *The Theory of Atomic Collisions*, (Clarendon, Oxford, 1950).
- [MOU 97] Igor Mourachko, Thèse de doctorat de l'Université Paris XI, prévue pour 1997
- [NOS 95] P. Nosbaum, A. Bleton, L. Cabaret, J. Yu, T.F. Gallagher, and P. Pillet, *J. Phys. B* **28**, 1707, (1995).

- [OKA 73] T. Oka, in *Advances in Atomic and Molecular Physics*, Vol.9, eds. D.R. Bates and I. Esterman (Academic Press, New York, 1973).
- [PUR 52] E.M. Purcell, *Astrophys. J.* **116**, 457, (1952).
- [RAM 69] N.F. Ramsey, *Molecular Beams*, (Oxford University Press, 1969).
- [REN 91] M.J. Renn and T.F. Gallagher, *Phys. Rev. Lett.* **67**, 2287, (1991).
- [REN 94a] M.J. Renn, W.R. Anderson, T.F. Gallagher, *Phys. Rev. A* **49**, 908, (1994).
- [REN 94b] M.J. Renn, Q.S. Sun, T.F. Gallagher, *Phys. Rev. A* **50**, 4077, (1994).
- [SAF 81] K.A. Safinya, J.F. Delpech, F. Gounand, W. Sandner, and T.F. Gallagher, *Phys. Rev. Lett.* **47**, 405, (1981).
- [SMI 78] K.A. Smith, F.G. Kellert, R.D. Rundel, F.B. Dunning, and R.F. Stebbings, *Phys. Rev. Lett.* **40**, 1362, (1978).
- [STO 87] R.C. Stoneman, M.D. Adams, and T.F. Gallagher, *Phys. Rev. Lett.* **58**, 1324, (1987).
- [THO 89] D.S. Thomson, R.C. Stoneman, and T.F. Gallagher, *Phys. Rev. A* **39**, 2914, (1989).
- [THO 90] D.S. Thomson, M.J. Renn, and T.F. Gallagher, *Phys. Rev. Lett.* **65**, 3273, (1990).
- [THO 92] D.S. Thomson, M.J. Renn, and T.F. Gallagher, *Phys. Rev. A* **45**, 358, (1992).
- [YAR 89] A. Yariv, *Quantum Electronics*, (John Wiley and Sons, New York, 1989).
- [YU 94] J. Yu, J. Djemaa, P. Nosbaum, and P. Pillet, *Opt. Comm.* **112**, 136, (1994).



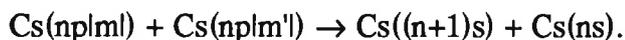


## Conclusion générale

Le but de cette thèse consistait en l'étude des collisions et des interactions entre atomes froids. Dans la suite je vais rappeler les principaux résultats obtenus. Pour pouvoir réaliser de telles expériences, on a été amenés à développer des dispositifs permettant d'obtenir des échantillons denses d'atomes froids. On a ainsi mis en place un piège magnéto-optique à deux dimensions permettant de compresser un jet atomique ralenti de césium, et un piège magnéto-optique à trois dimensions livrant des échantillons denses d'atomes de césium ultra-froids. Notre attention s'est surtout portée sur l'étude et l'amélioration du piège magnéto-optique 2D. A l'aide d'un tel dispositif, on a été capable d'obtenir une compression d'un jet ralenti d'un diamètre de 5 mm à un jet comprimé d'environ 200  $\mu\text{m}$  de diamètre. En utilisant différents dispositifs pour améliorer l'efficacité de notre piège, on a réussi à accroître la densité du jet ralenti d'un facteur 300 et à observer de compression de jet présentant des vitesses longitudinales allant jusqu'à 170 m/s. Ces améliorations prennent en compte la spécificité de l'atome de césium qui possède un grand nombre de sous-niveaux Zeeman. Elles sont basées sur une préorientation des atomes dans la direction du champ magnétique local du piège, pour atteindre plus rapidement l'état stationnaire dans celui-ci.

On a ensuite été amenés à entreprendre des études spectroscopiques d'atomes de Rydberg en présence de champs électriques. Dans un champ électrique, des couplages entre différents niveaux d'énergie de Rydberg provoquent des croisements évités entre ceux-ci. La position et la taille de ces croisements évités sont des informations très utiles pour prévoir le comportement des différents états Rydberg en présence d'un champ électrique pulsé, tel que nous en utilisons pour détecter sélectivement les niveaux Rydberg par la méthode d'ionisation par champ électrique. Pour pouvoir caractériser des croisements évités relativement étroits, on a entrepris des études spectroscopiques par une nouvelle méthode de spectroscopie à haute résolution. Cette méthode utilise le fait que le chemin d'ionisation d'un état de Rydberg dépend étroitement de la position et de la largeur des croisements évités. On a ainsi réussi à caractériser des croisements évités ayant des largeurs aussi fines que 30 MHz.

La contribution principale de cette thèse réside dans les expériences visant à étudier les interactions entre atomes de Rydberg froids et leurs résultats préliminaires. Le choix d'entreprendre ces études à l'aide d'atomes de Rydberg fut motivé par l'augmentation des effets d'interactions du type dipôle-dipôle par rapport à des atomes dans des états profonds. Le processus d'interaction dipôle-dipôle que nous avons choisi dans ce but est le processus des collisions résonnantes, où les niveaux impliqués suivent le schéma suivant:



Dans une étude préliminaire, on a mis en évidence les collisions dans un jet effusif de césium. On a observé des largeurs de raies de résonance d'à peu près 200 MHz. Ceci correspond aux prédictions faites par une théorie traitant les atomes de Rydberg en tant qu'atomes à deux niveaux subissant une collision dipôle-dipôle. Les temps de collisions sont dans ce cas de l'ordre de quelques nanosecondes.

Après avoir obtenus ces résultats dans un jet thermique où la vitesse de collision est de l'ordre de 200 m/s, on a été tenté de faire des études du même processus d'interaction entre atomes de Rydberg dans un jet ralenti et comprimé. Dans un tel jet monocinétique, la vitesse de collision est réduite à quelques mètres par seconde. D'après les considérations théoriques, ceci devrait nous livrer des raies de résonance extrêmement fines, de l'ordre du mégahertz. Malheureusement nous n'avons pas pu mettre en évidence de processus de collisions résonnantes portant la marque significative de collisions entre atomes froids. Nous soupçonnons que l'inhomogénéité des champs électriques doit brouiller ces raies extrêmement fines. D'autre part, la distribution de vitesse du jet ralenti n'étant pas parfaitement monocinétique, les signaux que nous observons sont strictement identiques aux signaux récoltés dans le jet thermique.

On s'est ensuite tourné vers des études d'interactions entre atomes de Rydberg ultra-froids provenant d'un piège magnéto-optique à trois dimensions. Les températures y sont inférieures à 100  $\mu\text{K}$ , ce qui implique que la vitesse de collision devient de l'ordre de quelques cm/s et que le temps de collision serait de l'ordre de plusieurs millisecondes, ce qui excède largement la durée de vie des atomes de Rydberg. L'interprétation théorique de ces phénomènes montre que les atomes de Rydberg sont immobiles durant toute la collision et voient une interaction qui ne dépend plus du temps. Les atomes se trouvent dans une sorte de cristal désordonné ou de gaz de Rydberg gelé tout en interagissant entre eux. Le comportement de l'interaction devient ainsi complètement nouveau et différent par rapport à une collision

résonnante classique. Cette interaction devrait dépendre de la densité et du nombre de partenaires de collision, ce qui lui donnerait un caractère collectif.

Les raies de résonance que nous avons observés dans des expériences préliminaires faites sur des atomes de Rydberg ultra-froids dans un piège magnéto-optique 3D indiquent en effet un comportement totalement différent en comparaison avec le cas thermique. Les signaux récoltés révèlent des structures et des largeurs qui dépendent de la densité d'atomes de Rydberg. Des mesures expérimentales plus systématiques et des traitements théoriques plus poussées de ces phénomènes sont en cours en ce moment et feront le sujet d'une autre thèse. On peut ainsi s'attendre à observer des phénomènes d'interactions à trois ou quatre corps qui devraient être présents dans un échantillon d'atomes ultra-froids. Bien que ces études de collisions ultra-froides portent sur des atomes de Rydberg, il devrait être possible d'en tirer des renseignements sur le comportement d'atomes peu excités dans un piège magnéto-optique, vu que les propriétés des atomes de Rydberg suivent des lois d'échelle. On peut donc imaginer retrouver certains effets collectifs qui peuvent apparaître avant la formation d'un condensat Bose-Einstein. En utilisant un type de piège magnéto-optique 3D où les atomes froids se trouvent situés dans un réseau de lumière, on devrait obtenir une sorte de cristal ou un gaz de Rydberg ordonné. Ceci pourrait faire apparaître de nouveaux phénomènes d'interaction. Les études préliminaires qu'on a décrites dans cette thèse ouvrent donc le champ sur un domaine nouveau et prometteur, qui est celui des interactions et effets collectifs entre atomes froids.





the 1990s, the number of people with a university degree has increased in all countries. The increase is most pronounced in the Netherlands, where the number of university graduates has increased from 1.5 million in 1980 to 2.5 million in 1995. This increase is due to a combination of factors, including a higher enrollment rate in higher education and a higher completion rate.

The increase in the number of university graduates has led to a higher level of human capital in the Netherlands. This has had a positive impact on the country's economic growth and development. The higher level of human capital has led to a higher level of innovation and productivity, which has helped to drive the country's economic growth.

The increase in the number of university graduates has also led to a higher level of social inequality in the Netherlands. The higher level of human capital has led to a higher level of income inequality, as those with a university degree earn higher wages than those without. This has led to a higher level of social inequality, which is a concern for many people in the Netherlands.

The increase in the number of university graduates has also led to a higher level of unemployment in the Netherlands. The higher level of human capital has led to a higher level of unemployment, as many university graduates are unable to find jobs that match their skills. This is a concern for many people in the Netherlands, as it leads to a waste of human capital.

The increase in the number of university graduates has also led to a higher level of government spending in the Netherlands. The higher level of human capital has led to a higher level of government spending, as the government has to spend more on higher education. This is a concern for many people in the Netherlands, as it leads to a higher level of government debt.

The increase in the number of university graduates has also led to a higher level of social inequality in the Netherlands. The higher level of human capital has led to a higher level of social inequality, as those with a university degree earn higher wages than those without. This is a concern for many people in the Netherlands, as it leads to a higher level of social inequality.

The increase in the number of university graduates has also led to a higher level of unemployment in the Netherlands. The higher level of human capital has led to a higher level of unemployment, as many university graduates are unable to find jobs that match their skills. This is a concern for many people in the Netherlands, as it leads to a waste of human capital.

The increase in the number of university graduates has also led to a higher level of government spending in the Netherlands. The higher level of human capital has led to a higher level of government spending, as the government has to spend more on higher education. This is a concern for many people in the Netherlands, as it leads to a higher level of government debt.

The increase in the number of university graduates has also led to a higher level of social inequality in the Netherlands. The higher level of human capital has led to a higher level of social inequality, as those with a university degree earn higher wages than those without. This is a concern for many people in the Netherlands, as it leads to a higher level of social inequality.

## ANNEXE A: Publications



ELSEVIER

15 November 1994

OPTICS  
COMMUNICATIONS

Optics Communications 112 (1994) 136-140

## Funnel with orientated Cs atoms

J. Yu, J. Djemaa, P. Nosbaum, P. Pillet

*Laboratoire Aimé Cotton<sup>1</sup>, CNRS II, Bât. 505, Campus d'Orsay, 91405 Orsay, France*

Received 23 May 1994

## Abstract

The compression of caesium in an atomic funnel is dominated by the transient regime in which the trapping force is strongly dependent on the initial atomic state. We increased the efficiency by Zeeman pumping or initially orientating the atoms with the local magnetic field. The compressed atomic beam was 200  $\mu\text{m}$  in diameter with a density of  $3 \times 10^9$  atoms  $\text{cm}^{-3}$ .

Recent progresses in decelerating and cooling of effusive atomic beams by laser have produced significant improvements in the classical atomic beam method by allowing longer interaction times and reducing the second order Doppler shift. However atomic densities are typically limited to  $\sim 10^7$  atoms  $\text{cm}^{-3}$ , essentially because of the transverse divergence, which is increased during longitudinal cooling; this restricts the signal to noise ratio in low velocity regimes [1]. Higher densities of cooled atoms would extend the applications of this method, and the 2D version of the magneto-optical trap (MOT) offers this possibility [2]. Combining the optical molasses damping force with the position-dependent restoring trapping force, such a trap increases the density of atoms by compressing them into a beam of reduced diameter, just as a funnel. The atom funnel has been first demonstrated independently by Riis et al. [3] and Nellessen et al. [4], for the transition  $3s\ ^2S_{1/2}\ F=1 \rightarrow 3p\ ^2P_{3/2}\ F'=2$  in sodium.

In this Letter, we report an experiment to funnel caesium atomic beam using the transition  $6s\ ^2S_{1/2}\ F=4 \rightarrow 6p\ ^2P_{3/2}\ F'=5$ . For a first approach, the well

known and simple 1D three level  $J=0 \rightarrow J=1$  model [2-5] can be generalized to the  $J \rightarrow J+1$  transition with the assumption that the atomic population reaches its steady state in the trap. In our case, this corresponds to the accumulation of the atomic population into the extreme Zeeman sublevels,  $m_F = -4$  for  $B_T > 0$  or  $m_F = +4$  for  $B_T < 0$  ( $B_T$  refers to the trapping magnetic field). Classically, the atomic magnetic momentum is aligned with the local magnetic field, with minimum Zeeman energy. This simple model leads to a characteristic time  $\tau_c$  for atomic trajectory damping ( $e^{-1}$ ) of about 100  $\mu\text{s}$  for a magnetic field gradient ( $\partial B_T / \partial x$ ) of 40 Gauss  $\text{cm}^{-1}$  and a trap capture range of about  $\pm 2.5$  mm and  $\pm 0.9$  mm for magnetic field gradients of 15 Gauss  $\text{cm}^{-1}$  and 40 Gauss  $\text{cm}^{-1}$  respectively. These results can be extended to the 2D and 3D cases. A crucial difference between a 3D and 2D MOT is that in the 2D case, the compression time is limited by the time of flight (TOF) of the atoms through the trap. For an efficient compression, this time should be long compared to both  $\tau_c$  and optical pumping time to the steady state. We demonstrate in this work that for a caesium 2D MOT some of the atoms can escape from the trap. The large number of  $m_F$  sublevels involved in the ground state,  $F=4$ , makes the compression oc-

<sup>1</sup> The Laboratoire Aimé Cotton is associated to the Université Paris-Sud.

curs in a transient regime with a long optical pumping time and therefore with a  $m_F$ -dependent trapping force. We propose new efficient trapping processes by Zeeman pumping or orientating the atomic population in the direction of the local magnetic field in the trap.

Our 2D-MOT (Fig. 1) consists of 8 current-carrying bars, of cross section  $3 \times 3 \text{ mm}^2$ , which create a quadrupolar magnetic field in the  $xOy$  plane. As they cross the trap, the atoms experience an increasing magnetic field gradient in a zone of 60 mm along the  $z$  axis. The 8-bar configuration is convenient because it allows observation at  $45^\circ$  to the laser beams. The 8 current-carrying bars were connected at the entrance and the exit of the trap by wires in circular form. On the trap axis, a spurious longitudinal magnetic field of the order of one Gauss is created by this connection at the entrance of the trap. At the exit, this spurious magnetic field decreases near to zero. The four trapping laser beams intersect in the center of the trap. They are split from an injection-locked ( $\Delta\nu \sim 100 \text{ kHz}$ ) diode laser beam (SDL 150 mW, single mode) [6]. Cylindrical telescopes are used to get rectangular beams of section  $\Delta x$  (or  $\Delta y$ )  $\times \Delta z = 6 \times 50 \text{ mm}^2$ . The main part of the laser beams, 40 mm width, is used in the MOT zone where magnetic field gradient varies from 15 to 40 Gauss  $\text{cm}^{-1}$  for a current of 50

A. The remaining part provides a 2D molasses to prevent divergence of the compressed atomic beam; it is also used for the observation downward stream from the trap. The average intensity of each beam was  $3.2 \text{ mW cm}^{-2}$  with a 80% homogeneity. The laser frequency was tuned about one natural width ( $\Gamma/2\pi$ ) below the  $F=4 \rightarrow F'=5$  transition.

The trap was used on caesium atomic beam slowed by the chirping cooling technique [1,7]. The atomic beam density was measured using a hot wire detector 50 cm downward steam from the trap, and also the absorption of a laser beam by atoms near the oven. Both measurements were in agreement. The densities of the slowed atomic beam and that of the compressed one were evaluated by comparing their laser-induced fluorescence with the thermal beam. For an oven temperature of  $200^\circ\text{C}$ , the cold atom density has been measured to be at about  $10^7 \text{ atoms cm}^{-3}$  at the entrance of the trap. Two superimposed diode laser beams of 6 mm in diameter, cooling and repumping laser, illuminated the atomic beam in the direction opposing the atomic motion. They were linearly polarized in orthogonal directions. The cooling laser power was 9 mW, and was tuned to the  $F=4 \rightarrow F'=5$  transition, while the repumping laser of power 1 mW, was tuned to  $F=3 \rightarrow F'=4$ . Their frequencies were synchronously swept during the longitudinal cooling

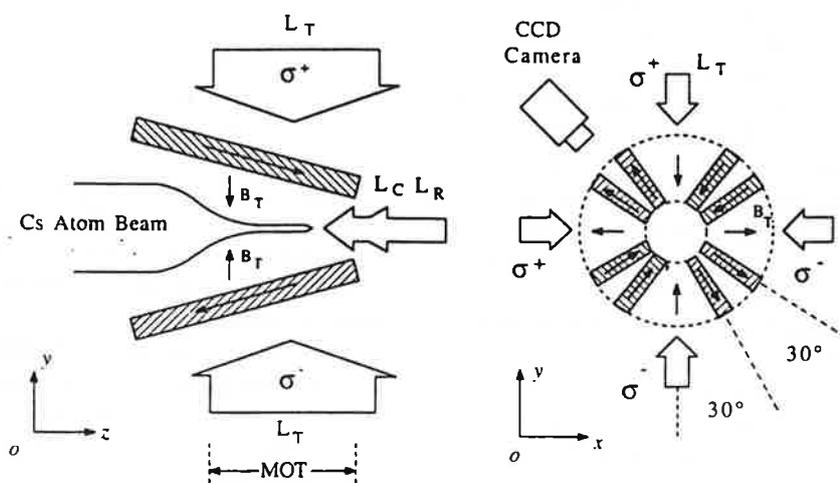


Fig. 1. Experimental setup schematically presented in a front view ( $yOz$ ) and a right hand view ( $xOy$ ). At the entrance of the trap, the bars are fixed on a 60 mm diameter circle, and they converge to a 20 mm one at the exit.  $L_C$ ,  $L_R$  and  $L_T$  refer to respectively the longitudinal cooling, repumping and trapping laser beams. The arrows indicate the directions of the current in the bars. The local magnetic field ( $B_T$ ) directions are also shown with arrows.

process. The final velocity was measured by the Doppler fluorescence spectrum showing a velocity dispersion of about  $\pm 4 \text{ m s}^{-1}$ . The sequence of the MOT compression experiment began with the frequency-chirping ramps of the cooling and the repumping laser (400 MHz, 9 ms). At the end of these ramps the MOT period started, and the slowed monokinetic atomic beam crossed the trap during a typical time interval of 10 ms [1]. The compression process was observed through fluorescence detected with a CCD camera. During the compression, the longitudinal cooling laser was detuned far from resonance ( $\sim 80\Gamma$ ) to avoid any perturbation, while the repumping laser was kept on resonance with the  $F=3 \rightarrow F'=4$  transition to provide hyperfine repumping [1,4].

Fig. 2 shows a typical CCD picture of a compressed atomic beam with a longitudinal velocity of  $35 \text{ m s}^{-1}$ . The complete compression to  $\sim 0.05$  of the initial diameter was obtained after travelling a distance  $d_p$ , 25 mm inside the trap. Beyond this distance, the compressed beam looked like a thin "needle" with constant diameter and brightness. We have measured a diameter of the atom needle of  $200 \mu\text{m}$  (fwhm) and a maximum factor of 100 for the increase in atomic density up to about  $10^9$  atoms

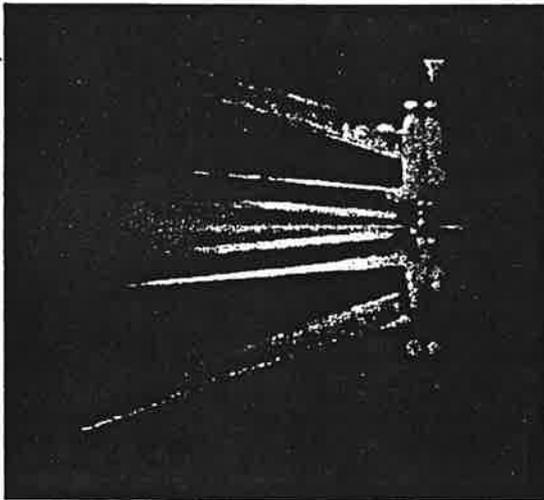


Fig. 2. CCD picture of a compressed atomic beam with longitudinal velocity of  $35 \text{ m s}^{-1}$ . The picture was integrated during the MOT period (10 ms) following cooling ramps. On the trap axis, the atomic beam goes from left (entrance) to right (exit). It looks like a thin needle out of the trap. One can also see scattered lights from the current-carrying bars and the circular connections at the exit of the trap.

$\text{cm}^{-3}$ . Fig. 3 shows the observed compression distance ( $d_p$ ) linearly varying versus the atomic longitudinal velocity ( $v_z$ ), until reaching the total length of the trap for  $70 \text{ m s}^{-1}$ . The slope gives the atomic trajectory compression time  $\tau = d_p/v_z \sim 720 \mu\text{s}$ . Here  $d_p$  was measured from the entrance of the trap to the point where the atomic beam's diameter was reduced to about  $200 \mu\text{m}$ , which corresponds to a reduction of  $0.05 \approx e^{-3}$  of the initial diameter. We remark first, that the density increase of a factor 100 is smaller than the factor 600 obtained if we assume a capture range of about  $\pm 2.5 \text{ mm}$ , and all the atoms in this range uniformly compressed into a diameter of about  $200 \mu\text{m}$ . Second, the experimental value of atomic trajectory compression time is larger than the theoretical one, which should be  $3\tau_c \sim 300 \mu\text{s}$  for a compression of  $e^{-3}$ .

These experimental results reveal the transient character of the compression process, where the trapping force on the atom depends upon its internal state. Complete description of such a process requires the coupled equations of both internal and external atomic states. We give here a simple static description by discussing the trapping forces in the multi-V transition system related to different Zeeman sublevels  $m_F$  in the ground state. Two factors can modify the compression process and make the trapping force

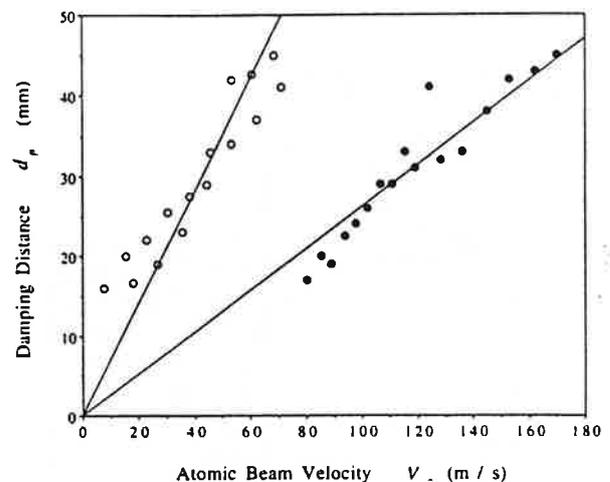


Fig. 3. Experimental values of the compression distance  $d_p$  versus the atomic beam longitudinal velocity  $v_z$ . The circles correspond to the case where the longitudinal cooling laser is detuned far out of the atomic resonance ( $80\Gamma$ ). The black points correspond to the Zeeman pumping case (detuning  $3.5\Gamma$ ).

$m_F$ -dependent. The first one is due to the large variation of the Clebsch–Gordan coefficients leading to asymmetrical  $\sigma^+$  and  $\sigma^-$  transitions even at the zero field point. The second one comes from the difference between the Larmor frequencies of the  $F=4$  and  $F'=5$  levels,  $\Omega_L=2\pi\times 350$  kHz Gauss $^{-1}$  and  $\Omega'_L=2\pi\times 560$  kHz Gauss $^{-1}$ , leading to different effective laser detunings for different  $m_F$  sublevels inside the trap.

Let us write the steady-state force for each  $m_F$ -dependent three-level system as a function of the atomic transverse velocity  $v$  and displacement  $x$ :

$$F_{\pm}(m_F, v, x) = F_0 \frac{C_{\pm}^2(m_F)s_0}{1 + C_{\pm}^2(m_F)s_0 + \Delta_{\pm}^2(m_F, v, x)},$$

where  $F_0 = h\Gamma/2\lambda$  is the saturated force,  $s_0 = 2\Omega^2/\Gamma^2$ , the saturation parameter at resonance,  $C_{\pm}^2(m_F)$  the squared values of the Clebsch–Gordan coefficients associated to the transition  $F=4$ ,  $m_F \rightarrow F'=5$ ,  $m_F \pm 1$  and finally  $\Delta_{\pm}(m_F, v, x)$  the effective laser detuning for an atom in the  $m_F$  sublevel. The last term is contributed by the trapping laser detuning, the Doppler shift and the  $m_F$ -dependent Zeeman shift.

We plot on Fig. 4 the  $m_F$ -dependent total static force,  $F = F_+ + F_-$ . Except  $F(m_F=0)$ , each force exhibits an asymmetric profile: At  $x=1.0$  mm, in the

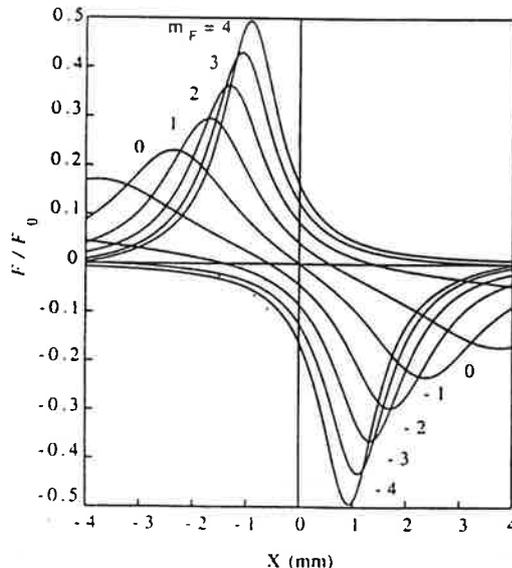


Fig. 4. The  $m_F$ -dependent forces as function of the atomic displacement  $x$ , for  $v=0$ ,  $s_0=1$ ,  $\delta_{LT}=-\Gamma/2\pi$ , and  $\partial B_T/\partial x=40$  Gauss cm $^{-1}$ .

$m_F = -4$  sublevel (corresponding to the steady state) an atom experiences a strong attractive force. Otherwise, in the  $m_F = +4$  sublevel, the force experienced is weak and repulsive. For an atomic population initially in a statistic mixture, the most efficient compression cannot be obtained until the atomic population is optically pumped into the steady state. As remarked above, in a 2D trap the optical pumping time may be comparable to the atomic TOF and the maximum compression cannot be obtained.

To make the compression process more efficient, it is necessary to prepare the atomic population in a favorable, at least partially orientated state with respect to the local magnetic field direction. In a first experiment, we keep the frequency of the longitudinal cooling laser near the transition  $F=4 \rightarrow F'=5$ , with a blue detuning of  $3.5\Gamma$  during the MOT period. The effect is to excite predominantly the atoms in the upwards-shifted Zeeman sublevels (resonance frequency blue-detuned), and to optically pump them into the downwards-shifted ones (for instance  $m_F < 0$  in  $x > 0$  and  $m_F > 0$  in  $x < 0$  for  $\partial B_T/\partial x > 0$ ). A stronger restoring force is so expected, leading to a shorter compression time. In Fig. 3, we present the experimental values (black points) of compression distance versus atomic longitudinal velocity measured in the presence of the Zeeman pumping. We find a compression time  $\tau$  of about 260  $\mu\text{s}$ , in quite good agreement with the theoretical value ( $3\tau_c = 300 \mu\text{s}$ ). In this configuration, we were able to compress monokinetic beams with longitudinal velocity up to 170 m s $^{-1}$ . For velocities inferior to 70 m s $^{-1}$ , the transverse diffusion due to the Zeeman pumping becomes significant because of longer interaction times.

Another experiment was carried out using adiabatic alignment of the atomic population with the local magnetic field. In this experiment, the longitudinal cooling laser was  $\sigma^-$ - or  $\sigma^+$ -polarized to orientate the atoms in the  $Oz$  direction during the cooling. The orientation was maintained by a small longitudinal magnetic field of one Gauss, the earth's magnetic field being compensated in the transverse direction. After each ramp, the longitudinal cooling laser is shifted far from the atomic resonance ( $\sim 80\Gamma$ ). The orientation of the atomic population was thus adiabatically transferred into the transverse direction by following the local magnetic field, which becomes gradually transverse inside the trap. The downwards-

or upwards-shifted Zeeman sublevels are predominantly populated in the trap according to the polarization of the longitudinal cooling laser,  $\sigma^-$  or  $\sigma^+$ . As discussed above, the compression efficiency should be different in these two cases, which is clearly put in evidence in Fig. 5. The fluorescence at maximum of the profile for  $\sigma^-$  polarization was three times of that for  $\sigma^+$  polarization. The density measurement in the case  $\sigma^-$  was a factor of 300 in enhancement, which is closer to the estimated optimum compression factor (600). We notice that the transverse atomic orientation can be partially destroyed by the presence of any longitudinal magnetic field  $B_z$ , if  $B_z/B_T \approx 1$ . Unfortunately the connections between the current-carrying bars created such a longitudinal magnetic field around the trap axis and so the perfect orientation of the atomic population was difficult to obtain. Nevertheless, the effect of the atomic population orientation has been clearly demonstrated.

In conclusion, the operation of an atomic funnel has been successfully demonstrated for caesium atoms, where a multiple-V transition,  $F=4 \rightarrow F'=5$ , is involved. The results correspond essentially to what is expected from the Doppler mechanism in the cooling and the compression. The sub-Doppler mechanisms [8–11] were not observed probably because of the extraneous longitudinal magnetic field in the trap.

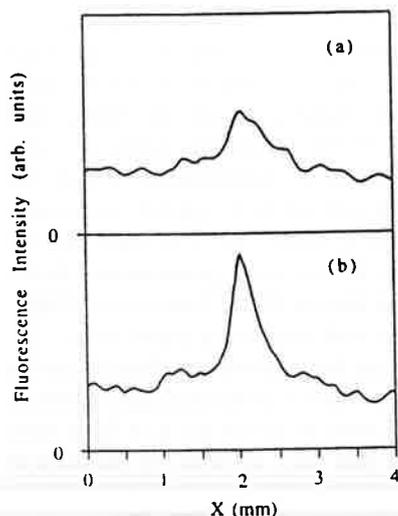


Fig. 5. Transverse fluorescence profiles for the longitudinal cooling laser respectively polarized  $\sigma^+$  (a) and  $\sigma^-$  (b). The atomic beam longitudinal velocity is  $35 \text{ m s}^{-1}$ . The profile was measured at 5 mm behind the exit of the trap.

The most dominant feature in the 2D MOT is the short TOF, which limits the compression time to less than 1 ms, leading to a rather different behavior from a 3D MOT, where the trap loading times may be one second. Thus the atoms in a funnel spend most of their time in the transient regime, especially for a transition  $F \rightarrow F+1$  with large value of  $F$ . We have shown that the orientation of atomic population improves the efficiency of the atomic funnel, by two methods. The first one, laser Zeeman pumping, extends the trap operating range to relatively high longitudinal velocities. It could be applied to the 3D case to shorten the trap loading time. The second proposed method, adiabatic alignment, is specific to the funnel, and gives a better compression efficiency. Finally the performance of cooled and collimated atomic beams has interesting applications in metrology and high resolution spectroscopy, as well in fundamental research into cold atom collisions and collective processes. Such beams can also be the first step for the attractive idea of focussing an atomic beam in the micrometer dimension.

The authors acknowledge stimulating discussions with Dr. C. Salomon and thank J.-M. Sintes and the members of the technical staffs of the laboratory for the trap fabrication.

## References

- [1] J. Yu, S. Guellati, M.C. Gagne, A. Clairon and J.L. Picque, *Optics Comm.* 82 (1991) 27.
- [2] E.L. Raab, M. Prentiss, A. Cable, S. Chu and D.E. Pritchard, *Phys. Rev. Lett.* 59 (1987) 2631.
- [3] E. Riis, D.S. Weiss, K.A. Moler and S. Chu, *Phys. Rev. Lett.* 64 (1990) 1658.
- [4] J. Nellessen, J. Werner and W. Ertmer, *Optics Comm.* 78 (1990) 300.
- [5] P.D. Lett, W.D. Phillips, S.L. Rolston, C.E. Tanner, R.N. Watts and C.I. Westbrook, *J. Opt. Soc. Am. B* 6 (1989) 2084.
- [6] J. Yu, M.C. Gagne, C. Valentin, R.L. Yuan and P. Pillet, *J. Phys. III France* 2 (1992) 1615.
- [7] W. Ertmer, R. Blatt, J.L. Hall and M. Zhu, *Phys. Rev. Lett.* 54 (1985) 996.
- [8] J. Dalibard and C. Cohen-Tannoudji, *J. Opt. Soc. Am. B* 6 (1989) 2023.
- [9] A.M. Steane and C.J. Foot, *Europhys. Lett.* 14 (1991) 231.
- [10] C. Valentin, M.C. Gagne, J. Yu and P. Pillet, *Europhys. Lett.* 17 (1992) 133.
- [11] J. Yu, M.C. Gagne, C. Valentin, S. Guellati, J. Djemaa, R.L. Yuan and P. Pillet, *IEEE Transactions on Instrumentation and Measurement* 42 (1993) 109.

J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 28 (1995) 1707–1713. Printed in the UK

## Anticrossing spectroscopy of Cs Rydberg states

P Nosbaum, A Bleton, L Cabaret, J Yu, T F Gallagher† and P Pillet

Laboratoire Aimé Cotton‡, CNRS II, Bâtiment 505, Campus d'Orsay, 91405 Orsay Cedex, France

Received 23 December 1994, in final form 8 February 1995

**Abstract.** We have measured the avoided crossings between the Cs  $(n + 4)s$  states and the lowest three members of the adjacent  $n$  Stark manifold for  $20 \leq n \leq 24$  using a novel technique based on the differences in the pulsed field ionization of the states under study. The measured positions of the avoided crossings are in excellent agreement with values calculated by matrix diagonalization, and the experimentally determined widths of the avoided crossings, which range from 29 to 78 MHz, are in reasonable agreement with the calculated values.

The finite size of the ionic core has several manifestations in the properties of the Rydberg states of alkali atoms. In zero field it leads to the large quantum defects of the low angular momentum states. In an electric field it couples levels which would cross in hydrogen. Below the classical ionization limit this coupling leads to avoided level crossings and above it to the differences in the field ionization of hydrogen and the alkalis. While field ionization has been studied extensively, the intimately related avoided crossings have not been. The only measurements are the optical measurements of Zimmerman *et al* (1979), the optical radio-frequency work of Rubbmark *et al* (1981) and the black body radiation anticrossing measurements of Stoneman and Gallagher (1985) and Stoneman *et al* (1986). Although the avoided crossings have not been studied extensively they provide a stringent test of theoretical approaches used to calculate the spectra in electric fields. There are three commonly used approaches; the introduction of a spherical core coupling as a small perturbation to hydrogenic parabolic states (Komarov *et al* 1980), diagonalization of a truncated Hamiltonian matrix (Zimmerman *et al* 1979) and a quantum defect theory approach (Harmin 1982). The first of these three approaches provides an elegant and efficient way of calculating the locations and sizes of avoided crossings between Stark levels composed of zero field levels with small quantum defects. Unfortunately, it does not enable us to calculate the avoided crossings between an isolated low angular momentum state and the adjacent Stark manifold. To calculate the locations and sizes of such avoided crossings either matrix diagonalization, quantum defect theory, or a perturbation theory method using an incomplete Stark manifold must be used (Braun 1987, Penent *et al* 1988). In practice, though, only matrix diagonalization has been widely used for stable states.

Here we report the use of a novel technique to measure the avoided crossings of the Cs  $(n + 4)s$  states with the  $n, k$  Stark states in electric fields. Here  $n$  is the principal quantum number and  $k$  is the angular momentum of the zero field state to which the  $n, k$  Stark state is adiabatically connected. We label the Stark states in this way, as done by Bloomfield

† Permanent address: Department of Physics, University of Virginia, Charlottesville, VA 22901, USA.

‡ The Laboratoire Aimé Cotton is associated with the Université Paris-Sud.

*et al* (1986), to draw attention to the fact that they are not identical to the Stark states in hydrogen. We have measured the avoided crossings for  $n = 20$  to 24 and  $k = 3$  to 5. The avoided crossings of the 26s state with the lowest three 22,  $k$  states, the  $k = 3-5$  states, are shown in figure 1. The states we have studied are states of  $|m_j| = \frac{1}{2}$ , where  $m_j = m_\ell + m_s$ . Here  $m_j$ ,  $m_\ell$  and  $m_s$  are the  $z$  components of the total, orbital and spin angular momenta, and the electric field is in the  $z$  direction. While  $m_j$  is a good quantum number,  $m_\ell$  and  $m_s$  are not, and at higher electric fields the fact the  $m_\ell$  and  $m_s$  are not good quantum numbers is quite apparent. At the low fields we consider here  $m_\ell$  and  $m_s$  are almost good quantum numbers because the  $np$  states, which have the largest spin-orbit couplings, are still energetically removed from the Stark manifolds. This point is shown quite clearly in the expanded graphs of figures 1(b)-(d). The avoided crossings of the 26s state with the  $|m_\ell| = 0$  levels are clearly visible, but the avoided crossings with  $|m_\ell| = 1$  levels are vanishing small, indicating that for these states in these fields  $|m_\ell|$  is very nearly a good quantum number. As we shall see, we are not able to observe the avoided crossings with  $|m_\ell| = 1$  states.

The experimental method is based on two important points, both of which are shown by the energy level diagram of figure 1. First is the effect of the first few 26s-22,  $k$  avoided crossings on the pulsed field ionization of these states. The avoided crossings are so small that for pulses with slew rates of  $10^{10}$  V cm<sup>-1</sup>s<sup>-1</sup> they are traversed diabatically (Dunning and Stebbings 1983). Consequently, atoms in the 26s state keep the same energy as the field rises, while atoms in the lowest energy 22,  $k$  states have energies which decrease as the field rises. As a result, atoms in the 26s state are ionized at a lower field than are atoms in the 22,  $k$  states of  $k = 3$  to 5. Second, at the avoided crossing the eigenstates are 50-50 linear combinations of the 26s and 22,  $k$  states. This point is easily understood by examining figures 1(b)-(d). If the core coupling between the 26s and 22,  $k$   $m_\ell = 0$  states is ignored the energy levels would cross, as shown by the broken lines. The core coupling lifts the degeneracy and leads to eigenstates which are given by the superpositions  $(\psi_{26s} \pm \psi_{22,k})/\sqrt{2}$  at the avoided crossing. With these two points in mind it is easy to understand the basic idea of the experiment. We excite the Cs atoms from the ground state by two-photon excitation. Due to the dipole selection rule we are only able to populate the  $(n+4)s$  state, not the  $n, k$  states, which have vanishing small amounts of  $\ell < 3$  character at these fields. When the static field is tuned away from the avoided crossing we observe only the  $(n+4)s$ , not the  $n, k$  field ionization signal. At the avoided crossing we excite both of the good eigenstates, each of which is half  $(n+4)s$  and half  $n, k$  and gives the field ionization signals of both the  $(n+4)s$  and  $n, k$  states. The same number of atoms is always excited, but at the anticrossing half of the field ionization signal appears as  $(n+4)s$  field ionization and half as  $n, k$  field ionization. As the static field is swept through the avoided crossing, the avoided crossing is manifested as a 50% decrease in the  $(n+4)s$  field ionization signal and as a corresponding increase in the  $n, k$  field ionization signal.

In the experiment Cs atoms in a thermal beam pass between two plates 1.5 cm apart, and a negative DC voltage is applied to the lower plate to provide the static field. The atoms are excited to the  $(n+4)s$  state by two photon excitation from a 8 ns frequency locked single mode dye laser pulse at  $\lambda \approx 640$  nm (Pinard and Liberman 1977). Approximately 200 ns after the laser pulses we apply a positive 6 V detuning voltage step, with a rise time of 3 ns, to the upper plate. If the static field is at an anticrossing it projects the eigenstates at the anticrossing onto the  $(n+4)s$  and  $n, k$  states, the eigenstates at a field 4 V cm<sup>-1</sup> higher, and if the static field is away from an anticrossing it usually has no effect on the eigenstates since away from the avoided crossings the wavefunctions are nearly field independent and the amplitude of the detuning step is much larger than the width of

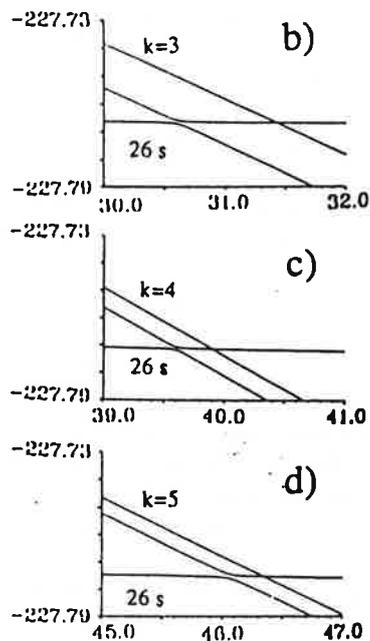
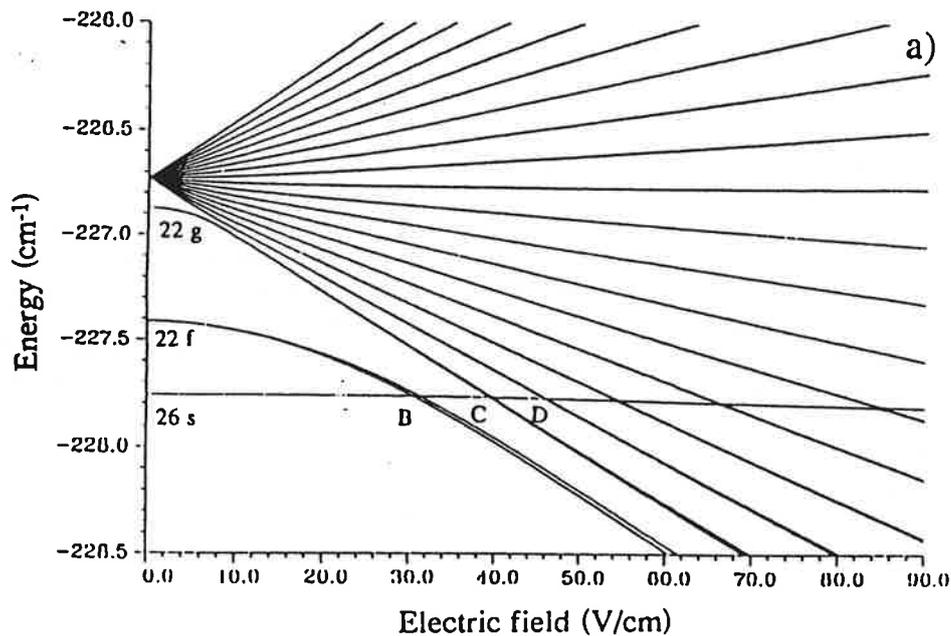


Figure 1. (a) Cs  $|m_j| = 1/2$  energy levels near  $n = 22$  as a function of the electric field. The location of the anticrossing of the 26s state with the three lowest  $n = 22$  Stark states, the 22, 3; 22, 4; and 22, 5 states are evident, but the widths are too small to be visible on this scale. Expanded views of the (b) 26s–22, 3; (c) 26s–22, 4; and (d) 26s–22, 5 avoided crossings. There are clearly visible anticrossings of the 26s state with the  $|m_\ell| = 0$  states, but those with the  $|m_\ell| = 1$  are clearly too small to see, even on the expanded scale.

the anticrossings but smaller than their separations, as shown by figure 1. About 30 ns after the rapid detuning pulse we apply a  $-3$  kV pulse with a rise time of 200 ns to the lower plate to field ionize the atoms. If the field ionization pulse rose rapidly for the first 1 V the detuning step would be superfluous. In fact, the polarity of the field ionization

pulse reverses. It first becomes slightly positive,  $\sim 500$  mV, before the negative high voltage pulse, so that the field ionization pulse alone does not project the eigenstates at the anticrossing onto the  $(n+4)s$  and  $n, k$  states. Adding the 6 V detuning pulse moves the small polarity reversal to a field at which it has no effect. The electrons resulting from field ionization are expelled through a hole in the upper plate and are detected by a dual microchannel plate detector. The field ionization signals from the  $(n+4)s$  and  $n, k$  states are separated in time, and we record them separately using gated integrators. Most of the data were taken by recording the  $(n+4)s$  signals. The anticrossing signals are recorded by slowly sweeping the static field through the anticrossing over many shots of the laser. Using a digital storage oscilloscope we accumulate sweeps until the signal-to-noise ratio is acceptable. By reversing the polarities of the applied voltages we can detect the  $\text{Cs}^+$  ions instead of the electrons, and measurements using ion detection are in agreement with those made using electron detection. Due to the better time resolution of the electron signals, most of the experiments have been performed with electron detection. In principle it is possible to create a coherent superposition of the eigenstates at the avoided crossing and observe quantum beats in either the  $(n+4)s$  or  $n, k$  field ionization signal. However, in our experiment the field inhomogeneities destroy the coherence by the time the detuning field step is applied and no coherence is observed.

As typical examples, the 28s–24,  $k$  anticrossing signals are shown in figure 2. In all three cases the anticrossings are detected as decreases in the 28s field ionization signal. There are two interesting points to note about figure 2. First, in all three cases only one anticrossing is observed, the  $|m_\ell| = 0$  anticrossings of figure 1. The  $|m_\ell| = 1$  anticrossing is unobservably small. Second, at the 28s–24, 3 anticrossing the 28s field ionization signal decreases by the expected 50% from its level away from the avoided crossing, while at the 28s–24, 4 and 28s–24, 5 anticrossings the signal only decreases by 42% and 35%, respectively, of the signal away from the avoided crossing.

It is straightforward to extract the field positions of the anticrossings by simply finding the centres of the anticrossing signals such as those shown in figure 2. The measured and calculated fields of the  $|m_\ell| = 0$  anticrossings are given in table 1. The measured fields are in excellent agreement with the calculated values. The anticrossing fields exhibit approximately  $n^{-5}$  scalings. Specifically, the fields of the  $(n+4)s$ – $n, k$   $|m_\ell| = 0$  anticrossings are given by

$$\begin{aligned} E_{(n+4)s-n,3} \text{ (V cm}^{-1}\text{)} &= 2.31 \times 10^8 n^{-5.12} \\ E_{(n+4)s-n,4} \text{ (V cm}^{-1}\text{)} &= 2.64 \times 10^8 n^{-5.08} \\ E_{(n+4)s-n,5} \text{ (V cm}^{-1}\text{)} &= 7.92 \times 10^8 n^{-5.39}. \end{aligned} \quad (1)$$

To extract the widths from the observed signals requires more effort. As shown by figure 2, we experimentally determine field widths, but since we are interested in the energy separations at the avoided crossings, in table 2 we give the widths (FWHM) of the  $|m_\ell| = 0$  avoided crossings in MHz. The conversion factors for the  $(n+4)s$ – $n, k$  avoided crossings are  $1.218 n^2$ ,  $1.486 n^2$  and  $1.302 n^2$  MHz (V cm $^{-1}$ ) for  $k = 3, 4$  and  $5$ , respectively. The observed widths listed in table 2 are clearly upper bounds to the widths. In table 2 we also give the signal strengths as percentage decrease in the  $(n+4)s$  field ionization signal, and these can be used to establish lower bounds for the widths. If the field ionization signals of the  $(n+4)s$  and  $n, k$  states are completely resolved, we should see a 50% decrease in the  $(n+4)s$  signal at the anticrossing. Anything less than a 50% decrease is due to field inhomogeneity, which artificially broadens the signal. To a good approximation the area

## Anticrossing spectroscopy of Cs Rydberg states

1711

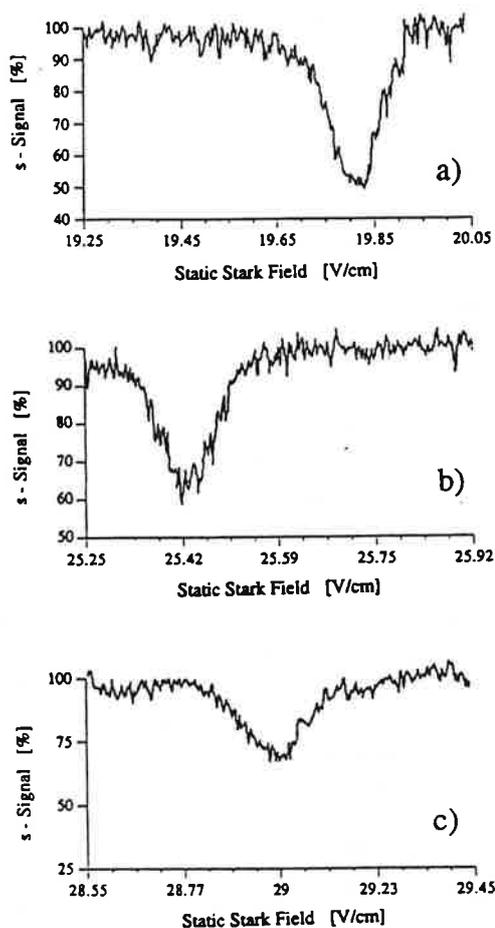


Figure 2. Anticrossing signals for (a) the 28s–24, 3 anticrossing, (b) the 28s–24, 5 anticrossing. In all cases the 28s field ionization signal was monitored. Note that only in (a) does the signal decrease by the theoretically expected 50% at the anticrossing.

Table 1. Experimental and theoretical avoided crossing fields of  $(n + 4)s$  states with  $n, k$  Stark states for  $k = 3-5$ . All values are given in  $\text{V cm}^{-1}$ .

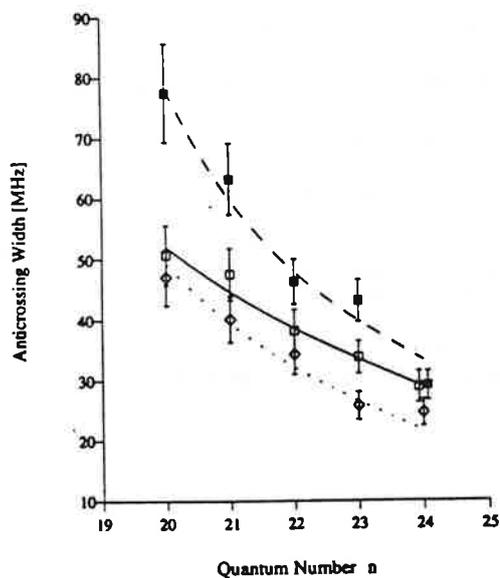
$(n + 4)s$	$n = 3$		$n = 4$		$n = 5$	
	$ m_\ell  = 0$ (expt)	$ m_\ell  = 0$ (theory)	$ m_\ell  = 0$ (expt)	$ m_\ell  = 0$ (theory)	$ m_\ell  = 0$ (expt)	$ m_\ell  = 0$ (theory)
24s	49.9	49.9	65.9	65.6	78.4	78.1
25s	38.9	38.8	51.0	50.6	59.9	59.5
26s	30.7	30.6	39.9	39.6	46.5	46.1
27s	24.6	24.4	31.7	31.3	36.5	36.1
28s	19.8	19.6	25.4	25.1	29.0	28.6

of the decrease in signal should be unchanged by the field inhomogeneity, so a reasonable correction to the observed width is to multiply it by the ratio of the observed signal strength to 50%. Applying these corrections yields the corrected widths of table 2. Unfortunately, the field ionization signals of the  $(n + 4)s$  and  $n, k$  states do in some cases overlap, so that it is not possible for the signal to decrease by 50%. For this reason the corrected widths of table 2 are only lower bounds to the widths. In table 2 we also present the calculated widths, which are in reasonable agreement with the experimental bounds, although some

1712

*P Nosbaum et al***Table 2.** Widths (FWHM) of the  $(n+4)s-n, k$  anticrossings for  $|m_l| = 0$ .

$(n+4)s$	Observed width (MHz)	Signal decrease (%)	Corrected width (MHz)	Calculated width (MHz)
<i>n, 3</i>				
24s	$65.0 \pm 4.6$	$39 \pm 1$	$50.7 \pm 4.9$	52.02
25s	$51.6 \pm 3.6$	$46 \pm 1$	$47.5 \pm 4.3$	44.55
26s	$44.5 \pm 3.1$	$43 \pm 1$	$38.2 \pm 3.5$	38.63
27s	$33.8 \pm 2.4$	$50 \pm 1$	$33.8 \pm 2.7$	33.47
28s	$30.1 \pm 2.1$	$48 \pm 1$	$28.9 \pm 2.6$	28.84
<i>n, 4</i>				
24s	$67.1 \pm 4.7$	$35 \pm 1$	$47.0 \pm 4.6$	49.18
25s	$50.1 \pm 3.5$	$40 \pm 1$	$40.1 \pm 3.8$	39.40
26s	$46.3 \pm 3.2$	$37 \pm 1$	$34.3 \pm 3.3$	32.19
27s	$31.5 \pm 2.2$	$41 \pm 1$	$25.8 \pm 2.3$	26.52
28s	$29.7 \pm 2.1$	$42 \pm 1$	$24.6 \pm 2.2$	21.63
<i>n, 5</i>				
24s	$133.7 \pm 9.4$	$29 \pm 1$	$77.5 \pm 8.1$	78.54
25s	$72.0 \pm 5.0$	$44 \pm 1$	$63.3 \pm 5.9$	59.23
26s	$74.7 \pm 5.2$	$31 \pm 1$	$46.3 \pm 3.7$	48.92
27s	$46.8 \pm 3.3$	$46 \pm 1$	$43.1 \pm 3.4$	39.14
28s	$41.6 \pm 2.3$	$35 \pm 1$	$29.1 \pm 2.4$	33.47



**Figure 3.** The  $(n+4)s-n, k$  anticrossing widths against  $n$ ; the calculated widths of the  $(n+4)s-n, 4$  (.....) and  $(n+4)s-n, 5$  (---) anticrossings, and the corrected experimental widths of the  $(n+4)s-n, 3$  ( $\square$ ),  $(n+4)s-n, 4$  ( $\diamond$ ), and  $(n+4)s-n, 5$  ( $\circ$ ) anticrossings. Note that the  $(n+4)s-n, 3$  anticrossing decreases more slowly with  $n$  due to the more rapid change in the amount of  $f$  character in the  $n, 3$  state with  $n$ .

are smaller than our experimental lower bounds.

In figure 3 we plot the calculated and measured anticrossing widths and inspecting figure 3 it is apparent that the  $n$  dependencies of the widths are not at all the same. The  $(n+4)s$  anticrossings with the  $n, 4$  and  $n, 5$  states exhibit  $n^{-4.47}$  and  $n^{-4.66}$  scalings while the anticrossings with the  $n, 3$  states exhibit an  $n^{-3.22}$  scaling. The widths of the avoided crossings depend on how much low angular momentum character can be found in the Stark states. Since the  $s, p$  and  $d$  states are energetically removed from the Stark manifold it is not possible to predict the widths in a simple way, but the widths may be calculated with

good accuracy by numerical diagonalization of the Hamiltonian matrix for the Cs atom in an electric field. As described by Zimmerman *et al* (1979), we use Coulomb wavefunctions which are generated using the known quantum defects of the Cs  $\ell \leq 4$  states (Goy *et al* 1982, Ruff *et al* 1980); the  $\ell > 4$  states are assumed to have vanishing quantum defects. As shown by figure 3, the agreement between the theoretical curves and the experimental points is reasonably good.

In conclusion, we have used a novel technique to measure the anticrossings of the Cs  $(n + 4)s$  states with the lowest lying members of the adjacent Stark manifolds. Only the anticrossings with the Stark levels which are predominantly  $|m_\ell| = 0$  are observable, and the measured positions and widths of the anticrossings are in good agreement with the values calculated by matrix diagonalization.

### Acknowledgment

It is a pleasure for the authors to thank Dr Jacques Pinard for providing the single mode dye laser.

### References

- Bloomfield L A, Stoneman R C and Gallagher T F 1986 *Phys. Rev. Lett.* **57** 2512  
Braun P A 1987 *Opt. Spectrosc.* **61** 164  
Dunning F B and Stebbings R F 1983 *Rydberg States of Atoms and Molecules* ed R F Stebbings and F B Dunning (Cambridge: Cambridge University Press)  
Goy P, Raimond J N, Vitrant G and Haroche S 1982 *Phys. Rev. A* **26** 2733  
Harmin D A 1982 *Phys. Rev. A* **26** 2656  
Komarov I V, Grozdanov T P and Janev R K 1980 *J. Phys. B: At. Mol. Phys.* **13** 573  
Penent F, Delande D and Gay J C 1988 *Phys. Rev. A* **37** 4707  
Pinard J and Liberman S 1977 *Opt. Commun.* **20** 344  
Rubbmark J R, Kash M M, Littman M G and Kleppner D 1981 *Phys. Rev. A* **23** 3107  
Ruff G A, Safinya K A and Gallagher T F 1980 *Phys. Rev. A* **22** 183  
Stoneman R C and Gallagher T F 1985 *Phys. Rev. Lett.* **55** 2567  
Stoneman R C, Janik G R and Gallagher T F 1986 *Phys. Rev. A* **34** 2952  
Zimmerman M L, Littman M G, Kash M M and Kleppner D 1979 *Phys. Rev. A* **20** 2251

# ANNEXE B: Listing du programme servant au calcul des diagrammes Stark

```

* Atlas.f: Stark diagram for Cesium atom with fine structure
* It computes only the eigen energy values of an
  non hydrogenic atom submitted to a static electric field
  varying from a lowest to a highest value by a fixed step.
* The calculation is done in a truncated basis which one choses
  by giving the lowest and highest principal quantum numbers
  and, the number of extra sets of s, p, d levels.
* It sorts only the energies of the s, p1/2, p3/2, d3/2, d5/2 levels.
* Limitations : quant number <40, level number<150
* composed from J-M Lecomte and Numerical Recipes routines
  by L. Pruvoist (LAC France) on thursday, 5 december 1991.
* Improved by A. Bleton, 8 march 1994
*****

CHARACTER*12 FLENE
PARAMETER (NPAR=300)
PARAMETER (NFIT=6)
PARAMETER (NP=300)
PARAMETER (NPC=200)
DIMENSION AL(3)
DIMENSION T(NP), X(NP), SIG(NP)
DIMENSION TT(NP,11)
DIMENSION F(NFIT)
DIMENSION FT(NFIT,11)
DIMENSION IA(NFIT)
DIMENSION EIGEN(NPAR), OFFDIAG(NPAR)
DIMENSION NANTI(NPAR), COVAR(NPC, NPC)
DIMENSION A(NPAR, NPAR), B(NPAR, NPAR)
DIMENSION DEL(0:50, 2, 2), NS(11), NSB(11), REG(6)
CHARACTER*6 NOM(11)
COMMON/STATES/N(NPAR), L(NPAR), AAN(NPAR), AAE(NPAR)
COMMON/STATES/KK(NPAR), AJ(NPAR)
EXTERNAL FUNCS

* main constants
*****
AE=2*109737.318
AF=5.1422538E9
RS= 0.999995826
* conversion factor of electric field in atomic units
* mass correction of Rydberg state for Cesium ( from Haroche 1982 )
*****
* quantum defect of s state
  DEL(0,2,1)=4.049325
  DEL(0,2,2)=0.2462
* quantum defect of p 1/2 state
  DEL(1,1,1)=3.591556
  DEL(1,1,2)=0.3714
* quantum defect of p 3/2 state
  DEL(1,2,1)=3.559058
  DEL(1,2,2)=0.374
* quantum defect of d 3/2 state
  DEL(2,1,1)=2.475365
  DEL(2,1,2)= 0.5554
* quantum defect of d 5/2 state
  DEL(2,2,1)=2.46621
  DEL(2,2,2)=0.067
* quantum defect of f 5/2 state
  DEL(3,1,1)=0.033392
*****

DEL(3,1,2)=-0.191
DEL(3,2,1)=0.033537
DEL(3,2,2)=-0.191
DEL(4,1,1)=0.007
DEL(4,1,2)=0.
DEL(4,2,1)=0.007
DEL(4,2,2)=0.
DO 1000 I=5,50
DO 1000 K=1,2
DEL(I,K,1)=0.
DEL(I,K,2)=0.
1000

* reads the inputs for calculation
*****
READ*, FLENE
READ*, NBEQ, NEND
READ*, NBAS, NHAUT
READ*, NL
READ*, AM
READ*, FBEG, FEND
READ*, FSTP
OPEN(12, FILE='FLENE')

* fields parameters
*****
NSTP=1
IF (FSTP.NE.0.) NSTP=(FEND-FBEG)/FSTP+1
FBEGA=FBEG/AF
FSTPA=FSTP/AF

* Debut de la boucle en NPRINC
*****
DO 1789 NCOMPT=1, NEND-NBEG+1
NPRINC=NCOMPT-1+NBEQ
*****

* atomic parameters
*****
IEN=NPRINC-NBAS
IEN=NPRINC+NHAUT
EN=IEN-0.1
REN=IEN+0.1
NB=INT (EN-NL)
NE=INT (REN+NL+DEL(0,2,1))+1

C for each state labelled I one defines its angular
C momentum L(I), its principal quantum number N(I), its
C effective quant number AN(I), AAN(I), its energy in a.u. AAE(I)
C and its kinetic momentum AJ(I)

I=0
DO 34 LM=INT (AM-0.5), NE-1
DO 34 KJ=1,2
IF (LM+1.GE.NB) NMIN=LM+1

```

```

IF (LM+1,LT,NB) NMIN=NB
IF (NMIN,LE,0) NMIN=1
DO 34 NN=NMIN,NE
AN=NN-DEL(LM,KJ,1)-DEL(LM,KJ,2)/(NN-DEL(LM,KJ,1))**2
IF (LM,LE,2) .AND. (AN,LT,BN-NL,OR,AN,GT,REN+NL) GO TO 34
IF (LM,GT,2) .AND. (AN,LT,BN,OR,AN,GT,REN) GO TO 34
IF ((KJ,EQ,1) .AND. (LM,EQ,INT(AM-0.5))) GO TO 34
I=I+1
AA(I)=NN-DEL(LM,KJ,1)-DEL(LM,KJ,2)/(NN-DEL(LM,KJ,1))**2
L(I)=LM
KK(I)=KJ
N(I)=NN
AJ(I)=LM+KJ-1.5
AAE(I)=-RS/(2.*AAN(I)*AAN(I))
34 CONTINUE

* builds the dipole matrix A(J,K)=<J /r/ > J,K=1 to I
*****
* elements extra diagonaux
DO 300 J=1,I-1
DO 300 K=J+1,I
IF ((ABS(AJ(J)-AJ(K)).LE,1.0001) .AND. (ABS(L(J)-L(K)).EQ,1)) THEN
CALL ANGUL(L(K),KK(K),L(J),KK(J),AM,ANG)
CALL RMS(K,1,J,RAD)
IF (ABS(RAD*ANG).GT,1E-12) THEN
B(K,J)=RAD*ANG
ELSE
B(K,J)=0.
ENDIF
300 CONTINUE

B(J,K)=B(K,J)
ENDIF
CONTINUE

* determines the mean energy value
EAVG=(IBN+IEN)/2.
EAVG=-RS/(2.*IAVG*IAVG)
DO 400 J=1,I
B(J,J)=RAE(J)-EAVG
400 B(J,J)=RAE(J)-EAVG

NANTI(6)=0
*****
*****DEBUT DE LA BOUCLE DE CHAMP ELECTRIQUE*****
IIMAX=0
DO 100 II=1,NSTP
FII=FBEGA*(II-1)*FSTPA
DO 110 J=1,I
DO 110 K=1,I
IF (J,EQ,K) THEN
A(J,K)=B(J,K)
ELSE
A(J,K)=B(J,K)*FII
ENDIF
110 CONTINUE

CALL TRED2(A,I,NPAR,EIGEN,OFFDIAG)
CALL TOLI(EIGEN,OFFDIAG,I,NPAR)
CALL EIGSRT(EIGEN,I,NPAR)

ff=FII*AF
DO 130 NNN=1,I
EIGEN(NNN)=(EIGEN(NNN)+EAVG)*AE
CONTINUE
130

****Lorsque f=0, on numerote les niveaux interessants
IF (FF,EQ,0.) THEN
DO 1515 JK=1,I
NN=NPRINC+3
REL=-RS*AE/2/(NN-DEL(1,1,1)-DEL(1,1,2)/(NN-DEL(1,1,1))**2)**2
IF (ABS(EIGEN(JK)-REL).LT,1E-4) NS(1)=JK
CONTINUE
DO 35 IR=1,11
NS(IR)=NS(1)-IR+1
NSB(IR)=NS(IR)
35 CALL NIVEAUX(NPRINC+4,NOM)
ENDIF

*****Stockage des six dernieres valeurs de l'etat s et
*****Prevision de la prochaine valeur par linearite
IF (II,LE,6) REG(II)=EIGEN(NS(5))
IF (II,GT,6) THEN
NANTI(II)=NANTI(II-1)
PREV=3*REG(5)/2-REG(1)/2
DO 401 IR=1,1,2
DO 401 IS=1,2
IF (ABS(PREV-EIGEN(NS(5)))*.GT,ABS(PREV-EIGEN(NS(5)+IR))) THEN
NS(5)=NS(5)+IR
DO 402 IT=6,11
IF ((NS(5)).EQ,NS(IT)) NS(IT)=NS(IT)+1
NANTI(II)=1+NANTI(II-1)
ENDIF
402 CONTINUE
DO 1270 IT=1,6
REG(IT)=REG(IT+1)
REG(6)=EIGEN(NS(5))
ENDIF

****Stockage des valeurs interessantes dans T1
DO 403 IS=1,11
T1(II,IS)=EIGEN(NS(IS))
X(II)=FF
IIMAX=IIMAX+1
403

****SORTIE EN CAS D'ENTREE TROP PROFONDE DANS LA MULTIPLICITE
IF (NANTI(II),EQ,7) GO TO 1792

*****AFFICHAGE DES ENERGIES DES 9 NIVEAUX*****
WRITE(12,609)FF,(EIGEN(NS(II)),II=5,11)
C WRITE(*,609)FF,(eigen(NSB(II)),II=1,11)
609 FORMAT(8F9.3)
100 CONTINUE
*****FIN DE LA BOUCLE DE CHAMP ELECTRIQUE*****
1792 CONTINUE

**Fit des 11 niveaux
IA(1)=0

```

```

C IF (AL(2).LT.0.)WRITE(*,*)'PROBLEME DE NUMEROTATION'
AMINEX=AMIN
IF ((AL(1).GE.AL(2)).AND.(AL(2).LE.AL(3)))THEN
AMIN=AL(2)
PAS=PAS/2.
DEV=0.
ENDIF
IF ((AL(1).GE.AL(2)).AND.(AL(2).GE.AL(3)))THEN
AMIN=AL(3)
DEV=PAS
ENDIF
IF ((AL(1).LE.AL(2)).AND.(AL(2).LE.AL(3)))THEN
AMIN=AL(1)
DEV=-PAS
ENDIF
IF ((AL(1).LT.AL(2)).AND.(AL(2).GT.AL(3)))THEN
WRITE(*,*)'IL Y A UN PROBLEME'
IF (AL(1).GT.AL(3))THEN
AMIN=AL(3)
DEV=PAS
ELSE
AMIN=AL(1)
DEV=-PAS
ENDIF
ENDIF
C IF (ABS((AL(2)-AL(3))/AMIN).LT.1E-3).AND.(AL(2).EQ.AMIN))GO TO 478
CONTINUE
WRITE(12,*)'CROISEMENT',NOM(5),',',NOM(IR)
1,': F=',F1*AF,'V/cm Larcœur',amin*29978,'Mhz',ie,dev
ENDIF
480 CONTINUE
*****affichage des premiers anticroisements de n8*****
DO 1793 JH=7,NSTP
IF (NANTI(JH).NE.NANTI(JH-1)).AND.(NANTI(JH).LE.5)
1.AND.(NANTI(JH).GT.0)) THEN
WRITE(12,*) NANTI(JH),eme anticroisement de ',NPRINC+4,
1's aux alentours de F=',(JH-1)*FSTP,' V/cm'
ENDIF
1793 CONTINUE
1789 CONTINUE
CLOSE(12)
END
*****calculates radial matrix element <n1 l1/r**k/n2 l2>
* uses a Numerov meth. starting from infinity to Rmin
* n1 l1 is defined by M, eg N(M),L(M)

```

```

DO 151 IG=2,NFIT
IA(IG)=1
DO 152 IG=1,IIMAX
SIG(IG)=1.
DO 501 IS=1,11
DO 502 IR=1,IIMAX
T(IR)=TT(IR,IS)
F(1)=T(1)
CALL LEIT(X,T,SIG,IIMAX,F,IA,NFIT,COVAR,NFC,CHISO,FUNCS)
WRITE(12,*)NOM(IS),F(1),F(2),F(3),F(4),CHISO
DO 503 IR=1,NFIT
FT(IR,IS)=F(IR)
CONTINUE
503
501
****Determination des croisements
C Write(*,*)i
do 480 IS=2,IIMAX
T52=0.
T51=0.
TX1=0.
TX2=0.
DO 48 JT=1,NFIT
T52=T52+(IS-2)*FSTP)**(JT-1)*FT(JT,5)
DO 49 JT=1,NFIT
T51=T51+(IS-1)*FSTP)**(JT-1)*FT(JT,5)
DO 50 JT=1,NFIT
TX2=TX2+(IS-2)*FSTP)**(JT-1)*FT(JT,IR)
DO 51 JT=1,NFIT
TX1=TX1+(IS-1)*FSTP)**(JT-1)*FT(JT,IR)
DIF2=T52-TX2
DIF1=T51-TX1
IF ((DIF1*DIF2).LT.0.)THEN
ANTIC=X(IS)-FSTP*ABS(DIF1)/(ABS(DIF1)+ABS(DIF2))
PAS=0.1/af
FI=ANTIC/AF
ie=0
DEV=0.
AMIN=IE15
DO 479 JO=1,100
ie=ie+1
if (ie.EQ.100)write(*,*)'Probleme boucle trop longue'
FI=FI+DEV
DO 379 NA=1,3
FFF=FI+PAS*(NA-2)
DO 112 J=1,I
DO 112 K=1,I
IF (J.EQ.K) THEN
A(J,K)=B(J,K)
ELSE
A(J,K)=B(J,K)*FFF
ENDIF
112 CONTINUE
CALL TRED2(A,I,NPAR,EIGEN,OFFDIAG)
CALL TOLI(EIGEN,OFFDIAG,I,NPAR)
CALL EIGSRT(EIGEN,I,NPAR)
AL(NA)=(EIGEN(NSB(IR))-EIGEN(NSB(IR)+1))*AE
CONTINUE
379
C WRITE(*,*) (AL(IG)*29978,IG=1,3)

```

```

* n2 l2 is defined by J, eg N(J),L(J)
* K is the power of I
* RES is the result
*****
SUBROUTINE RMS(M,K,J,RES)

PARAMETER(NPAR=300)
COMMON/STATES/N(NPAR),L(NPAR),AAN(NPAR),AAE(NPAR)
COMMON/STATES/KK(NPAR),AJ(NPAR)

GG(GGL,GGN,GGR)=(GGL+.5)**2+(GGR/GGN)**2-2.0*GGR
NI=N(M)
NF=N(J)
LI=L(M)
LF=L(J)
KP=K+2
ALI=LI
ALF=LF
KC=I
KD=I
S1=0.0
S2=0.0
S3=0.0
ANI=NI
ANIS=AAN(M)
ANF=NF
ANFS=AAN(J)
AN2S=ANFS
AN1S=ANIS
G2=LF
G1=LI
RLIM=2.0*ANFS*(AN2S+15.)
R=2.0*ANIS*(AN1S+15.0)
IF(ANIS.GE.ANFS)GO TO 30
RLIM=R
R=2.0*AN2S*(AN2S+15.0)
G1=LF
G2=LI
AN1S=ANFS
AN2S=ANIS
CONTINUE
AH=0.01
AX=EXP(AH)
XA=1.0/AX
X1A=1.0E-10
X1B=X1A*(1.+2.*(AX-1.))*SQRT(R)
X2A=X1A
X2B=X2A*(1.+2.*(AX-1.))*SQRT(RLIM)
CONTINUE
RL=R
RG=R/AX
R=R/AX
IF(KC.LT.1)GO TO 210
G1L=GG(G1,AN1S,RL)
A1=X1A*(G1L-12./AH**2)
G1R=GG(G1,AN1S,R)
B1=X1B*(10.*G1R+24./AH**2)
G1G=GG(G1,AN1S,RG)

```

```

210 CONTINUE
IF(R.GE.RLIM)GO TO 250
IF(KD.LT.1)GO TO 280
G2L=GG(G2,AN2S,RL)
A2=X2A*(G2L-12./AH**2)
G2R=GG(G2,AN2S,R)
B2=X2B*(10.*G2R+24./AH**2)
G2G=GG(G2,AN2S,RG)
DEN2=12./AH**2-G2G
X2C=(A2+B2)/DEN2
S1=S1+X1B*X2B*R**(KP)
S3=S3+X2B*X2B*R**2
IF(G2G.LE.G2R)GO TO 270
IF(G2G.LE.0.0)GO TO 270
RAT2=ABS(X2C)-XA*ABS(X2B)
IF(RAT2.LE.0.0)GO TO 270
KD=0
CONTINUE
IF(KC.LT.1)GO TO 260
CONTINUE
X2A=X2B
X2B=X2C
CONTINUE
X1A=X1B
X1B=X1C
GO TO 200
CONTINUE
S23=S2*S3
RES=S1/(SQRT(S23))
RETURN
END

```

```

*****
* TRED2 tridiagonalises the N(columns and rows) truncated
* matrix of the matrix A(NP,NP) and gives the diagonal
* elements D(NP) and the off-diagonal ones E(NP)
* this routine comes from Numerical Recipes page 355
*****
SUBROUTINE TRED2(A,N,NP,D,E)
DIMENSION A(NP,NP),D(NP),E(NP)
IF(N.GT.1)THEN
DO 18 I=N,2,-1
I=I-1
H=0.
SCALE=0.
IF(L.GT.1)THEN
DO 11 K=1,I
SCALE=SCALE+ABS(A(I,K))
CONTINUE

```

```

1      IF (SCALE.EQ.0.) THEN
2          E(I)=A(I,L)
3      ELSE
4          DO 12 K=1,L
5              A(I,K)=A(I,K)/SCALE
6              H=H+A(I,K)**2
7          CONTINUE
8          F=A(I,L)
9          G=-SIGN(SORT(H),F)
10         E(I)=SCALE*G
11         H=H-F*G
12         A(I,L)=F-G
13         F=0.
14         DO 15 J=1,L
15             G=0.
16             DO 13 K=1,J
17                 G=G+A(J,K)*A(I,K)
18             CONTINUE
19             IF (L.GT.J) THEN
20                 DO 14 K=J+1,L
21                     G=G+A(K,J)*A(I,K)
22                 CONTINUE
23             ENDIF
24             E(J)=G/H
25             F=F+E(J)*A(I,J)
26         CONTINUE
27         HH=F/(HH)
28         DO 17 J=1,L
29             F=A(I,J)
30             G=E(J)-HH*F
31             E(J)=G
32         DO 16 K=1,J
33             A(J,K)=A(J,K)-F*E(K)-G*A(I,K)
34         CONTINUE
35     ENDIF
36 ENDIF
37 ELSE
38     E(I)=A(I,L)
39     D(I)=H
40     CONTINUE
41 ENDIF
42 E(1)=0.
43 DO 23 I=1,N
44     D(I)=A(I,I)
45     CONTINUE
46 RETURN
47 END
48 *****
49 SUBROUTINE TQL1(D,E,N,NP)
50 *****
51 DIMENSION D(NP),E(NP)
52 IF (N.GT.1) THEN
53     DO 11 I=2,N
54         E(I-1)=E(I)
55     CONTINUE
56     E(N)=0.
57     DO 15 L=1,N
58         ITER=0
59         DO 12 M=L,N-1
60             DD=ABS(D(M))+ABS(D(M+1))
61             IF (ABS(E(M))+DD.EQ.DD) GO TO 2
62             CONTINUE
63             M=N
64             IF (M.NE.L) THEN
65                 IF (ITER.EQ.30) PAUSE 'too many iterations'
66                 ITER=ITER+1
67                 G=(D(L+1)-D(L))/(2.*E(L))
68                 R=SQRT(G**2+1.)
69                 G=D(M)-D(L)+E(L)/(G+SIGN(R,G))
70                 S=1.
71                 C=1.
72                 P=0.
73                 DO 14 I=M-1,L,-1
74                     F=S*E(I)
75                     B=C*E(I)
76                     IF (ABS(F).GE.ABS(G)) THEN
77                         C=G/F
78                         R=SQRT(C**2+1.)
79                         E(I+1)=F*R
80                         S=1./R
81                         C=C*S
82                     ELSE
83                         S=F/G
84                         R=SQRT(S**2+1.)
85                         E(I+1)=G*R
86                         C=1./R
87                         S=S*C
88                     ENDIF
89                     G=D(I+1)-P
90                     R=(D(I)-G)*S+2.*C*B
91                     P=S*R
92                     D(I+1)=G+P
93                     G=C*R-B
94                 CONTINUE
95                 D(I)=D(L)-P
96                 E(L)=G
97                 E(M)=0.
98                 GO TO 1
99             ENDIF
100            CONTINUE
101            ENDIF
102            RETURN
103        END
104        *****
105        * EIGSRT . sorts the N eigenvalues D(NP,NP) into descending order
106        * this routine comes from Numerical Recipes page 348
107        *****
108        SUBROUTINE EIGSRT(D,N,NP)
109        DIMENSION D(NP)
110        DO 13 I=1,N-1
111            K=I
112            P=D(I)
113            DO 11 J=I+1,N
114                IF (D(J).GE.P) THEN
115                    K=J
116                    P=D(J)
117            ENDIF
118        ENDIF

```

```

11 CONTINUE
   IF (K.NE.1) THEN
      D(K)=D(I)
      D(L)=P
   ENDIF
13 CONTINUE
   RETURN
   END
*****
***** Procedure qui calcule le 3j suivant :
***** ( j1 1 j2)
***** ( -m 0 m )
***** Pour cela, il faut donner dans l'ordre j1, j2 et m
*****
   SUBROUTINE TROISJ(AJ1,AJ2,AM,TRJ)
   IF (AJ1.EQ.AJ2)
      1TRJ=(-1)**(INT(AJ1+AM+1))*SQRT(AM**2/(AJ1+1)/AJ1/(2*AJ1+1))
   IF (ABS(AJ1-AJ2).GT.0.0001) THEN
      AJ=AJ2
   IF (AJ1-AJ2.EQ.1)AJ=AJ1
   TRJ=(-1)**(INT(AJ+AM+1))*SQRT((AJ**2-AM**2)
      1/(2.*AJ-1.)/AJ1/(2.*AJ+1.))
   ENDIF
   END
*****
***** ANGUL calcule l'integrale angulaire suivante:
***** < l1 s=1/2 j1 m | z | l2 s2=1/2 j2 m>
***** l1 faut donner l1, l2, K1, K2 et AM
***** K1=1 si j1=l1-1/2 et K1=2 si j1=l1+1/2
***** Idem pour K2
***** ANG est le resultat
*****
   SUBROUTINE ANGUL(L1,K1,L2,K2,AM,ANG)
   AJ1=L1+(2.*K1-3.)/2.
   AJ2=L2+(2.*K2-3.)/2.
   CALL SIXJ(L1,K1,L2,K2,SIX)
   CALL TROISJ(L1,L2,TRL)
   CALL TROISJ(AJ1,AJ2,AM,TRJ)
   ANG=(-1)**(L1+K1+L2+K2+INT(AM+0.5))*SIX*TRL*TRJ
   ANG=ANG*SQRT((2.*L1+1.)*(2.*L2+1.))*SQRT((2.*AJ1+1.)*(2.*AJ2+1.))
   RETURN
   END
*****
***** LFIT
*****
***** SUBROUTINE LFIT(X,Y,SIG,NDAT,A,IA,MA,COVAR,NFC,CHISQ,FONCS)
*****
***** PARAMETER (NMAX=50)
***** INTEGER MA,IA(MA),NDAT
***** REAL X(NDAT),Y(NDAT),SIG(NDAT),A(MA),CHISQ
***** dimension covar(npc,npc)
***** INTEGER I,J,K,L,M,MFIT
***** REAL SIG2I,SUM,WT,YM,AFUNC(MMAX),BETA(MMAX)
***** EXTERNAL FUNCS
***** MFIT=0
***** DO 11 J=1,MA
***** IF (IA(J).NE.0) MFIT=MFIT+1
***** CONTINUE
11

```

```

*****
* Gauss]
*****
SUBROUTINE GAUSSJ(A,N,NP,B)
PARAMETER (NMAX=50)
DIMENSION A(NP,NP),B(NP),IPIV(NMAX),INDXR(NMAX),INDXC(NMAX)
DO 11 J=1,N
IPIV(J)=0
CONTINUE
DO 22 I=1,N
BIG=0
DO 13 J=1,N
IF (IPIV(J).EQ.0) THEN
DO 12 K=1,N
IF (IPIV(K).EQ.0) THEN
IF (ABS(A(J,K)).GE.BIG) THEN
BIG=ABS(A(J,K))
IROW=J
ICOL=K
ENDIF
ELSE IF (IPIV(K).GT.1) THEN
PAUSE 'Singular matrix1'
ENDIF
CONTINUE
ENDIF
CONTINUE
IPIV(ICOL)=IPIV(ICOL)+1
IF (IROW.NE.ICOL) THEN
DO 14 L=1,N
DUM=A(IROW,L)
A(IROW,L)=A(ICOL,L)
A(ICOL,L)=DUM
CONTINUE
DUM=B(IROW)
B(IROW)=B(ICOL)
B(ICOL)=DUM
ENDIF
INDXR(I)=IROW
INDXC(I)=ICOL
IF (A(ICOL,ICOL).EQ.0.) PAUSE 'Singular matrix.'
PIVINV=1./A(ICOL,ICOL)
A(ICOL,ICOL)=1.
DO 16 L=1,N
A(ICOL,L)=A(ICOL,L)*PIVINV
CONTINUE
B(ICOL)=B(ICOL)*PIVINV
DO 21 LL=1,N
IF (LL.NE.ICOL) THEN
DUM=A(LL,ICOL)
A(LL,ICOL)=0.
DO 18 L=1,N
A(LL,L)=A(LL,L)-A(ICOL,L)*DUM
CONTINUE
B(LL)=B(LL)-B(ICOL)*DUM
ENDIF
CONTINUE
DO 24 L=N,1,-1
IF (INDXR(L).NE.INDXC(L)) THEN
12
13
14
16
18
21
22
IF (MFIT.EQ.0) PAUSE'LEIT: PAS DE PARAMETRES A FITTER'
DO 13 J=1,MFIT
DO 12 K=1,MFIT
COVAR(J,K)=0.
CONTINUE
BETA(J)=0.
CONTINUE
DO 18 IK=1,NDAT
CALL FUNCS(X(IK),AFUNC,MA)
YM=Y(IK)
IF (MFIT.LT.MA) THEN
DO 15 J=1,MA
IF (IA(J).EQ.0) YM=YM-A(J)*AFUNC(J)
CONTINUE
ENDIF
SIG2I=1./SIG(IK)**2
j=0
DO 17 L=1,MA
IF (IA(L).NE.0) THEN
J=J+1
WT=AFUNC(L)*SIG2I
K=0
DO 16 M=1,L
IF (IA(M).NE.0) THEN
K=K+1
COVAR(J,K)=COVAR(J,K)+WT*AFUNC(M)
ENDIF
CONTINUE
BETA(J)=BETA(J)+YM*WT
ENDIF
CONTINUE
BETA(J)=BETA(J)+YM*WT
CONTINUE
DO 21 J=2,MFIT
DO 19 K=1,J-1
COVAR(K,J)=COVAR(J,K)
CONTINUE
CONTINUE
CALL GAUSSJ(COVAR,MFIT,NPC,BETA)
J=0
DO 22 L=1,MA
IF (IA(L).NE.0) THEN
J=J+1
A(L)=BETA(J)
CONTINUE
CONTINUE
CHISQ=0.
DO 24 I=1,NDAT
CALL FUNCS(X(I),AFUNC,MA)
SDM=0.
DO 23 J=1,MA
SOM=SOM+A(J)*AFUNC(J)
CONTINUE
CHISQ=CHISQ+((Y(I)-SDM)/SIG(I))**2
CONTINUE
CALL COVSRT(COVAR,NPC,MA,IA,MFIT)
RETURN
END

```



**ANNEXE C: Position des résonances pour les collisions résonnantes****np+np→ns+(n+1)s**

20 p 3/2 m=1/2+20 p 3/2 m=1/2 → 20 s 1/2	+21 s 1/2	F= 223.316
V/CM PENTE= 289.307MHz/(V/cm)		
20 p 3/2 m=1/2+20 p 3/2 m=3/2 → 20 s 1/2	+21 s 1/2	F= 234.367
V/CM PENTE= 274.658MHz/(V/cm)		
20 p 3/2 m=3/2+20 p 3/2 m=3/2 → 20 s 1/2	+21 s 1/2	F= 247.014
V/CM PENTE= 256.348MHz/(V/cm)		
21 p 3/2 m=1/2+21 p 3/2 m=1/2 → 21 s 1/2	+22 s 1/2	F= 156.157
V/CM PENTE= 314.941MHz/(V/cm)		
21 p 3/2 m=1/2+21 p 3/2 m=3/2 → 21 s 1/2	+22 s 1/2	F= 163.848
V/CM PENTE= 300.293MHz/(V/cm)		
21 p 3/2 m=3/2+21 p 3/2 m=3/2 → 21 s 1/2	+22 s 1/2	F= 172.613
V/CM PENTE= 283.813MHz/(V/cm)		
22 p 3/2 m=1/2+22 p 3/2 m=1/2 → 22 s 1/2	+23 s 1/2	F= 111.246
V/CM PENTE= 342.407MHz/(V/cm)		
22 p 3/2 m=1/2+22 p 3/2 m=3/2 → 22 s 1/2	+23 s 1/2	F= 116.643
V/CM PENTE= 328.674MHz/(V/cm)		
22 p 3/2 m=3/2+22 p 3/2 m=3/2 → 22 s 1/2	+23 s 1/2	F= 122.835
V/CM PENTE= 311.279MHz/(V/cm)		
23 p 3/2 m=1/2+23 p 3/2 m=1/2 → 23 s 1/2	+24 s 1/2	F= 80.4850
V/CM PENTE= 366.211MHz/(V/cm)		
23 p 3/2 m=1/2+23 p 3/2 m=3/2 → 23 s 1/2	+24 s 1/2	F= 84.3588
V/CM PENTE= 346.985MHz/(V/cm)		
23 p 3/2 m=3/2+23 p 3/2 m=3/2 → 23 s 1/2	+24 s 1/2	F= 88.8177
V/CM PENTE= 331.421MHz/(V/cm)		
24 p 3/2 m=1/2+24 p 3/2 m=1/2 → 24 s 1/2	+25 s 1/2	F= 59.0469
V/CM PENTE= 390.015MHz/(V/cm)		
24 p 3/2 m=1/2+24 p 3/2 m=3/2 → 24 s 1/2	+25 s 1/2	F= 61.8832
V/CM PENTE= 376.282MHz/(V/cm)		
24 p 3/2 m=3/2+24 p 3/2 m=3/2 → 24 s 1/2	+25 s 1/2	F= 65.1289
V/CM PENTE= 355.225MHz/(V/cm)		
25 p 3/2 m=1/2+25 p 3/2 m=1/2 → 25 s 1/2	+26 s 1/2	F= 43.8607
V/CM PENTE= 407.410MHz/(V/cm)		
25 p 3/2 m=1/2+25 p 3/2 m=3/2 → 25 s 1/2	+26 s 1/2	F= 45.9544
V/CM PENTE= 391.846MHz/(V/cm)		
25 p 3/2 m=3/2+25 p 3/2 m=3/2 → 25 s 1/2	+26 s 1/2	F= 48.3431
V/CM PENTE= 376.282MHz/(V/cm)		
26 p 3/2 m=1/2+26 p 3/2 m=1/2 → 26 s 1/2	+27 s 1/2	F= 32.9340
V/CM PENTE= 430.298MHz/(V/cm)		
26 p 3/2 m=1/2+26 p 3/2 m=3/2 → 26 s 1/2	+27 s 1/2	F= 34.4868
V/CM PENTE= 416.565MHz/(V/cm)		
26 p 3/2 m=3/2+26 p 3/2 m=3/2 → 26 s 1/2	+27 s 1/2	F= 36.2731
V/CM PENTE= 395.508MHz/(V/cm)		
27 p 3/2 m=1/2+27 p 3/2 m=1/2 → 27 s 1/2	+28 s 1/2	F= 24.9514
V/CM PENTE= 452.271MHz/(V/cm)		
27 p 3/2 m=1/2+27 p 3/2 m=3/2 → 27 s 1/2	+28 s 1/2	F= 26.1281
V/CM PENTE= 443.115MHz/(V/cm)		
27 p 3/2 m=3/2+27 p 3/2 m=3/2 → 27 s 1/2	+28 s 1/2	F= 27.4746
V/CM PENTE= 414.734MHz/(V/cm)		
28 p 3/2 m=1/2+28 p 3/2 m=1/2 → 28 s 1/2	+29 s 1/2	F= 19.0620
V/CM PENTE= 487.061MHz/(V/cm)		
28 p 3/2 m=1/2+28 p 3/2 m=3/2 → 28 s 1/2	+29 s 1/2	F= 19.9562
V/CM PENTE= 449.066MHz/(V/cm)		
28 p 3/2 m=3/2+28 p 3/2 m=3/2 → 28 s 1/2	+29 s 1/2	F= 20.9828
V/CM PENTE= 424.805MHz/(V/cm)		
29 p 3/2 m=1/2+29 p 3/2 m=1/2 → 29 s 1/2	+30 s 1/2	F= 14.6591
V/CM PENTE= 486.145MHz/(V/cm)		
29 p 3/2 m=1/2+29 p 3/2 m=3/2 → 29 s 1/2	+30 s 1/2	F= 15.3481
V/CM PENTE= 476.074MHz/(V/cm)		
29 p 3/2 m=3/2+29 p 3/2 m=3/2 → 29 s 1/2	+30 s 1/2	F= 16.1325
V/CM PENTE= 455.933MHz/(V/cm)		
30 p 3/2 m=1/2+30 p 3/2 m=1/2 → 30 s 1/2	+31 s 1/2	F= 11.3416
V/CM PENTE= 514.526MHz/(V/cm)		
30 p 3/2 m=1/2+30 p 3/2 m=3/2 → 30 s 1/2	+31 s 1/2	F= 11.8732
V/CM PENTE= 472.870MHz/(V/cm)		
30 p 3/2 m=3/2+30 p 3/2 m=3/2 → 30 s 1/2	+31 s 1/2	F= 12.4742
V/CM PENTE= 461.426MHz/(V/cm)		
31 p 3/2 m=1/2+31 p 3/2 m=1/2 → 31 s 1/2	+32 s 1/2	F= 8.81239
V/CM PENTE= 502.625MHz/(V/cm)		
31 p 3/2 m=1/2+31 p 3/2 m=3/2 → 31 s 1/2	+32 s 1/2	F= 9.22092
V/CM PENTE= 507.660MHz/(V/cm)		
31 p 3/2 m=3/2+31 p 3/2 m=3/2 → 31 s 1/2	+32 s 1/2	F= 9.68775
V/CM PENTE= 463.257MHz/(V/cm)		
32 p 3/2 m=1/2+32 p 3/2 m=1/2 → 32 s 1/2	+33 s 1/2	F= 6.86679
V/CM PENTE= 501.709MHz/(V/cm)		
32 p 3/2 m=1/2+32 p 3/2 m=3/2 → 32 s 1/2	+33 s 1/2	F= 7.18447
V/CM PENTE= 518.646MHz/(V/cm)		
32 p 3/2 m=3/2+32 p 3/2 m=3/2 → 32 s 1/2	+33 s 1/2	F= 7.54545
V/CM PENTE= 473.328MHz/(V/cm)		
33 p 3/2 m=1/2+33 p 3/2 m=1/2 → 33 s 1/2	+34 s 1/2	F= 5.35119
V/CM PENTE= 538.330MHz/(V/cm)		
33 p 3/2 m=1/2+33 p 3/2 m=3/2 → 33 s 1/2	+34 s 1/2	F= 5.59907
V/CM PENTE= 494.385MHz/(V/cm)		
33 p 3/2 m=3/2+33 p 3/2 m=3/2 → 33 s 1/2	+34 s 1/2	F= 5.89533
V/CM PENTE= 450.439MHz/(V/cm)		

**ANNEXE D: Position des résonances pour les collisions résonnantes à trois corps:  $np+np+np \rightarrow ns+ns+(n+1)p$**

23	p	3/2	m=1/2+23	p	3/2	m=1/2+23	p	3/2	m=1/2	->	23	s	1/2	+23	s	1/2	+
24	F	3/2	m=1/2 F=		235.749	V/CM	PENTE=		474.243	MHz/(V/cm)							
23	p	3/2	m=1/2+23	p	3/2	m=1/2+23	p	3/2	m=3/2	->	23	s	1/2	+23	s	1/2	+
24	F	3/2	m=1/2 F=		249.394	V/CM	PENTE=		450.439	MHz/(V/cm)							
23	p	3/2	m=1/2+23	p	3/2	m=1/2+23	p	3/2	m=1/2	->	23	s	1/2	+23	s	1/2	+
24	F	3/2	m=3/2 F=		223.756	V/CM	PENTE=		503.540	MHz/(V/cm)							
23	p	3/2	m=1/2+23	p	3/2	m=1/2+23	p	3/2	m=3/2	->	23	s	1/2	+23	s	1/2	+
24	F	3/2	m=3/2 F=		236.021	V/CM	PENTE=		477.905	MHz/(V/cm)							
23	p	3/2	m=1/2+23	p	3/2	m=3/2+23	p	3/2	m=3/2	->	23	s	1/2	+23	s	1/2	+
24	F	3/2	m=3/2 F=		249.971	V/CM	PENTE=		441.284	MHz/(V/cm)							
24	p	3/2	m=1/2+24	p	3/2	m=1/2+24	p	3/2	m=1/2	->	24	s	1/2	+24	s	1/2	+
25	P	3/2	m=1/2 F=		174.855	V/CM	PENTE=		531.006	MHz/(V/cm)							
24	p	3/2	m=1/2+24	p	3/2	m=1/2+24	p	3/2	m=3/2	->	24	s	1/2	+24	s	1/2	+
25	P	3/2	m=1/2 F=		184.848	V/CM	PENTE=		493.469	MHz/(V/cm)							
24	p	3/2	m=1/2+24	p	3/2	m=3/2+24	p	3/2	m=3/2	->	24	s	1/2	+24	s	1/2	+
25	P	3/2	m=1/2 F=		196.272	V/CM	PENTE=		465.088	MHz/(V/cm)							
24	p	3/2	m=3/2+24	p	3/2	m=3/2+24	p	3/2	m=3/2	->	24	s	1/2	+24	s	1/2	+
25	P	3/2	m=1/2 F=		209.455	V/CM	PENTE=		426.636	MHz/(V/cm)							
24	p	3/2	m=1/2+24	p	3/2	m=1/2+24	p	3/2	m=1/2	->	24	s	1/2	+24	s	1/2	+
25	P	3/2	m=3/2 F=		165.983	V/CM	PENTE=		552.979	MHz/(V/cm)							
24	p	3/2	m=1/2+24	p	3/2	m=1/2+24	p	3/2	m=3/2	->	24	s	1/2	+24	s	1/2	+
25	P	3/2	m=3/2 F=		174.954	V/CM	PENTE=		521.851	MHz/(V/cm)							
24	p	3/2	m=1/2+24	p	3/2	m=3/2+24	p	3/2	m=3/2	->	24	s	1/2	+24	s	1/2	+
25	P	3/2	m=3/2 F=		185.148	V/CM	PENTE=		496.216	MHz/(V/cm)							
24	p	3/2	m=3/2+24	p	3/2	m=3/2+24	p	3/2	m=3/2	->	24	s	1/2	+24	s	1/2	+
25	P	3/2	m=3/2 F=		196.854	V/CM	PENTE=		450.439	MHz/(V/cm)							
25	p	3/2	m=1/2+25	p	3/2	m=1/2+25	p	3/2	m=1/2	->	25	s	1/2	+25	s	1/2	+
26	P	3/2	m=1/2 F=		131.607	V/CM	PENTE=		596.924	MHz/(V/cm)							
25	p	3/2	m=1/2+25	p	3/2	m=1/2+25	p	3/2	m=3/2	->	25	s	1/2	+25	s	1/2	+
26	P	3/2	m=1/2 F=		139.052	V/CM	PENTE=		547.943	MHz/(V/cm)							
25	p	3/2	m=1/2+25	p	3/2	m=3/2+25	p	3/2	m=3/2	->	25	s	1/2	+25	s	1/2	+
26	P	3/2	m=1/2 F=		147.547	V/CM	PENTE=		513.611	MHz/(V/cm)							
25	p	3/2	m=3/2+25	p	3/2	m=3/2+25	p	3/2	m=3/2	->	25	s	1/2	+25	s	1/2	+
26	P	3/2	m=1/2 F=		157.346	V/CM	PENTE=		481.567	MHz/(V/cm)							
25	p	3/2	m=1/2+25	p	3/2	m=1/2+25	p	3/2	m=1/2	->	25	s	1/2	+25	s	1/2	+
26	P	3/2	m=3/2 F=		124.944	V/CM	PENTE=		617.065	MHz/(V/cm)							
25	p	3/2	m=1/2+25	p	3/2	m=1/2+25	p	3/2	m=3/2	->	25	s	1/2	+25	s	1/2	+
26	P	3/2	m=3/2 F=		131.609	V/CM	PENTE=		586.395	MHz/(V/cm)							
25	p	3/2	m=1/2+25	p	3/2	m=3/2+25	p	3/2	m=3/2	->	25	s	1/2	+25	s	1/2	+
26	P	3/2	m=3/2 F=		139.190	V/CM	PENTE=		539.246	MHz/(V/cm)							
25	p	3/2	m=3/2+25	p	3/2	m=3/2+25	p	3/2	m=3/2	->	25	s	1/2	+25	s	1/2	+
26	P	3/2	m=3/2 F=		147.865	V/CM	PENTE=		503.540	MHz/(V/cm)							
26	p	3/2	m=1/2+26	p	3/2	m=1/2+26	p	3/2	m=1/2	->	26	s	1/2	+26	s	1/2	+
27	P	3/2	m=1/2 F=		100.3925	V/CM	PENTE=		639.038	MHz/(V/cm)							
26	p	3/2	m=1/2+26	p	3/2	m=1/2+26	p	3/2	m=3/2	->	26	s	1/2	+26	s	1/2	+
27	P	3/2	m=1/2 F=		106.020	V/CM	PENTE=		608.368	MHz/(V/cm)							
26	p	3/2	m=1/2+26	p	3/2	m=3/2+26	p	3/2	m=3/2	->	26	s	1/2	+26	s	1/2	+
27	P	3/2	m=1/2 F=		112.425	V/CM	PENTE=		568.542	MHz/(V/cm)							
26	p	3/2	m=3/2+26	p	3/2	m=3/2+26	p	3/2	m=3/2	->	26	s	1/2	+26	s	1/2	+
27	P	3/2	m=1/2 F=		119.806	V/CM	PENTE=		529.175	MHz/(V/cm)							
26	p	3/2	m=1/2+26	p	3/2	m=1/2+26	p	3/2	m=1/2	->	26	s	1/2	+26	s	1/2	+
27	P	3/2	m=3/2 F=		95.3208	V/CM	PENTE=		679.321	MHz/(V/cm)							
26	p	3/2	m=1/2+26	p	3/2	m=1/2+26	p	3/2	m=3/2	->	26	s	1/2	+26	s	1/2	+
27	P	3/2	m=3/2 F=		100.3514	V/CM	PENTE=		631.714	MHz/(V/cm)							
26	p	3/2	m=1/2+26	p	3/2	m=3/2+26	p	3/2	m=3/2	->	26	s	1/2	+26	s	1/2	+
27	P	3/2	m=3/2 F=		106.067	V/CM	PENTE=		599.614	MHz/(V/cm)							
26	p	3/2	m=3/2+26	p	3/2	m=3/2+26	p	3/2	m=3/2	->	26	s	1/2	+26	s	1/2	+
27	P	3/2	m=3/2 F=		112.595	V/CM	PENTE=		560.303	MHz/(V/cm)							
27	p	3/2	m=1/2+27	p	3/2	m=1/2+27	p	3/2	m=1/2	->	27	s	1/2	+27	s	1/2	+
28	P	3/2	m=1/2 F=		77.5117	V/CM	PENTE=		704.956	MHz/(V/cm)							
27	p	3/2	m=1/2+27	p	3/2	m=1/2+27	p	3/2	m=3/2	->	27	s	1/2	+27	s	1/2	+
28	P	3/2	m=1/2 F=		81.8134	V/CM	PENTE=		662.384	MHz/(V/cm)							
27	p	3/2	m=1/2+27	p	3/2	m=3/2+27	p	3/2	m=3/2	->	27	s	1/2	+27	s	1/2	+
28	P	3/2	m=1/2 F=		86.7177	V/CM	PENTE=		616.150	MHz/(V/cm)							
27	p	3/2	m=3/2+27	p	3/2	m=3/2+27	p	3/2	m=3/2	->	27	s	1/2	+27	s	1/2	+
28	P	3/2	m=1/2 F=		92.3533	V/CM	PENTE=		580.444	MHz/(V/cm)							
27	p	3/2	m=1/2+27	p	3/2	m=1/2+27	p	3/2	m=1/2	->	27	s	1/2	+27	s	1/2	+
28	P	3/2	m=3/2 F=		73.6050	V/CM	PENTE=		732.422	MHz/(V/cm)							
27	p	3/2	m=1/2+27	p	3/2	m=1/2+27	p	3/2	m=3/2	->	27	s	1/2	+27	s	1/2	+
28	P	3/2	m=3/2 F=		77.4477	V/CM	PENTE=		696.259	MHz/(V/cm)							
27	p	3/2	m=1/2+27	p	3/2	m=3/2+27	p	3/2	m=3/2	->	27	s	1/2	+27	s	1/2	+
28	P	3/2	m=3/2 F=		81.8076	V/CM	PENTE=		651.855	MHz/(V/cm)							
27	p	3/2	m=3/2+27	p	3/2	m=3/2+27	p	3/2	m=3/2	->	27	s	1/2	+27	s	1/2	+
28	P	3/2	m=3/2 F=		86.7982	V/CM	PENTE=		607.910	MHz/(V/cm)							
28	p	3/2	m=1/2+28	p	3/2	m=1/2+28	p	3/2	m=1/2	->	28	s	1/2	+28	s	1/2	+
29	P	3/2	m=1/2 F=		60.5096	V/CM	PENTE=		761.719	MHz/(V/cm)							
28	p	3/2	m=1/2+28	p	3/2	m=1/2+28	p	3/2	m=3/2	->	28	s	1/2	+28	s	1/2	+
29	P	3/2	m=1/2 F=		63.8375	V/CM	PENTE=		724.182	MHz/(V/cm)							
28	p	3/2	m=1/2+28	p	3/2	m=3/2+28	p	3/2	m=3/2	->	28	s	1/2	+28	s	1/2	+
29	P	3/2	m=1/2 F=		67.6355	V/CM	PENTE=		675.659	MHz/(V/cm)							
28	p	3/2	m=3/2+28	p	3/2	m=3/2+28	p	3/2	m=3/2	->	28	s	1/2	+28	s	1/2	+
29	P	3/2	m=1/2 F=		71.9913	V/CM	PENTE=		629.883	MHz/(V/cm)							
28	p	3/2	m=1/2+28	p	3/2	m=1/2+28	p	3/2	m=1/2	->	28	s	1/2	+			

29	p	3/2	m=1/2+29	p	3/2	m=1/2+29	p	3/2	m=1/2	->	29	s	1/2	+29	s	1/2	+
30	P	3/2	m=1/2 F=		47.7136	V/CM	PENTE=		824.890	MHz/(V/cm)							
29	p	3/2	m=1/2+29	p	3/2	m=1/2+29	p	3/2	m=3/2	->	29	s	1/2	+29	s	1/2	+
30	P	3/2	m=1/2 F=		50.3200	V/CM	PENTE=		779.572	MHz/(V/cm)							
29	p	3/2	m=1/2+29	p	3/2	m=3/2+29	p	3/2	m=3/2	->	29	s	1/2	+29	s	1/2	+
30	P	3/2	m=1/2 F=		53.2868	V/CM	PENTE=		734.253	MHz/(V/cm)							
29	p	3/2	m=3/2+29	p	3/2	m=3/2+29	p	3/2	m=3/2	->	29	s	1/2	+29	s	1/2	+
30	P	3/2	m=1/2 F=		56.6952	V/CM	PENTE=		684.814	MHz/(V/cm)							
29	p	3/2	m=1/2+29	p	3/2	m=1/2+29	p	3/2	m=1/2	->	29	s	1/2	+29	s	1/2	+
30	P	3/2	m=3/2 F=		45.3210	V/CM	PENTE=		867.004	MHz/(V/cm)							
29	p	3/2	m=1/2+29	p	3/2	m=1/2+29	p	3/2	m=3/2	->	29	s	1/2	+29	s	1/2	+
30	P	3/2	m=3/2 F=		47.6448	V/CM	PENTE=		815.735	MHz/(V/cm)							
29	p	3/2	m=1/2+29	p	3/2	m=3/2+29	p	3/2	m=3/2	->	29	s	1/2	+29	s	1/2	+
30	P	3/2	m=3/2 F=		50.2777	V/CM	PENTE=		768.127	MHz/(V/cm)							
29	p	3/2	m=3/2+29	p	3/2	m=3/2+29	p	3/2	m=3/2	->	29	s	1/2	+29	s	1/2	+
30	P	3/2	m=3/2 F=		53.2870	V/CM	PENTE=		724.182	MHz/(V/cm)							
30	p	3/2	m=1/2+30	p	3/2	m=1/2+30	p	3/2	m=1/2	->	30	s	1/2	+30	s	1/2	+
31	P	3/2	m=1/2 F=		37.9783	V/CM	PENTE=		885.315	MHz/(V/cm)							
30	p	3/2	m=1/2+30	p	3/2	m=1/2+30	p	3/2	m=3/2	->	30	s	1/2	+30	s	1/2	+
31	P	3/2	m=1/2 F=		40.0338	V/CM	PENTE=		839.539	MHz/(V/cm)							
30	p	3/2	m=1/2+30	p	3/2	m=3/2+30	p	3/2	m=3/2	->	30	s	1/2	+30	s	1/2	+
31	P	3/2	m=1/2 F=		42.3815	V/CM	PENTE=		791.931	MHz/(V/cm)							
30	p	3/2	m=3/2+30	p	3/2	m=3/2+30	p	3/2	m=3/2	->	30	s	1/2	+30	s	1/2	+
31	P	3/2	m=1/2 F=		45.0707	V/CM	PENTE=		737.915	MHz/(V/cm)							
30	p	3/2	m=1/2+30	p	3/2	m=1/2+30	p	3/2	m=1/2	->	30	s	1/2	+30	s	1/2	+
31	P	3/2	m=3/2 F=		36.0747	V/CM	PENTE=		931.091	MHz/(V/cm)							
30	p	3/2	m=1/2+30	p	3/2	m=1/2+30	p	3/2	m=1/2	->	30	s	1/2	+30	s	1/2	+
31	P	3/2	m=3/2 F=		226.418	V/CM	PENTE=		-1358.64	MHz/(V/cm)							
30	p	3/2	m=1/2+30	p	3/2	m=1/2+30	p	3/2	m=3/2	->	30	s	1/2	+30	s	1/2	+
31	P	3/2	m=3/2 F=		37.9135	V/CM	PENTE=		877.991	MHz/(V/cm)							
30	p	3/2	m=1/2+30	p	3/2	m=3/2+30	p	3/2	m=3/2	->	30	s	1/2	+30	s	1/2	+
31	P	3/2	m=3/2 F=		39.9890	V/CM	PENTE=		829.468	MHz/(V/cm)							
30	p	3/2	m=3/2+30	p	3/2	m=3/2+30	p	3/2	m=3/2	->	30	s	1/2	+30	s	1/2	+
31	P	3/2	m=3/2 F=		42.3643	V/CM	PENTE=		779.114	MHz/(V/cm)							
31	p	3/2	m=1/2+31	p	3/2	m=1/2+31	p	3/2	m=1/2	->	31	s	1/2	+31	s	1/2	+
32	P	3/2	m=1/2 F=		30.4865	V/CM	PENTE=		952.148	MHz/(V/cm)							
31	p	3/2	m=1/2+31	p	3/2	m=1/2+31	p	3/2	m=1/2	->	31	s	1/2	+31	s	1/2	+
32	P	3/2	m=1/2 F=		244.093	V/CM	PENTE=		-1999.51	MHz/(V/cm)							
31	p	3/2	m=1/2+31	p	3/2	m=1/2+31	p	3/2	m=3/2	->	31	s	1/2	+31	s	1/2	+
32	P	3/2	m=1/2 F=		32.1277	V/CM	PENTE=		903.168	MHz/(V/cm)							
31	p	3/2	m=1/2+31	p	3/2	m=3/2+31	p	3/2	m=3/2	->	31	s	1/2	+31	s	1/2	+
32	P	3/2	m=1/2 F=		33.9968	V/CM	PENTE=		846.863	MHz/(V/cm)							
31	p	3/2	m=3/2+31	p	3/2	m=3/2+31	p	3/2	m=3/2	->	31	s	1/2	+31	s	1/2	+
32	P	3/2	m=1/2 F=		36.1429	V/CM	PENTE=		794.678	MHz/(V/cm)							
31	p	3/2	m=1/2+31	p	3/2	m=1/2+31	p	3/2	m=1/2	->	31	s	1/2	+31	s	1/2	+
32	P	3/2	m=3/2 F=		28.9660	V/CM	PENTE=		997.009	MHz/(V/cm)							
31	p	3/2	m=1/2+31	p	3/2	m=1/2+31	p	3/2	m=1/2	->	31	s	1/2	+31	s	1/2	+
32	P	3/2	m=3/2 F=		187.793	V/CM	PENTE=		-1497.80	MHz/(V/cm)							
31	p	3/2	m=1/2+31	p	3/2	m=1/2+31	p	3/2	m=3/2	->	31	s	1/2	+31	s	1/2	+
32	P	3/2	m=3/2 F=		30.4280	V/CM	PENTE=		944.366	MHz/(V/cm)							
31	p	3/2	m=1/2+31	p	3/2	m=1/2+31	p	3/2	m=3/2	->	31	s	1/2	+31	s	1/2	+
32	P	3/2	m=3/2 F=		217.456	V/CM	PENTE=		-902.252	MHz/(V/cm)							
31	p	3/2	m=3/2+31	p	3/2	m=3/2+31	p	3/2	m=3/2	->	31	s	1/2	+31	s	1/2	+
32	P	3/2	m=3/2 F=		32.0840	V/CM	PENTE=		893.555	MHz/(V/cm)							
31	p	3/2	m=1/2+31	p	3/2	m=3/2+31	p	3/2	m=3/2	->	31	s	1/2	+31	s	1/2	+
32	P	3/2	m=3/2 F=		248.370	V/CM	PENTE=		-2218.32	MHz/(V/cm)							
31	p	3/2	m=3/2+31	p	3/2	m=3/2+31	p	3/2	m=3/2	->	31	s	1/2	+31	s	1/2	+
32	P	3/2	m=3/2 F=		33.9726	V/CM	PENTE=		835.876	MHz/(V/cm)							
32	p	3/2	m=1/2+32	p	3/2	m=1/2+32	p	3/2	m=1/2	->	32	s	1/2	+32	s	1/2	+
33	P	3/2	m=1/2 F=		24.6652	V/CM	PENTE=		1017.15	MHz/(V/cm)							
32	p	3/2	m=1/2+32	p	3/2	m=1/2+32	p	3/2	m=1/2	->	32	s	1/2	+32	s	1/2	+
33	P	3/2	m=1/2 F=		203.546	V/CM	PENTE=		-2046.20	MHz/(V/cm)							
32	p	3/2	m=1/2+32	p	3/2	m=1/2+32	p	3/2	m=1/2	->	32	s	1/2	+32	s	1/2	+
33	P	3/2	m=1/2 F=		239.854	V/CM	PENTE=		2841.80	MHz/(V/cm)							
32	p	3/2	m=1/2+32	p	3/2	m=1/2+32	p	3/2	m=3/2	->	32	s	1/2	+32	s	1/2	+
33	P	3/2	m=1/2 F=		25.9843	V/CM	PENTE=		963.135	MHz/(V/cm)							
32	p	3/2	m=1/2+32	p	3/2	m=1/2+32	p	3/2	m=3/2	->	32	s	1/2	+32	s	1/2	+
33	P	3/2	m=1/2 F=		221.188	V/CM	PENTE=		-1006.165	MHz/(V/cm)							
32	p	3/2	m=1/2+32	p	3/2	m=1/2+32	p	3/2	m=3/2	->	32	s	1/2	+32	s	1/2	+
33	P	3/2	m=1/2 F=		238.243	V/CM	PENTE=		1035.00	MHz/(V/cm)							
32	p	3/2	m=1/2+32	p	3/2	m=3/2+32	p	3/2	m=3/2	->	32	s	1/2	+32	s	1/2	+
33	P	3/2	m=1/2 F=		27.4869	V/CM	PENTE=		906.372	MHz/(V/cm)							
32	p	3/2	m=1/2+32	p	3/2	m=3/2+32	p	3/2	m=3/2	->	32	s	1/2	+32	s	1/2	+
33	P	3/2	m=1/2 F=		247.061	V/CM	PENTE=		-389.099	MHz/(V/cm)							
32	p	3/2	m=3/2+32	p	3/2	m=3/2+32	p	3/2	m=3/2	->	32	s	1/2	+32	s	1/2	+
33	P	3/2	m=1/2 F=		29.2108	V/CM	PENTE=		851.440	MHz/(V/cm)							
32	p	3/2	m=3/2+32	p	3/2	m=3/2+32	p	3/2	m=3/2	->	32	s	1/2	+32	s	1/2	+
33	P	3/2	m=1/2 F=		242.095	V/CM	PENTE=		-2317.20	MHz/(V/cm)							
32	p	3/2	m=1/2+32	p	3/2	m=1/2+32	p	3/2	m=1/2	->	32	s	1/2	+32	s	1/2	+







# Table des matières

<b>Introduction générale</b> .....	1
<b>Chapitre I: Piège magnéto-optique à deux dimensions</b> .....	11
I - 1 Introduction .....	11
I - 2 Principes théoriques du refroidissement d'atomes par laser.....	13
I - 2 - 1 - Force de pression de radiation .....	14
I - 2 - 2 - Principe du ralentissement d'un jet atomique .....	18
I - 2 - 3 - Mélasse optique Doppler .....	19
3 - a - Force de mélasse .....	20
3 - b - Température limite.....	21
3 - c - Mélasse en configuration $\sigma^+ \sigma^-$ .....	23
I - 2 - 4 - Piège magnéto-optique .....	26
4 - a - Principe du piège magnéto-optique à une dimension .....	26
4 - b - Force de rappel .....	28
4 - c - Compression limite .....	30
I - 2 - 5 - Généralisation à des transitions plus complexes .....	33
5 - a - Mélasse Doppler .....	34
5 - b - Piège magnéto-optique Doppler .....	36
5 - c - Mélasse sub-Doppler .....	39
5 - d - Piège magnéto-optique sub-Doppler .....	42
I - 2 - 6 - Généralisation à plusieurs dimensions.....	45
6 - a - Cas à deux dimensions .....	46
6 - b - Cas à trois dimensions .....	47
I - 3 - Principe de l'expérience .....	51
I - 4 - Montage expérimental .....	53
I - 4 - 1 - Le jet atomique .....	53
1 - a - Le four atomique.....	53
1 - b - Caractéristiques du jet atomique.....	54
I - 4 - 2 - Les champs magnétiques .....	55
I - 4 - 3 - Montage optique .....	57
3 - a - Systèmes de diodes lasers à cavité étendue .....	58
$\alpha$ ) Généralités sur les diodes lasers libres .....	59
$\beta$ ) Diodes lasers à cavité étendue .....	65
$\gamma$ ) Montage expérimental .....	71
$\delta$ ) Mesures de caractérisations .....	74

3 - b - Montage optique de l'expérience .....	81
$\alpha$ ) Le faisceau de ralentissement.....	81
$\beta$ ) Le faisceau de repompage.....	82
$\gamma$ ) Le laser de piégeage .....	83
$\delta$ ) Le faisceau sonde .....	84
I - 4 - 4 - La détection .....	85
4 - a - Le fil chaud .....	85
3 - b - La caméra CCD .....	85
I - 5 - Résultats expérimentaux .....	86
I - 5 - 1 - Le jet ralenti .....	86
I - 5 - 2 - Le piège magnéto-optique 2D .....	88
2 - a - Le piège préliminaire .....	89
$\alpha$ ) Mesures de densité du jet comprimé .....	90
$\beta$ ) Temps de compression du jet.....	92
$\gamma$ ) Analyse des résultats expérimentaux .....	94
2 - b - Pièges magnéto-optiques 2D améliorés.....	96
$\alpha$ ) Orientation de la population atomique par pompage optique .....	97
$\beta$ ) Orientation de la population atomique par suivi adiabatique des lignes de champs magnétiques .....	99
$\gamma$ ) Interprétation à l'aide de simulations Monte-Carlo .....	100
I - 5 - 3 - Filamentation dans un piège 2D .....	103
I - 6 - Conclusion .....	107
Références du chapitre I.....	108
<b>Chapitre II: Spectroscopie de croisements évités dans une multiplicité d'états de Rydberg du césium.....</b>	<b>125</b>
II - 1 - Introduction .....	125
II - 2 - Propriétés de base d'atomes de Rydberg .....	126
II - 2 - 1 - Niveaux d'énergie et fonctions d'onde.....	127
1 - a - Approximation hydrogénique .....	127
1 - b - Effets à longue portée .....	129
1 - c - Les effets de courte portée .....	129
II - 2 - 2 - Variation avec n des différentes propriétés .....	133
2 - a - Structure fine et hyperfine .....	133
2 - b - Forces d'oscillateur .....	134
2 - c - Durée de vie radiative .....	136
2 - d - Polarisabilité .....	137
2 - e - Récapitulatif .....	138

II - 3 - Atomes de Rydberg dans un champ électrique externe .....	140
II - 3 - 1 - Effet Stark.....	140
1 - a - Structure Stark pour l'atome d'hydrogène .....	140
1 - b - Structure Stark pour les alcalins .....	144
$\alpha$ ) Méthode de calcul.....	145
$\beta$ ) Résultats.....	146
II - 3 - 2 - Couplage entre différents niveaux.....	148
2 - a - Croisements évités pour l'hydrogène .....	148
2 - b - Croisements évités pour le césium .....	148
2 - c - Notions théoriques sur les croisements évités .....	150
$\alpha$ ) L'effet Landau-Zener.....	150
$\beta$ ) Position du problème .....	152
$\gamma$ ) Effet du couplage sur les états stationnaires du système.....	154
$\delta$ ) Aspect dynamique du problème.....	156
$\epsilon$ ) Correction de la formule Landau - Zener .....	158
II - 3 - 3 - Ionisation par champ électrique .....	159
3 - a - Ionisation par champ pour l'atome d'hydrogène .....	159
3 - b - Ionisation par champ pour les alcalins.....	160
3 - c - Aspects expérimentaux de l'ionisation par champ pulsé.....	161
II - 4 - Études spectroscopiques de croisements évités pour le césium .....	164
II - 4 - 1 - Introduction .....	164
II - 4 - 2 - Spectroscopie laser d'un croisement évité .....	165
2 - a - Montage expérimental .....	166
2 - b - Résultats expérimentaux .....	166
II - 4 - 3 - Spectroscopie à haute résolution d'un croisement évité .....	168
3 - a - Montage expérimental .....	168
$\alpha$ ) La source atomique.....	169
$\beta$ ) Le laser d'excitation Rydberg .....	170
$\gamma$ ) Description des champs électriques appliqués .....	174
$\delta$ ) Détection et traitement du signal .....	177
3 - b - Principe de l'expérience .....	179
3 - c - Résultats expérimentaux .....	183
$\alpha$ ) Positions des croisements évités.....	184
$\beta$ ) Largeurs des croisements évités .....	189
II - 4 - 4 - Perspectives: Spectroscopie à l'aide de battements quantiques.....	200
II - 5 Conclusion .....	202
Références du chapitre II .....	204

<b>Chapitre III: Des collisions résonnantes entre atomes de Rydberg vers les effets collectifs dans un gaz de Rydberg gelé.</b> .....	211
III - 1 - Introduction .....	211
A - Collisions résonnantes entre atomes de Rydberg dans jet atomique .....	214
III - 2 - Principe élémentaire des collisions résonnantes entre atomes de Rydberg .....	214
III - 3 - Théorie des collisions résonnantes .....	216
III - 3 - 1 - Calcul simple de collisions dipôle-dipôle .....	216
III - 3 - 2 - Calcul basé sur une théorie à deux états .....	221
2 - a - Approximation par un puits de potentiel rectangulaire .....	223
2 - b - Approximation de la résonance exacte .....	226
$\alpha$ ) cas pour des transitions avec $\Delta m = 0$ .....	228
$\beta$ ) cas de transition où $\Delta m = 1$ .....	230
2 - c - Calculs numériques .....	231
III - 3 - 3 - Dépendance en vitesse des résonances de collisions .....	233
III - 4 - Principe de l'expérience .....	234
III - 5 - Montage expérimental .....	236
III - 5 - 1 - Four et jet atomique de césium .....	237
III - 5 - 2 - Lasers .....	237
2 - a - Laser 1er étage .....	238
2 - b - Laser 2ième étage .....	239
$\alpha$ ) Le laser pompe .....	239
$\beta$ ) Le laser à colorant .....	240
III - 5 - 3 - Champs électriques .....	243
III - 5 - 4 - Détection et traitement des signaux .....	243
III - 6 - Résultats expérimentaux .....	245
III - 6 - 1 - Collisions résonnantes dans un jet atomique thermique .....	245
1 - a - Collisions résonnantes du type $ns+ns \rightarrow (n-1)p+(n-1)d$ .....	245
1 - b - Collisions résonnantes du type $nd+nd \rightarrow (n-2)p+(n-3),k$ .....	246
1 - c - Collisions résonnantes du type $np+np \rightarrow (n+1)s+ns$ .....	250
III - 6 - 2 - Collisions résonnantes dans un jet refroidi .....	258
B - Effets collectifs dans un gaz de Rydberg gelé .....	262
III - 7 - Théorie des collisions résonnantes entre atomes de Rydberg froids .....	262
III - 7 - 1 - Quelques considérations théoriques .....	263
III - 7 - 2 - Collision résonnante vue comme un croisement évité. ....	267
III - 7 - 3 - Quelques ordres de grandeurs .....	270
III - 8 - Principe de l'expérience .....	273
III - 9 - Montage expérimental .....	274
III - 9 - 1 - Le piège magnéto-optique 3D .....	274
1 - a - Montage du piège magnéto-optique à trois dimensions .....	274

1 - b - Caractéristiques du piège magnéto-optique .....	275
III - 9 - 2 - Le dispositif Rydberg .....	276
2 - a - Les lasers d'excitation .....	276
2 - b - Détection et traitement des signaux .....	276
III - 10 - Résultats expérimentaux .....	277
III - 11 - Interprétation .....	280
III - 11 - 1 - Potentiel d'interaction.....	280
III - 11 - 2 - Probabilité de transition .....	281
III - 11 - 3 - Allures des raies de résonance .....	282
III - 11 - 4 - Modèle tenant compte de la délocalisation des atomes froids. ....	285
III - 12 - Conclusion.....	289
Références du chapitre III .....	291
 <b>Conclusion générale</b> .....	 295
 <b>Annexes</b> .....	 299
A: Publications.....	299
B: Listing du pogramme servant au calcul des diagrammes Stark .....	311
C: Positions des résonances de collisions à deux corps.....	319
D: Positions des résonances de collisions à trois corps .....	320



**Nom:** NOSBAUM  
**Prénom:** Patrick  
**Titre:** Contributions à l'étude des collisions et des interactions dans un gaz froid d'atomes de Rydberg de césium.

**Résumé:**

Le but de cette thèse consiste en l'étude de phénomènes de collisions et la mise en évidence d'effets collectifs entre atomes refroidis par laser. Elle est divisée en trois parties distinctes:

Pour pouvoir observer des collisions entre atomes froids, il est nécessaire de mettre en place des dispositifs livrant des échantillons d'atomes froids denses. Une première partie s'occupe des expériences de mise en place et d'amélioration d'un piège magnéto-optique à deux dimensions. Avec un tel dispositif, on a été capable de comprimer des jets ralentis sur un diamètre de 200 micromètres, tout en augmentant la densité d'un facteur 300.

Désirant connaître le comportement d'atomes de Rydberg en présence de champs électriques externes, on a entrepris des expériences spectroscopiques de croisements évités entre états Stark du césium. Le développement d'une nouvelle méthode profitant de la dépendance du chemin d'ionisation sur les croisements évités a permis de les caractériser jusqu'à des largeurs de 30 MHz.

La troisième partie de cette thèse détaille les expériences de collisions résonnantes entre atomes de Rydberg qui ont été réalisées sur des atomes de césium d'un jet thermique et d'un piège magnéto-optique à trois dimensions. En examinant les résultats obtenus, on observe une nette différence entre ces deux régimes de collisions. Les collisions thermiques sont correctement décrites en tant que processus de collision entre deux atomes isolés, présentant une section efficace et une vitesse de collision. Dans le cas d'atomes ultra-froids, la vitesse de collision devient nulle et le temps de collision excède la durée de vie des atomes de Rydberg impliqués. Ceux-ci voient une interaction constante qui dépend du nombre et de la densité de partenaires de collision. On assiste ainsi à des effets collectifs entre atomes de Rydberg qui sont figés dans une sorte de gaz gelé ou de cristal désordonné.

**Mots clés**

Refroidissement laser  
Piège magnéto-optique  
Diode laser à cavité étendue  
Atomes de Rydberg  
Effet Stark

Ionisation par champ  
Spectroscopie de croisements évités  
Collisions résonnantes  
Collisions ultra-froides  
Effets collectifs