

UNIVERSITE PARIS 6

THESE

Présentée pour obtenir

Le grade de DOCTEUR EN SCIENCES

par

Anthony BLETON

Sujet

**Contribution théorique et expérimentale à l'étude de la photoassociation
d'atomes de césium refroidis par un piège magnéto-optique**



UNIVERSITE PARIS 6

THESE

Présentée pour obtenir

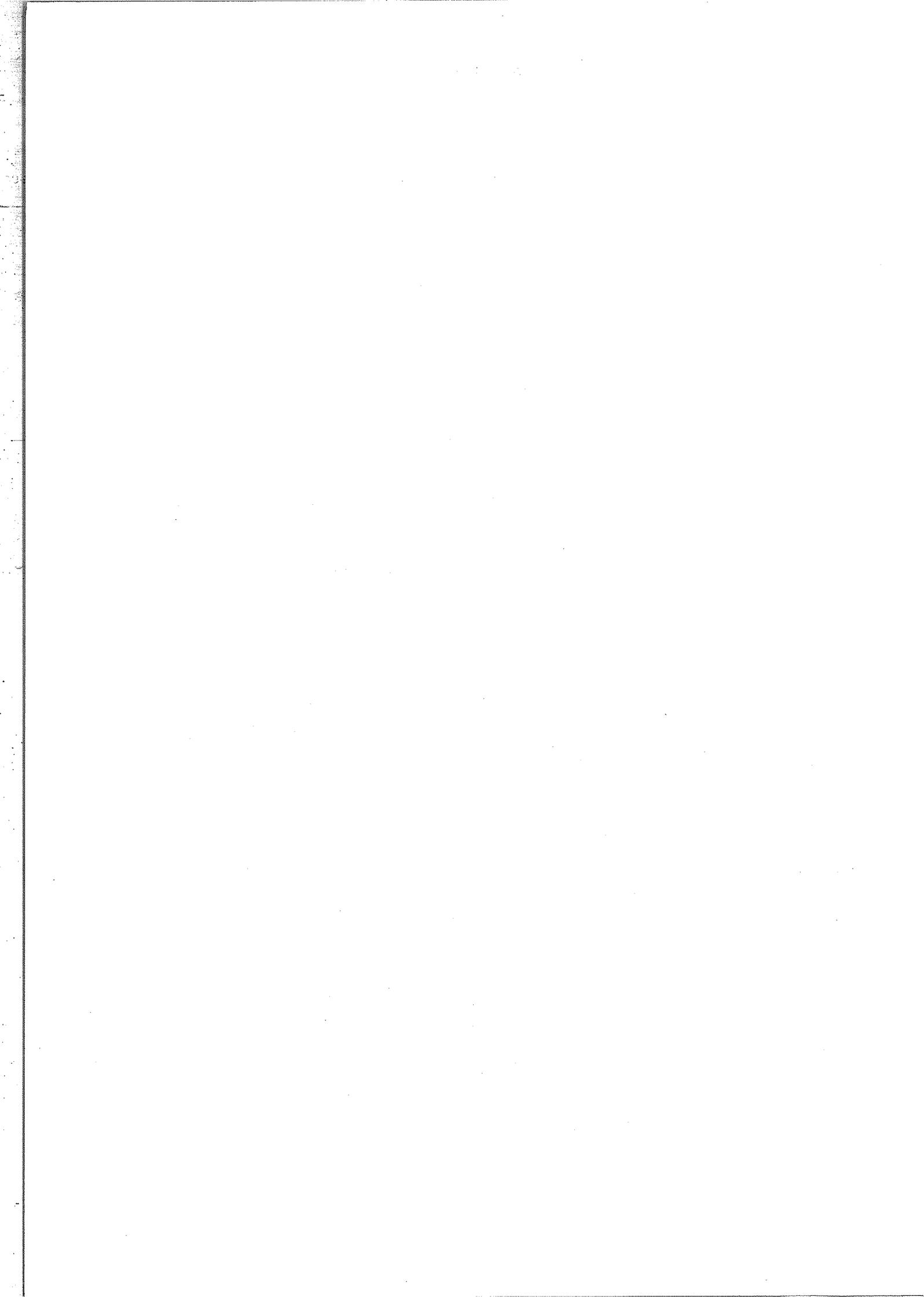
Le grade de DOCTEUR EN SCIENCES

par

Anthony BLETON

Sujet

**Contribution théorique et expérimentale à l'étude de la photoassociation
d'atomes de césium refroidis par un piège magnéto-optique**



Introduction générale

Le but de ce mémoire est l'étude théorique et expérimentale du phénomène de photoassociation dans un gaz d'atomes de césium refroidis dans un piège magnéto-optique. La photoassociation moléculaire est un processus collisionnel où deux atomes absorbent un photon pour créer une molécule excitée. Les collisions dans les pièges sont souvent considérées comme un handicap pour atteindre des températures très basses. Le cas de la photoassociation s'avère au contraire particulièrement intéressant à étudier dans le cas d'atomes ultra-froids, car l'absorption d'un photon au cours de la collision se fait de manière résonnante à l'énergie relative de la collision près ($\sim k_B T$ où T est la température des atomes). Il est ainsi possible d'exciter les niveaux rovibrationnels du dimère de l'atome froid et réaliser ainsi une spectroscopie à haute résolution de la molécule. On est en présence d'un phénomène d'une grande richesse, où les techniques de refroidissement de physique atomique donnent accès à des données de physique moléculaire qui elles-mêmes peuvent donner en retour accès de manière très précise à des paramètres de physique atomique comme la durée de vie. On peut obtenir à partir des données la forme des courbes de potentiel moléculaires à longue distance. De plus, les données récoltées dans ce type d'expériences permettent d'accéder à la longueur de diffusion d'un alcalin, paramètre important car il conditionne la possibilité de former un condensât de Bose-Einstein avec cet atome. Si cette longueur est négative, la condensation est considérée comme étant impossible ou fortement limitée [STO.94].

Au commencement de cette thèse, la photoassociation avait été réalisée uniquement avec l'atome de sodium pour des expériences à deux couleurs dans lesquelles le

Introduction

processus de photoassociation est suivi d'un processus d'ionisation permettant de détecter un ion moléculaire. Dans le même temps plusieurs groupes avaient débuté des expériences avec les différents alcalins ([HUL.95] pour le lithium, [STW.95] pour le potassium, [HEI.93] pour le rubidium). Le césium était donc un candidat tout désigné pour la photoassociation. Tout d'abord, nous venons de l'évoquer, pour des raisons de continuité avec ce qui avait été fait ou était en train de se faire : le césium est le dernier de la série des alcalins. Ensuite, la possibilité de construire un piège magnéto-optique efficace fut également déterminante. Sur le césium, les densités obtenues sont importantes, ce qui suggère un plus grand taux de collisions. Les températures sont très faibles, ce qui implique une plus grande précision dans les mesures. Physiquement, et c'est important, le césium présentait donc toutes les caractéristiques pour se lancer dans des expériences. Il faut ajouter à cela que le césium est un élément très important pour la métrologie. En effet, pour le développement des nouvelles horloges atomiques, la connaissance des caractéristiques de cet élément est primordial. Ajoutons à cela le fait que le césium a souvent été utilisé au laboratoire Aimé Cotton et en particulier dans le groupe des atomes froids (Expériences de transfert adiabatique [VAL.94], Entonnoir à atomes [DJE.95], collisions Rydberg [NOS.96]), cela m'a permis de bénéficier du savoir-faire expérimental et de la connaissance de cet atome.

Les expériences que nous avons menées ont nécessité la mise en place d'un appareillage important. La première phase a consisté en la mise au point d'un piège magnéto-optique (MOT). Cette étape a duré une année environ. Un piège magnéto-optique est un dispositif dont les caractéristiques sont maintenant bien maîtrisées. Il est constitué, en schématisant, de l'association de trois paires de lasers et de bobines créant un gradient de champ magnétique. Au centre du dispositif et sous certaines conditions, on peut former un amas gazeux d'atomes froids et denses. Les MOT peuvent être utilisés dans une multitude d'applications qui vont des miroirs à atomes aux fontaines atomiques. Il a fallu dans un deuxième temps installer le laser de photoassociation ainsi que le système de détection. Cette étape fut un peu plus rapide que la première. Ensuite seulement ont pu commencer les expériences proprement dites. Nous avons aussi abordé une approche théorique de la photoassociation.

Introduction

Ce mémoire comporte trois chapitres. Le premier décrit la molécule de Cs_2 et la physique qui lui est associée. Dans une première partie sont évoqués certains rappels de physique des molécules diatomiques. On traitera tout d'abord des groupes de symétrie associés à ces molécules. Les notations spectroscopiques seront ensuite explicitées en détail puis on résoudra l'équation de Schrödinger en effectuant l'approximation de Born-Oppenheimer. Puis on parlera des courbes de potentiel et des mouvements de vibrations nucléaires qui en découlent. Enfin, règles de sélection, cas de Hund et principe de Franck-Condon seront explicités. Dans une deuxième partie, on donnera les courbes de potentiel de la molécule de Cs_2 et ce sans structure fine, avec structure fine et les courbes avec structure hyperfines seront évoquées.

Le deuxième chapitre est consacré au piège magnéto-optique avec une première partie de présentation des mécanismes. Nous distinguerons deux types de mécanismes : les mécanismes Doppler et les mécanismes sub-Doppler. Nous commencerons par la présentation du principe de base du piège Doppler, en utilisant la transition la plus simple possible ($J=0 \rightarrow J=1$). Nous généraliserons ensuite ce modèle à une transition plus complexe ($J \rightarrow J+1$). Puis nous introduirons les mécanismes sub-Doppler dans les mélasses optiques et les pièges magnéto-optiques. Dans une deuxième partie, nous nous consacrerons uniquement aux aspects expérimentaux du piège magnéto-optique que nous avons réalisé. Une description pratique en sera faite et le dernier paragraphe sera consacré à sa caractérisation.

Le troisième et dernier chapitre traite de la photoassociation proprement dite. Une brève description en sera tout d'abord donnée : mécanismes, méthodes de détection et calcul de la constante moléculaire C_3 . Un deuxième paragraphe donne une revue des diverses expériences menées sur les autres alcalins. Puis nous donnons un descriptif du dispositif expérimental et de diverses méthodes expérimentales. Le paragraphe suivant traite le problème de la photoassociation de façon théorique. Il s'agit d'une approche quantique permettant de donner un ordre de grandeur du taux de molécules formées et qui tente de synthétiser les résultats obtenus sur tous les alcalins. Ceci nous permettra de conclure sur la photoassociation. Nous revenons finalement aux résultats expérimentaux en analysant un spectre obtenu. Une tentative d'explication est donnée dans le dernier paragraphe.

Introduction

Bibliographie de l'introduction

- [DJE.95] Jouda Djemaa, Thèse de doctorat, Université de Paris-Sud, (1995)
- [HEI.93] J.K. Miller, R. A. Cline et D. J. Heinzen, Phys. Rev. Lett., **71**, 2204 (1993)
- [HUL.95]¹ E. R. I. Abraham, W. I. McAlexander, C.A. Sackett, et Randall G. Hulet, Phys. Rev. Lett. **74**, 8, 1315 (1995)
- [LET.93] P.D. Lett, K.Helmerson, W.D.Phillips, L.P.Ratcliff, S.L.Rolston et M.E. Wagshul, Phys. Rev. Lett., **71**, 2200 (1993)
- [NOS.96] Patrick Nosbaum, Thèse de doctorat, Université de Paris-Sud, (1996)
- [STO.94] H.T.C. Stoof, Phys.Rev. A **49**, 3824, (1994)
- [STW.96] H. Wang, P.L. Gould, W.C. Stwalley, Phys. Rev. A, **A53**, (1996)
- [VAL.94] Constance Valentin, Thèse de doctorat, Université de Paris-Sud, (1994)

Introduction





1. La molécule de Cs₂

1.1 Introduction

Dans ce chapitre, nous présentons de façon générale la physique des molécules diatomiques. Il est en effet nécessaire de préciser certaines notations qui ne sont pas toujours familières aux physiciens atomistes.

La première partie rappelle leur classification et les notations utilisées, définies par les groupes de symétrie. On traite ensuite de la construction des états électroniques moléculaires à partir des états atomiques. Puis on rappelle l'équation de Schrödinger d'une molécule et les courbes de potentiel moléculaires qui en découlent. Les différents termes d'énergie (électronique, vibrationnelle et rotationnelle) sont introduits. On passe ensuite en revue diverses notions importantes telles que les anticroisements, les cas de Hund, les règles de sélection et le principe de Franck-Condon.

La deuxième partie traite plus spécifiquement de l'élément qui est le nôtre : le césium. Dans un premier paragraphe est présenté l'atome de césium et ses principales caractéristiques. Nous présentons ensuite les différentes courbes d'énergie de la molécule de Cs₂. Ceci est fait sans structure fine, puis avec structure fine et finalement avec structure hyperfine.

Chapitre 1 : La molécule de CS_2

1.2 Les molécules diatomiques

1.2.1 Groupes de symétrie et molécules

Une des méthodes les plus puissantes pour classer les molécules en fonction de leurs propriétés de symétrie repose sur l'utilisation des groupes de symétrie. Pour cela, on cherche toutes les opérations de symétrie qu'il est possible de réaliser sur une molécule donnée tout en la laissant inchangée. On entend par opération de symétrie dans les molécules les opérations suivantes :

- les rotations,
- les réflexions,
- les symétries autour d'un point,
- les symétries autour d'un axe,
- les symétries par rapport à un plan,
- les rotations impropres composées d'une rotation et d'une inversion.

En fonction des opérations de symétrie possibles, on dit que la molécule appartient à un groupe de symétrie (au sens mathématique du terme) qui conditionne ses propriétés. Les groupes de symétrie sont des concepts très connus et toutes leurs propriétés ont été explorées. Ils sont aussi largement utilisés pour la classification des solides et des particules.

Dans le cas des molécules diatomiques homonucléaires sans spin, les opérations de symétrie sont très nombreuses car les molécules diatomiques homonucléaires ont une structure extrêmement simple. Elles sont illustrées par la Figure 1-1.

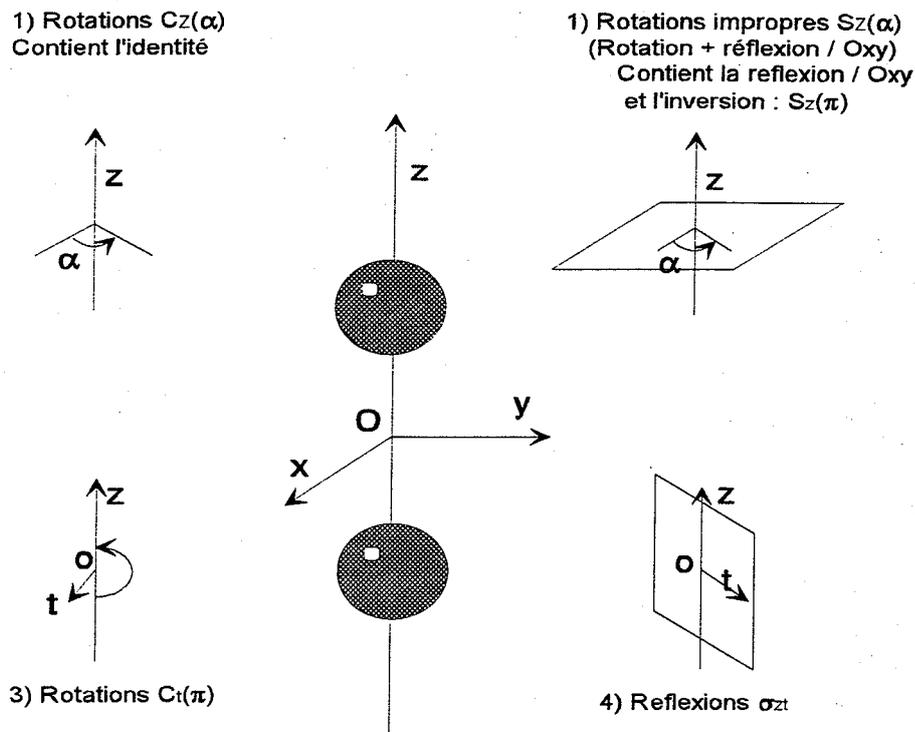


Figure 1-1: Opérations de symétrie que l'on peut effectuer sur une molécule diatomique homonucléaire.

Dans une molécule diatomique homonucléaire, le groupe contient les opérations suivantes :

1. Une infinité de rotations d'un angle quelconque autour de l'axe z notées $C_z(\alpha)$.
2. Une infinité de rotations impropres d'un angle quelconque autour de l'axe z notées $S_z(\alpha)$.
3. Une infinité de rotations d'un angle π autour d'axes t perpendiculaires à z et passant par l'origine notées $C_t(\pi)$.
4. Une infinité de réflexions par rapport à des plans contenant z et un axe t quelconque passant par l'origine notées C_{zt} .

A partir de là, il est très facile de déterminer à quel groupe de symétrie la molécule appartient. On utilise pour ce faire la table de la Figure 1-2 qui systématise la recherche. Pour une molécule de Cs₂ la détermination est très simple. La structure est linéaire et elle présente un centre d'inversion, ce qui nous donne d'après la figure 1.2 le groupe $D_{\infty h}$.

Chapitre 1 : La molécule de Cs_2

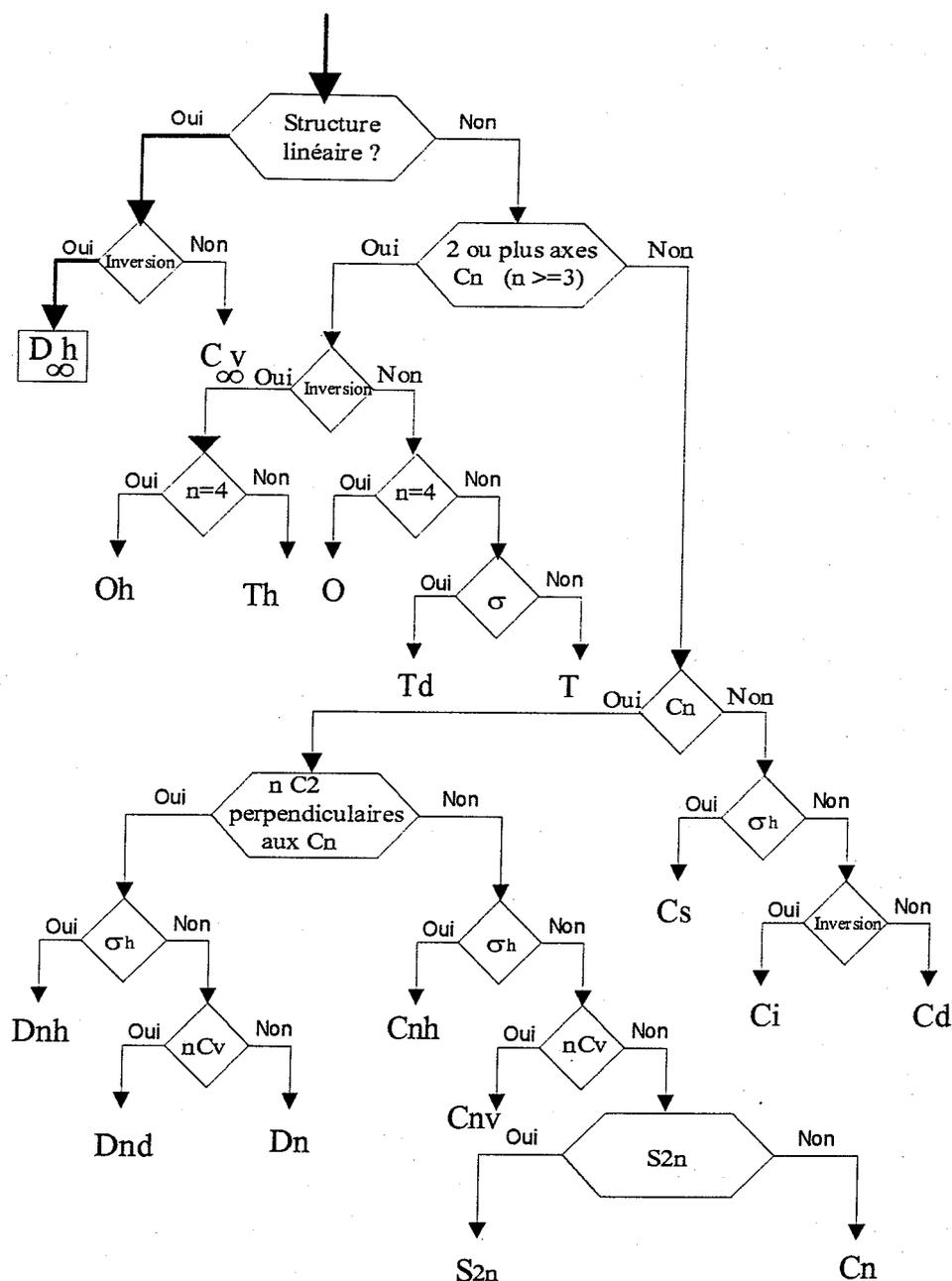


Figure 1-2 : Recherche systématique des groupes. (Figure extraite d'un cours de Licence de chimie quantique de Mr. BIGOT ENS Lyon 1990) La méthode de détermination est simple : Il suffit de suivre les flèches en déterminant à chaque embranchement si l'opération de symétrie s'applique à la molécule considérée. Les symboles en bout de flèches correspondent aux groupes possibles. Pour une molécule de Cs_2 , la structure est linéaire et présente un centre d'inversion (le milieu de l'axe internucléaire), ce qui nous donne le groupe $D_{\infty h}$.

1.2.2 Représentations irréductibles

On peut montrer que les différents types de symétrie que nous venons de définir sont associés aux différentes représentations¹ irréductibles du groupe de recouvrement $D_{\infty h}$ de la configuration d'équilibre des noyaux. Les représentations irréductibles de ce groupe sont désignées par :

$$\Sigma_g^+, \Sigma_u^+, \Sigma_g^-, \Sigma_u^-, \Pi_g, \Pi_u, \Delta_g, \Delta_u, \Phi_g, \Phi_u, \Gamma_g, \Gamma_u, \dots$$

Un exposé précis de ces représentations dépasse le cadre de cet exposé mais il est important de préciser que les notations des états électroniques des molécules diatomiques homonucléaires ont une correspondance exacte avec elles. Ce qui montre qu'il y a des propriétés de symétrie sous-jacentes ayant une signification profonde dans la classification des molécules. Mais précisons tout d'abord les notations s'appliquant à ces états électroniques.

1.2.3 Notations spectroscopiques

La notation utilisée en physique moléculaire pour les états électroniques des molécules diatomiques homonucléaires est la suivante :

$${}^{2S+1}[\Lambda]_{(u,g)}^{(\pm)}$$

C'est celle que nous utiliserons principalement pendant l'exposé.

¹ On appelle représentation à n dimensions d'un groupe un ensemble de matrices carrées à n lignes et n colonnes, associées chacune à une opération du groupe et possédant la même table de multiplication que le groupe.

Λ représente la projection du moment orbital L de l'ensemble des électrons sur l'axe internucléaire Oz (Figure 1-3).

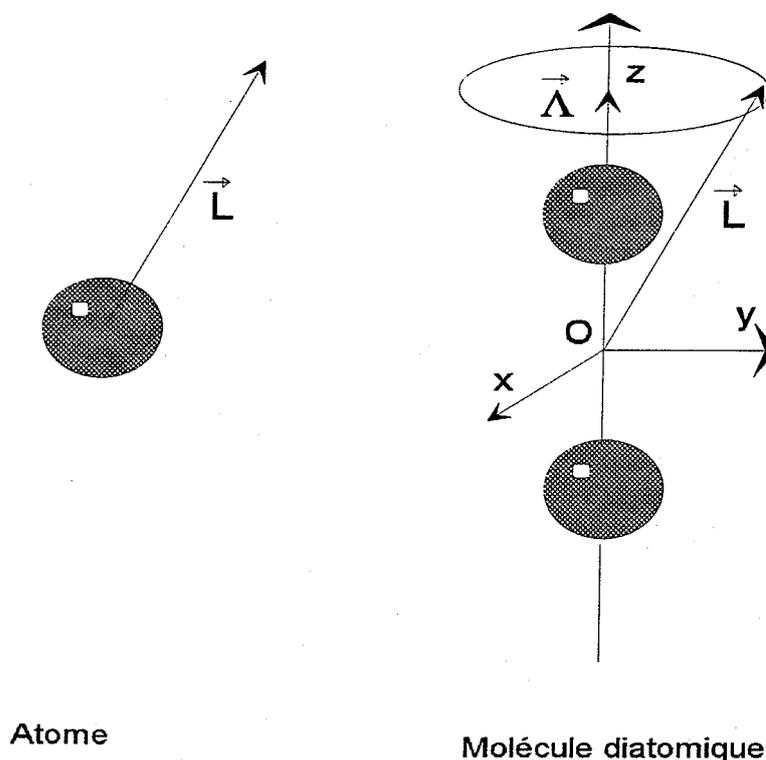


Figure 1-3 : Représentation graphique de la projection du moment orbital de la molécule sur l'axe internucléaire et comparaison à la situation de l'atome où le moment orbital reste fixe dans l'espace, du fait de sa commutation avec l'hamiltonien du système

Dans la suite, on supposera jusqu'à nouvel ordre que le spin total électronique reste spectateur. Dans un atome, le champ de force a la symétrie sphérique, donc \vec{L} conserve une direction fixe dans l'espace. Dans une molécule diatomique, le champ de force possède une symétrie de révolution autour de l'axe internucléaire z. La direction de \vec{L} n'est plus fixe dans l'espace : il y a précession de \vec{L} autour de z. La situation est analogue à celle d'un atome placé dans un champ électrique fort. Dans un état électronique donné, la projection de L sur Oz a une valeur bien définie égale à M_L avec

$$M_L = L, L-1, \dots, -L+1, -L$$

Chapitre 1 : La molécule de Cs₂

L étant le nombre quantique qui caractérise le module de \vec{L} (égal à $\sqrt{L(L+1)}$). Pour des raisons de symétrie, deux états associés à des états M_L et $-M_L$ possèdent la même énergie. L'énergie dépend donc de la valeur de

$$\Lambda = |M_L|$$

Suivant les valeurs de Λ , on utilisera les symboles suivants :

Λ	0	1	2	3	...
Symbole	Σ	Π	Δ	Φ	...

Le choix d'un signe + ou - est utilisé uniquement lorsque $\Lambda = 0$. On distingue les états Σ^+ et les états Σ^- qui sont respectivement symétriques et antisymétriques vis à vis d'une réflexion par rapport à un plan contenant l'axe internucléaire Oz.

Dans le cas des molécules diatomiques homonucléaires, O est un centre de symétrie pour la configuration nucléaire ; il faut compléter les symboles $\Sigma^+, \Pi, \Delta, \Phi, \dots$ par un indice g ou u¹. Lorsqu'on effectue une inversion par rapport à ce centre de symétrie, les états $\Sigma_g^+, \Sigma_g^-, \Pi_g, \Delta_g, \Phi_g, \Gamma_g, \dots$ sont symétriques et les états $\Sigma_u^+, \Sigma_u^-, \Pi_u, \Delta_u, \Phi_u, \Gamma_u, \dots$ sont antisymétriques.

On constate que l'on retrouve toutes les représentations irréductibles évoquées plus haut :

$$\Sigma_g^+, \Sigma_u^+, \Sigma_g^-, \Sigma_u^-, \Pi_g, \Pi_u, \Delta_g, \Delta_u, \Phi_g, \Phi_u, \Gamma_g, \Gamma_u, \dots$$

¹ g et u sont utilisés comme contractions de "gerade" et "ungerade" qui veulent dire pair et impair en allemand.

1.2.4 Solutions à longue distance internucléaire

Pour déterminer quels sont les états électroniques d'une molécule diatomique donnée, et donc trouver les différentes valeurs de Λ et de S , trois méthodes peuvent être utilisées :

1. On peut considérer l'atome fictif obtenu lorsque la distance internucléaire devient nulle et déduire les états moléculaires de ceux de l'atome de réunion
2. On peut considérer individuellement les électrons de la molécule et déterminer l'état de chacun. On obtient alors les différents états moléculaires à partir des différentes configurations électroniques.
3. On peut enfin considérer la configuration dans laquelle les deux atomes sont très éloignés l'un de l'autre et construire les états de la molécule à partir de ceux des atomes séparés.

C'est la troisième méthode que nous retiendrons. D'une part car partir des états atomiques est le plus naturel pour un atomiste. Mais surtout parce que les expériences de photoassociation impliquent des atomes qui vont former des molécules à très grande distance internucléaire.

1.2.5 Couplage des moments orbitaux

Désignons par \vec{L}_1 et \vec{L}_2 les moments angulaires électroniques orbitaux des deux atomes. Lorsqu'on rapproche les deux atomes l'un de l'autre pour former la molécule, chacun est soumis à un champ électrique dirigé suivant la direction de l'axe internucléaire z et créé par les charges situées dans l'autre atome. Il y a précession de \vec{L}_1 et de \vec{L}_2 autour de z . Désignons par M_{L_1} et M_{L_2} les projections de \vec{L}_1 et de \vec{L}_2 sur z . (Figure 1-4) Les valeurs possibles de M_{L_1} et M_{L_2} sont :

$$M_{L_1} = L_1, L_1 - 1, L_1 - 2, \dots, -L_1$$

$$M_{L_2} = L_2, L_2 - 1, L_2 - 2, \dots, -L_2$$

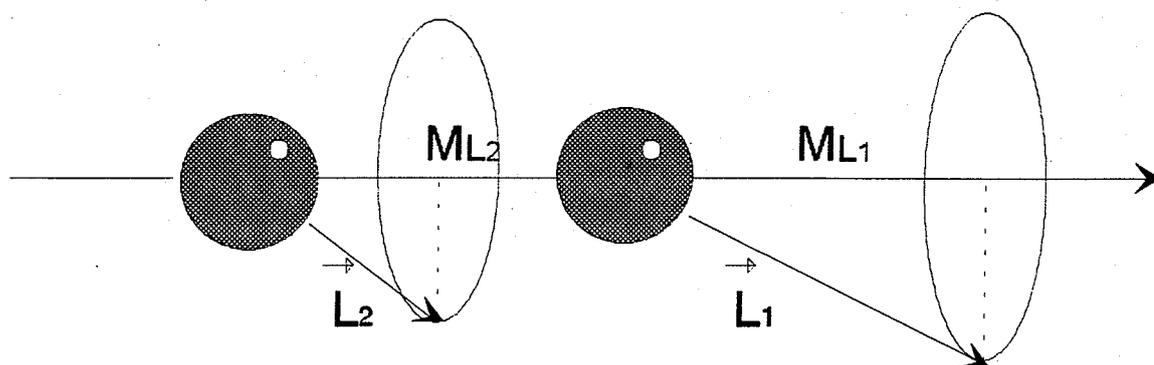


Figure 1-4 : Projection sur l'axe z des moments orbitaux

Le mouvement orbital des électrons dans la molécule est caractérisé par un moment angulaire \vec{L} dont la projection sur z est égale à M_L . On peut écrire :

$$M_L = M_{L_1} + M_{L_2}$$

d'où :

$$\Lambda = |M_{L_1} + M_{L_2}|$$

Il est facile d'obtenir les valeurs de Λ connaissant celles de L_1 et L_2 . Trois exemples sont traités sur la Figure 1-5.

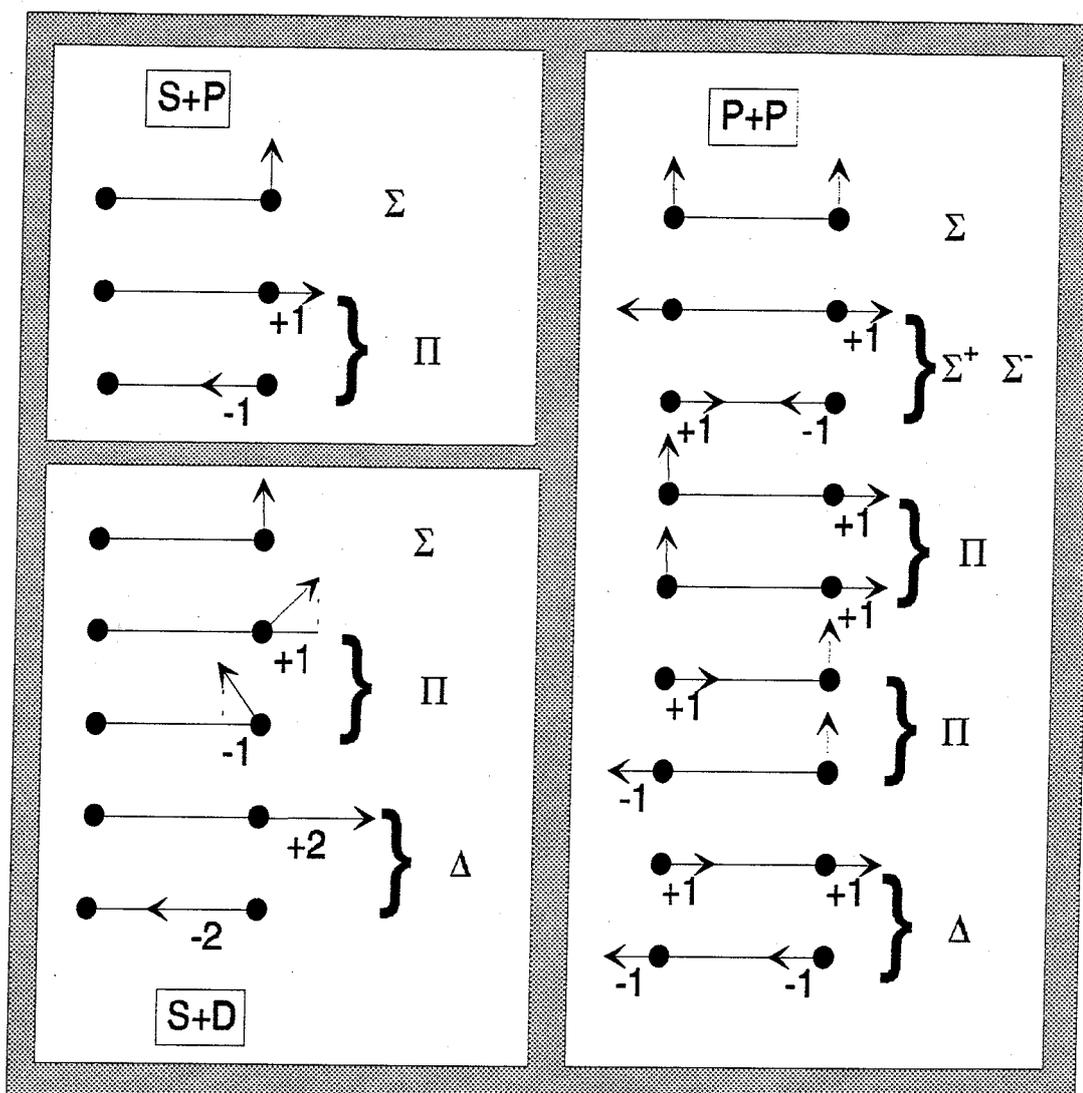


Figure 1-5 : Couplage des moments orbitaux dans une molécule diatomique sur 3 exemples

Exemple S+P : atomes dans des états S et P

$$L_1 = 0 \quad M_{L_1} = 0$$

$$L_2 = 1 \quad M_{L_2} = 0, \pm 1$$

$$M_L = 0, \pm 1$$

$$\Lambda = 0, 1$$

On obtient un état Σ non dégénéré et un état Π

Exemple S+D : atomes dans des états S et D

$$\begin{aligned} L_1 &= 0 & M_{L_1} &= 0 \\ L_2 &= 2 & M_{L_2} &= 0, \pm 1, \pm 2 \\ M_L &= 0, \pm 1, \pm 2 \\ \Lambda &= 0, 1, 2 \end{aligned}$$

On obtient un état Σ , un état Π et un état Δ

Exemple P+P : atomes dans des états P et P

$$\begin{aligned} L_1 &= 1 & M_{L_1} &= 0, \pm 1 \\ L_2 &= 1 & M_{L_2} &= 0, \pm 1, \\ M_L &= 0, 0, 0, \pm 1, \pm 1, \pm 2 \\ \Lambda &= 0, 1, 2 \end{aligned}$$

On obtient trois états Σ , deux états Π et un état Δ .

1.2.6 Couplage des spins

Désignons par \vec{S}_1 et \vec{S}_2 les spins électroniques des deux atomes. Leur résultante est le spin électronique \vec{S} de la molécule. La règle de couplage de deux moments angulaires permet d'obtenir les valeurs possibles de \vec{S} en fonction de celles de \vec{S}_1 et \vec{S}_2 :

$$S = (S_1 + S_2), (S_1 + S_2 - 1), \dots, |S_1 - S_2|$$

On en déduit immédiatement les multiplicités des états moléculaires en fonction de celles des atomes séparés. Dans le cas de deux atomes alcalins où on n'a qu'un électron actif sur chaque atome, on aura la combinaison de deux états doublets, ce qui va donner des états singulet

$S = 0$ antisymétriques ($|\uparrow\uparrow\rangle, |\downarrow\downarrow\rangle$ et $\frac{1}{\sqrt{2}}(|\uparrow\downarrow\rangle + |\downarrow\uparrow\rangle)$) ou triplet $S = 1$ symétriques

($\frac{1}{\sqrt{2}}(|\uparrow\downarrow\rangle - |\downarrow\uparrow\rangle)$).

1.2.7 Propriétés de symétrie

Deux propriétés doivent être étudiées : La symétrie par rapport à un plan passant par l'axe Oz (caractère + ou -) et la symétrie par rapport au centre de symétrie O (caractère g ou u). Il faut tout d'abord savoir si les états Σ sont du type Σ^+ ou Σ^- . Deux cas sont à distinguer :

- Etats obtenus à partir de valeurs nulles de M_{L_1} et M_{L_2} . Le type + ou - est lié à la parité des deux états atomiques. L'état est Σ^+ ou Σ^- suivant que $L_1 + L_2 + \Sigma l_{i_1} + \Sigma l_{i_2}$ est pair ou impair (ceci provient des propriétés des harmoniques sphériques). Dans une molécule diatomique d'alcalins, par exemple, cette somme vaut 0 si on est dans deux états S au départ donc on ne formera que des états Σ^+ dans ce cas.
- Etats obtenus à partir de valeurs opposées de M_{L_1} et M_{L_2} . De tels états apparaissent toujours par paires. Une illustration en est fournie par le schéma P+P. Les états correspondant à ces configurations ne sont ni Σ^+ ni Σ^- mais on peut former à partir d'eux une combinaison linéaire de type Σ^+ et une combinaison linéaire de type Σ^- .

Il faut ensuite déterminer le caractère g ou u de la molécule formée. A priori, les deux sont possibles. Mais la fonction d'onde totale doit être antisymétrique par échange des deux électrons. Donc, dans les cas où les atomes sont dans le même état de départ (S+S ou P+P par exemple), cela empêchera la formation d'états où les fonction d'onde de spin de moments angulaires sont toutes deux symétriques ou toutes deux antisymétriques. On exclura alors la formation d'états ($S = 1, g$) et ($S = 0, u$). Les possibilités de formation de molécules sont toutes résumées dans le Tableau 1-1 .

	S+S	S+P	S+D	P+P
$^1\Sigma_g^+$	X	X	X	X
$^1\Sigma_u^+$		X	X	
$^3\Sigma_g^+$		X	X	
$^3\Sigma_u^+$	X	X	X	X
$^1\Sigma_u^-$				X
$^3\Sigma_g^-$				X
$^1\Pi_g$		X	X	X
$^1\Pi_u$		X	X	X
$^3\Pi_g$		X	X	X
$^3\Pi_u$		X	X	X
$^1\Delta_g$			X	X
$^1\Delta_u$			X	
$^3\Delta_g$			X	
$^3\Delta_u$			X	X

Tableau 1-1 : Récapitulatif de toutes les possibilités de formation de molécules diatomiques homonucléaires à partir de deux atomes dans des états atomiques S, P et D.

1.2.8 Equation de Schrödinger

En termes de mécanique classique, on peut dire que les électrons, étant beaucoup plus légers que les noyaux sont animés de vitesses beaucoup plus grandes que ces derniers. Si nous nous intéressons au mouvement des électrons, on peut considérer un intervalle de temps pendant lequel les électrons auront parcouru plusieurs fois leur orbite sans que les noyaux se

soient déplacés de façon appréciable. Ceci suggère l'utilisation d'un modèle dans lequel on étudiera le mouvement des électrons en considérant que les noyaux sont immobiles. Si maintenant nous nous intéressons au mouvement des noyaux, il nous faut considérer un intervalle de temps suffisamment long pour que ceux-ci se déplacent de façon notable. Pendant cet intervalle de temps, les électrons décrivent leur orbite un grand nombre de fois avec des vitesses élevées ; pour étudier le mouvement des noyaux il est illusoire de vouloir suivre les électrons dans leurs déplacements ; il suffit de connaître la probabilité de présence de chaque électron dans telle ou telle région de l'espace et d'en déduire la valeur moyenne de l'attraction électrostatique exercée sur les noyaux par le nuage électronique. Ceci suggère d'étudier le mouvement des noyaux dans un champ de force résultant de leurs répulsion mutuelles et de l'attraction moyenne exercée sur eux par le nuage électronique.

L'utilisation des deux modèles que nous venons de définir est souvent appelée *approximation adiabatique* ou *approximation de Born-Oppenheimer*.

Si nous limitons notre étude au mouvement des électrons, les seules variables de position sont les coordonnées des électrons. Les coordonnées des noyaux seront considérées comme des paramètres constants. Autrement dit, le calcul sera effectué pour une configuration nucléaire donnée.

Le potentiel d'interaction inter atomique étant défini à une constante près, on pourra, dans notre modèle électronique, écrire le potentiel comme :

$$V_e = \sum_{i < i'} \frac{e^2}{r_{ii'}} - \sum_{IJ} \frac{Z_J e^2}{r_{IJ}} \quad (1.1)$$

où $r_{ii'}$ désigne la distance séparant deux électrons, r_{IJ} la distance séparant un électron et un noyau, Z_J la charge d'un noyau et e^2 la charge réduite de l'électron au carré.

Pour ce modèle, l'équation de Schrödinger s'écrit donc :

$$\frac{\hbar^2}{2m} \sum_i \Delta_i \psi_e + (E_e - V_e) \psi_e = 0 \quad (1.2)$$

où Δ_i désigne le laplacien sur les coordonnées du $i^{\text{ème}}$ électron, m la masse de l'électron, ψ_e la fonction d'onde des électrons, E_e une constante d'énergie et V_e le potentiel défini plus haut. Après avoir effectué le calcul pour une configuration nucléaire donnée, on peut l'effectuer pour une autre configuration des noyaux, on obtiendra évidemment une solution ψ_e différente. Il en résulte que les coordonnées des noyaux doivent être considérés comme des paramètres dont dépendent ψ_e et E_e .

Etudions maintenant le mouvement des noyaux. Le potentiel peut être défini comme une somme de deux termes :

$$V_n = \sum_{J < J'} \frac{Z_J Z_{J'} e^2}{r_{JJ'}} + E_e \quad (1.3)$$

Le premier correspond à la répulsion coulombienne des noyaux, le second à la valeur moyenne de l'attraction exercée sur les noyaux par le nuage électronique. Pour ce second terme nous utilisons la valeur propre E_e obtenue dans le problème électronique. Pour une configuration nucléaire donnée et pour un état électronique donné, E_e est égale à la valeur moyenne de l'énergie de l'ensemble des électrons interagissant avec la configuration nucléaire considérée et représente donc l'énergie potentielle moyenne associée à l'attraction coulombienne exercée par les électrons sur les noyaux. L'équation de Schrödinger s'écrit pour le modèle nucléaire :

$$\sum_J \frac{\hbar^2}{2m_J} \Delta_J \psi_n + (E_n - V_n) \psi_n = 0 \quad (1.4)$$

La fonction d'onde ψ_n est fonction des coordonnées des noyaux, l'énergie E_n est une constante, m_J est la masse du noyau J et Δ_J est le laplacien sur les coordonnées du noyau J. Alors que les fonctions d'onde électroniques sont caractérisées par les valeurs des nombres quantiques électroniques et dépendent à la fois des coordonnées des électrons et des coordonnées des noyaux, les fonctions d'onde nucléaires ne dépendent que des coordonnées des noyaux mais elles sont caractérisées par les valeurs des nombres quantiques électroniques et nucléaires.

1.2.9 Hamiltonien du système et approximation de Born-Oppenheimer

La molécule que nous étudions est constituée de deux noyaux A et B de masse identique M , de charge Z et de Z électrons de masse m . Le hamiltonien s'écrit dans le repère du laboratoire :

$$H = H_0 + H_1$$

avec :

$$H_0 = \frac{p_A^2}{2M_A} + \frac{p_B^2}{2M_B} + \sum_{i=1}^Z \frac{p_i^2}{2m} + \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \left[\frac{Z^2}{|\vec{R}_A - \vec{R}_B|} + \frac{1}{2} \sum_{i \neq j} \frac{1}{|\vec{R}_i - \vec{R}_j|} - \sum_i \left(\frac{Z}{|\vec{R}_A - \vec{R}_i|} + \frac{Z}{|\vec{R}_B - \vec{R}_i|} \right) \right] \quad (1.5)$$

$$H_0 = T_N + T_e + V$$

T_N étant l'énergie cinétique des noyaux

T_e l'énergie cinétique des électrons

V le potentiel d'interaction électrostatique entre les particules chargées du système.

H_1 regroupe les autres interactions (spin-orbite, spin-spin,...)

H est indépendant d'une translation quelconque du système total. En utilisant un nouveau système de coordonnées : $\{\vec{R}_C, \{\vec{R}_\alpha\}, \alpha = 1, \dots, Z-1\}$ à la place de $\{\{\vec{R}_i\}, \vec{R}_A, \vec{R}_B, i = 1, \dots, Z\}$, \vec{R}_C étant le rayon vecteur du centre de masse C du système total, on peut écrire les fonctions d'onde sous la forme $\mathcal{A}(\vec{R}_C, \{\vec{R}_\alpha\}) = \psi(\{\vec{R}_\alpha\}) \times \chi(\vec{R}_C)$ et l'énergie cinétique $T = T_e + T_N$ sous la forme $T = T_e + T_N = p_C^2 / 2M + T_0$. M étant la masse totale du système.

Par la suite, on se place dans un état tel que $\vec{p}_c = \vec{0}$ et $T = T_0$.

L'équation de Schrödinger, indépendante du temps, à résoudre est :

$$(T_0 + V + H_1) \psi = E \psi$$

Pour déterminer E et ψ , on est amené à faire un certain nombre d'approximations.

Dans un premier temps, on ne tient pas compte de H_1 et l'on cherche à résoudre $H_0 \psi = E \psi$.

Une première approximation consiste à confondre en un même point le centre de masse du système total C et le centre de masse des deux noyaux désormais noté O ($M_A \gg m$ et $M_B \gg m$). L'énergie cinétique totale s'écrit alors :

$$T = T_N + T_e = \frac{p^2}{2\mu} + \sum \frac{p_i^2}{2m}$$

(1.6)

avec

$$\mu = \frac{M_A M_B}{M_A + M_B}$$

\vec{p} est l'impulsion de la particule relative associée aux deux noyaux dans le référentiel du centre de masse nucléaire (particule correspondant à la coordonnée \vec{R}).

\vec{p}_i est l'impulsion de l'électron i dans le même référentiel : la position de l'électron i est repérée dans ce référentiel par le vecteur \vec{r}_i .

Le potentiel s'écrit dans ce référentiel :

$$V(\vec{r}_i, R) = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \left[\frac{Z^2}{R} + \frac{1}{2} \sum_{i \neq j} \frac{1}{|\vec{r}_i - \vec{r}_j|} - \sum_i \left(\frac{Z}{\left| \vec{r}_i - \frac{M_B}{M} \vec{R} \right|} + \frac{Z}{\left| \vec{r}_i + \frac{M_A}{M} \vec{R} \right|} \right) \right]$$

(1.7)

On voit dans l'expression de H_0 , que les mouvements des électrons et des noyaux sont liés. L'approximation de Born-Oppenheimer (notée B.O.) consiste à découpler ces mouvements en considérant les noyaux fixes pour étudier le mouvement des électrons, la position des noyaux étant alors prise comme paramètre et non comme variable. Cela se justifie par le fait que l'électron de masse m beaucoup plus faible que m se déplace plus rapidement que les noyaux : les deux noyaux paraissent fixes par rapport à l'électron. Le nuage électronique suit adiabatiquement le mouvement des noyaux.

On peut alors factoriser la fonction d'onde :

$\psi_{total} = \psi_e(\vec{r}_i, \vec{R}), \psi_n(\vec{R})$ (Les coordonnées \vec{r}_i des électrons doivent être rapportées ici à un référentiel où \vec{R} est fixe).

On résout tout d'abord l'équation de Schrödinger électronique :

$$H_e \psi_e = E_e(R) \psi_e \quad (1.8)$$

avec

$$H_e = T_e + V(\vec{r}_i, R)$$

Puis on cherche les solutions de :

$$[T_n + E_e(R)] \psi_n = E \psi_n \quad (1.9)$$

La résolution de l'équation (1.8) donne les courbes de potentiel de la molécule considérée avec R comme paramètre. Dans le cadre de notre présentation, on a une courbe pour chaque état électronique $^{2S+1}[\Lambda]_{(u,g)}^{(\pm)}$.

1.2.10 Courbes de potentiel

La description explicite de la méthode de calcul des courbes de potentiel dépasse le cadre de cette étude. Il s'agit en effet de méthodes de chimie quantique assez complexes demandant des calculs souvent lourds. Le calcul est encore plus compliqué quand le nombre de niveaux considérés augmente. Voici, à titre d'exemple, les courbes de potentiel des deux états de plus basse énergie de la molécule de H_2 (Figure 1-6)

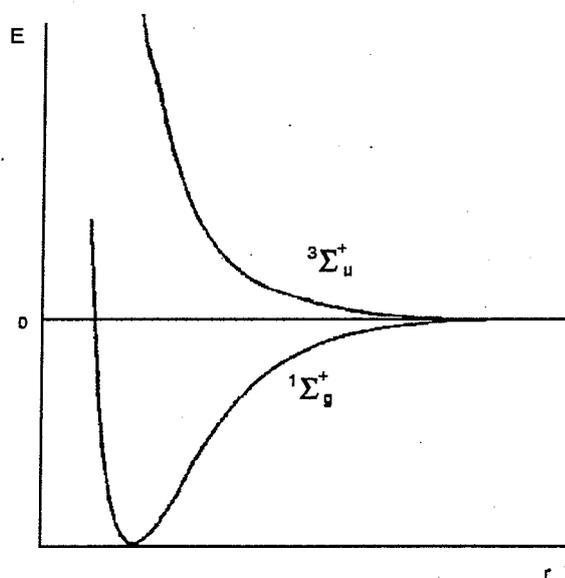


Figure 1-6 : Courbes de potentiel obtenues par calcul perturbatif à partir des deux atomes séparés

On constate qu'on est en présence d'un état attractif et d'un état répulsif. L'état répulsif est celui qu'on obtient avec deux atomes séparés ayant des fonctions d'onde de signes différents (état u) et l'état attractif est celui qu'on obtient avec deux atomes séparés ayant des fonctions d'onde de signes identiques (état g). La configuration électronique est représentée sur la Figure 1-7.

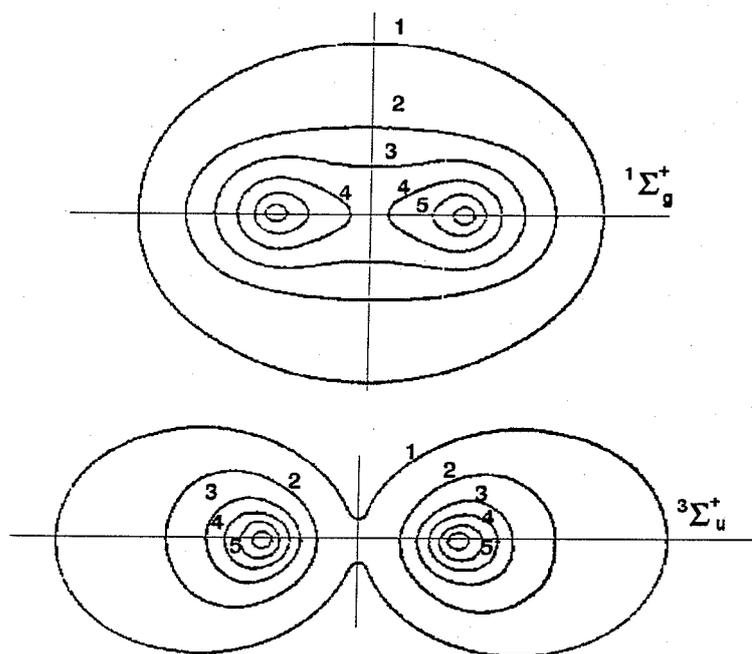


Figure 1-7 : Probabilité de présence d'un électron dans la molécule H₂. Le premier schéma représente une molécule où les deux atomes sont dans des états dont les fonctions d'onde ont des signes identiques et le deuxième schéma des fonctions d'onde de signes différents. Les chiffres indiqués correspondent à la densité de probabilité et sont donnés en unités arbitraires.

1.2.11 Mouvement nucléaire et niveaux vibrationnels

Pour étudier le mouvement des noyaux, on se place dans un état électronique bien défini $^{2S+1}[\Lambda]_{(u,g)}^{(\pm)}$, en supposant le problème électronique résolu.

L'équation de Schrödinger à étudier est :

$$\left[\langle k\Lambda | T_n | k\Lambda \rangle + E_{ek\Lambda}(R) \right] \psi_n(\vec{R}) = E \psi_n(\vec{R}) \quad (1.10)$$

Cela s'écrit, N étant le moment cinétique orbital total de la molécule

$$\left[\frac{\hbar^2}{2\mu R^2} \langle k\Lambda | N^2 | k\Lambda \rangle - \frac{\hbar^2}{2\mu R^2} \frac{\partial}{\partial R} R^2 \frac{\partial}{\partial R} + \frac{\hbar^2}{2\mu R^2} \left(\langle k\Lambda | L^2 | k\Lambda \rangle - 2\Lambda^2 \right) + E_{ek\Lambda}(R) - E \right] \psi_n(\vec{R}) = 0 \quad (1.11)$$

$$E_{ek\Lambda}(R) = \left[\frac{\hbar^2}{2\mu R^2} \left(\langle k\Lambda | L^2 | k\Lambda \rangle - 2\Lambda^2 \right) + E_{ek\Lambda}(R) - E \right] \text{ est une fonction de } R, \text{ une fois } k\Lambda \text{ fixés,}$$

$\left[\frac{\hbar^2}{2\mu R^2} \langle k\Lambda | N^2 | k\Lambda \rangle \right]$ agit sur la direction de \vec{R} et $\left[\frac{\hbar^2}{2\mu R^2} \frac{\partial}{\partial R} R^2 \frac{\partial}{\partial R} \right]$ agit sur la distance internucléaire R .

Il s'ensuit que l'on peut écrire $\psi_n(\vec{R})$ sous la forme :

$$\psi_n(\vec{R}) = \psi_{rot}(\theta, \varphi) \cdot \psi_{vib}(R)$$

L'ensemble des deux noyaux décrit un mouvement de rotation (variables θ et φ) et un mouvement de vibration le long de l'axe internucléaire (variable R). L'équation que vérifie la fonction d'onde de rotation est :

$$\frac{\hbar^2}{2\mu R^2} \langle k\Lambda | N^2 | k\Lambda \rangle \psi_{rot} = C \psi_{rot} \quad (1.12)$$

R étant fixé. L'énergie de rotation de la molécule est alors $C = \frac{\hbar^2}{2\mu R^2} N(N+1)$. Etant donné que l'on reste dans l'état électronique $^{2S+1}|\Lambda|$, N est un nombre entier supérieur ou égal à $|\Lambda|$: $N = |\Lambda|, |\Lambda| + 1, \dots$

Le terme spectral de rotation de la molécule est noté :

$$F(N) = \frac{E_{rot}}{hc} = BN(N+1)$$

avec

$$B = \frac{h}{8\pi^2 \mu R^2 c}$$

que l'on exprime en cm^{-1} .

L'équation qu'il reste à résoudre peut s'écrire :

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2\mu R^2} \frac{\partial}{\partial R} R^2 \frac{\partial}{\partial R} + U_N(R) \right] \psi_{vib} = E \psi_{vib} \quad (1.13)$$

avec

$$U_N(R) = \frac{\hbar N(N+1)}{2\mu R^2} + E_{ek\Lambda}(R).$$

On pose $\psi_{vib}(R) = \frac{1}{R} \phi_{vib}(R)$ et il vient :

$$-\frac{\hbar^2}{2\mu} \frac{d^2}{dR^2} \phi_{vib}(R) + U_N(R) \phi_{vib}(R) = E \phi_{vib}(R).$$

On s'intéresse dans ce paragraphe à la seule vibration de la molécule : Cas où $N = 0$.

L'équation devient :

$$\frac{d^2}{dR^2} \phi_{vib}(R) - \frac{2\mu}{\hbar^2} E'_{ek\Lambda}(R) \phi_{vib}(R) = \frac{2\mu}{\hbar^2} E \phi_{vib}(R) \quad (U_0(R) = E'_{ek\Lambda}(R)).$$

Soit R_e la distance internucléaire à l'équilibre. On peut écrire en première approximation :

$$U_0(R) = U_0(R_e) + \frac{1}{2} U_0''(R_e) (R - R_e)^2 \quad (1.14)$$

L'équation (1.14) est alors celle d'un oscillateur harmonique. Les valeurs propres sont de la forme :

$$E = \hbar \omega_e \left(v + \frac{1}{2} \right) + U_0(R_e)$$

où v est un nombre entier et $\omega_e = \sqrt{\frac{U_0''(R_e)}{\mu}}$.

Lorsque v est grand, l'approximation de l'équation (1.14) n'est plus valable, il faut rajouter des termes d'anharmonicité :

$$U_0(R) = U_0(R_e) + \frac{1}{2} U_0''(R_e) (R - R_e)^2 + \frac{1}{6} U_0'''(R_e) (R - R_e)^3 + \dots$$

L'énergie E s'écrit sous la forme d'un développement en puissance de $\left(v + \frac{1}{2} \right)$:

$$E = U_0(R_e) + \hbar \omega_e \left[\left(v + \frac{1}{2} \right) - x_e \left(v + \frac{1}{2} \right)^2 + y_e \left(v + \frac{1}{2} \right)^3 + \dots \right]$$

Le terme spectral de vibration pure de la molécule est noté :

$$E = U_0(R_e) + \hbar \omega_e \left[\left(v + \frac{1}{2} \right) - x_e \left(v + \frac{1}{2} \right)^2 + y_e \left(v + \frac{1}{2} \right)^3 + \dots \right]$$

Le premier terme est en général négatif car l'anharmonicité du potentiel a souvent pour effet de resserrer les niveaux d'énergie vibrationnels. Les niveaux vibrationnels d'une molécule diatomique sont représentés sur la Figure 1-8.

Remarque : Il est intéressant de noter (et on peut le démontrer) que le nombre de niveaux est fini.

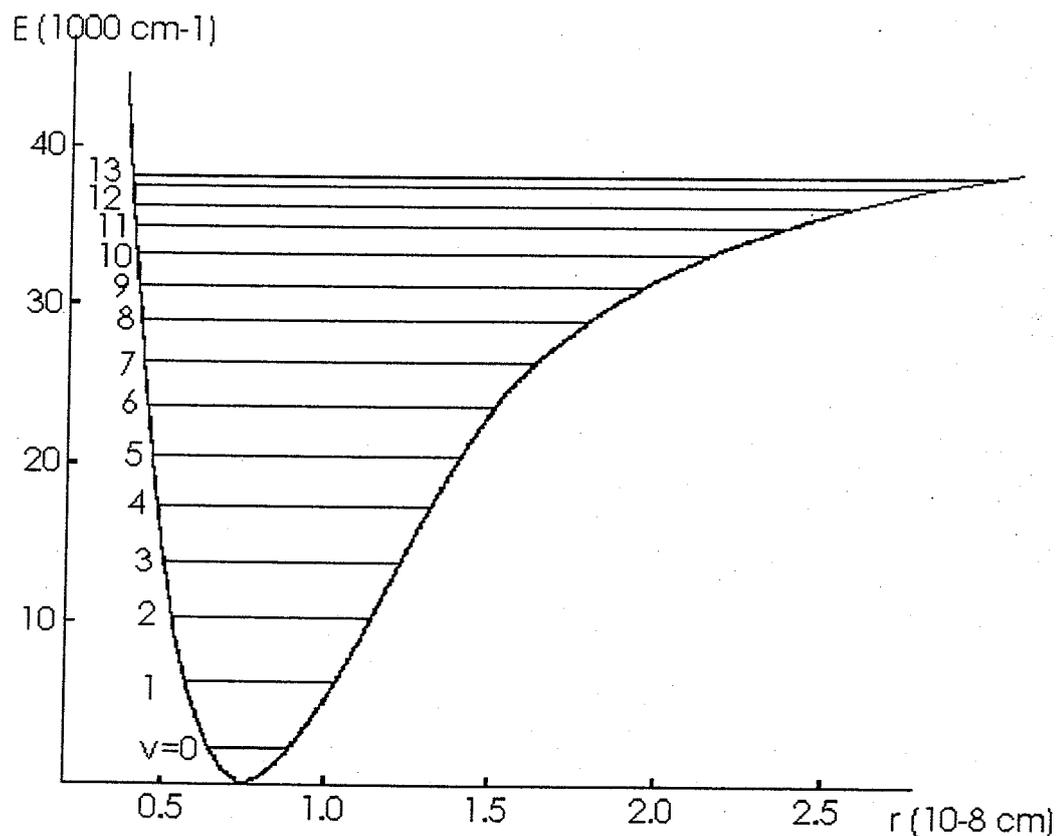


Figure 1-8 : Niveaux vibrationnels d'une molécule diatomique dans son état fondamental.

Remarque : anticroisements

Pour une variation de la distance internucléaire infiniment lente, deux états électroniques ne peuvent pas se croiser s'ils sont du même état $^{2S+1}[\Lambda]_{(u,g)}^{(\pm)}$. Ceci a une importance capitale lors du calcul des niveaux vibrationnels, une forte anharmonicité étant introduite.

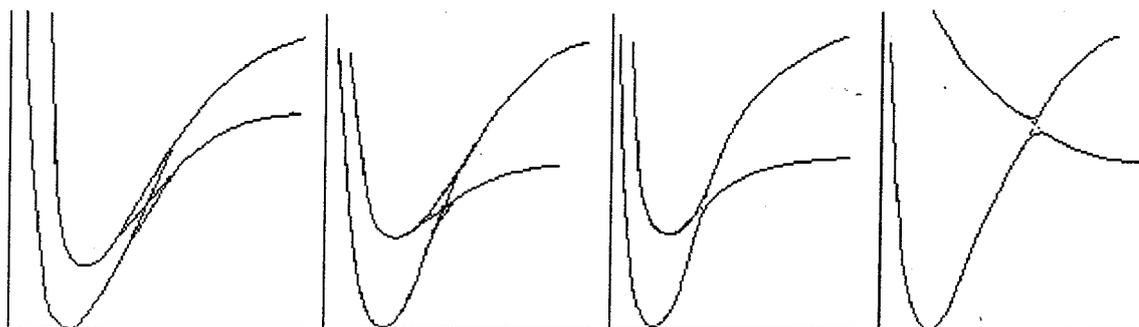


Figure 1-8 : Exemples d'anticroisements dans une molécule diatomique. De la gauche vers la droite, on a des différences de pentes croissantes. Plus cette différence est importante, plus la probabilité de passage d'une courbe vers l'autre sont importantes.

1.2.12 Spin électronique et Cas de Hund

Nous n'avons par tenu compte dans ce calcul du spin des électrons. Nous allons maintenant l'introduire et voir comment il faut modifier les résultats obtenus suivant l'importance des interactions du moment cinétique de spin avec le moment cinétique orbital électronique ou le moment cinétique du noyau. Nous ne traiterons pas les autres interactions comprises dans ce rappel théorique.

Le hamiltonien du système moléculaire que l'on étudie à présent est :

$$H = H_0 + H_S$$

avec $H_S = H_{SO} + H_{SR}$

H_{SO} décrit l'interaction spin-orbite : $H_{SO} \cong A\vec{L} \cdot \vec{S}$

H_{SR} décrit l'interaction spin-rotation : $H_{SR} \cong B\vec{R} \cdot \vec{S}$

\vec{L} est le moment cinétique orbital électronique

\vec{S} est le moment cinétique de spin électronique

\vec{R} est le moment cinétique du noyau.

On note $\vec{J} = \vec{L} + \vec{S} + \vec{R}$ le moment cinétique total de la molécule.

On ne tient pas compte de l'interaction spin-spin ni des interactions avec les spins nucléaires. Ces effets sont négligeables dans la plupart des cas et en particulier dans notre étude sur les molécules Cs_2 .

La base des fonctions propres de Born-Oppenheimer n'est plus une bonne base lorsque l'on considère le hamiltonien H . Selon l'importance relative des divers termes du hamiltonien H , la base de référence à prendre change. Le classement des termes perturbateurs de H dépend de l'ordre de grandeur des couplages existant entre les différentes composantes du moment cinétique \vec{J} . Nous allons examiner quelques cas classiques (Ce sont les cas de Hund) décrivant des situations limites et choisir dans chaque cas un type de base de fonctions d'onde approprié.

- **Cas (a) de Hund** : $\Delta E_e \gg \Delta E_S \gg \Delta E_{rot}$.

(E_e est l'énergie électronique, E_S l'énergie de structure fine, E_{rot} l'énergie de rotation de la molécule).

C'est le cas le plus courant, il sert de référence pour les notations les plus fréquemment utilisées en spectroscopie moléculaire. En particulier, il est utilisé pour étudier des dimères d'alcalin comme Li_2 ou Na_2 .

Les mouvements électroniques et nucléaires peuvent se traiter séparément. \vec{L} et \vec{S} sont faiblement couplés et la projection du moment cinétique électronique sur l'axe internucléaire Oz , notée Λ , est $\Omega = \Lambda + \Sigma$, Λ étant la projection sur Oz de \vec{L} et Σ celle de \vec{S} . Les calculs sont similaires à ceux du paragraphe précédent en remplaçant Λ par Ω et \vec{N} par \vec{J} , avec $J = |\Omega|, |\Omega| + 1, |\Omega| + 2, \dots$

Le nombre quantique se met en indice dans la notation des états électroniques :

$$^{2S+1}|\Lambda|_{\Omega}$$

- **Cas (b) de Hund** : $\Delta E_e \gg \Delta E_{rot} \gg \Delta E_S$.

Le spin est alors très peu couplé à l'axe internucléaire si bien que le nombre quantique Ω n'est pas défini.

C'est le cas rencontré lorsque $\Lambda = 0$ et $S \neq 0$; il correspond également au cas de molécules légères.

Le spin étant presque libre, il peut être traité à part.

- **Cas (c) de Hund** : $\Delta E_S \gg \Delta E_e \gg \Delta E_{rot}$.

L'interaction spin-orbite est très forte : c'est le cas des molécules très lourdes comme le césium.

\vec{L} et \vec{S} forment une résultante $\vec{J} = \vec{L} + \vec{S}$ dont la projection sur l'axe internucléaire est Ω . Les nombres quantiques Λ et Σ ne sont pas définis. La notation des états électroniques est alors $|\Omega|_{(u,g)}^{(\pm)}$. $|\Omega|$ prend les valeurs : $\Omega = 0$ état 0, $\Omega = \pm 1$ état 1, etc... On aura par exemple les états 0_u^+ , 0_g^- , 1_g et 1_u .

- **Cas (d) de Hund** : $\Delta E_{rot} \gg \Delta E_e \gg \Delta E_S$.

Ce cas correspond à de hauts niveaux de rotation des molécules. Le moment cinétique orbital électronique \vec{L} est alors fortement couplé au moment cinétique nucléaire \vec{R} . Le nombre quantique Λ n'est plus défini, N ($\vec{N} = \vec{R} + \vec{L}$) prend toutes les valeurs de $|R - L|$ à $|R + L|$.

Les états d'énergie d'une molécule correspondent souvent à des cas intermédiaires ; on se rattache alors à la notation du cas de Hund le plus proche de la situation physique de la molécule. Nous reviendrons sur ce point au cours de ce chapitre.

Le cas (d) mis à part - ce cas n'intervient d'ailleurs pas dans les résultats obtenus sur Cs₂ - l'approximation de Born-Oppenheimer conduit à des états propres facilement adaptables pour la plupart des systèmes moléculaires.

1.2.13 Règles de sélection

Lors de l'absorption et de l'émission d'un photon par une molécule, on observe une transition entre états initial et final. Cette transition suit des règles de sélection. Ces règles s'obtiennent en évaluant l'élément de matrice du moment dipolaire électrique $\langle \psi_1 | \vec{E} \cdot \vec{D} | \psi_2 \rangle$, ψ_1 et ψ_2 étant les fonctions d'onde totales des niveaux de départ et d'arrivée de la transition.

Nous allons faire une récapitulation de ces règles de sélection, sans en faire les démonstrations. Celles-ci sont les mêmes que celles faites pour le cas atomique. Dans les lignes qui suivent, \leftrightarrow signifie que la transition est autorisée et \leftrightarrow que la transition est interdite.

Règles sur les symétries de la fonction d'onde totale

- Parité totale : seuls des niveaux de parité totale opposée peuvent être reliés par une transition dipolaire électrique :

$$+ \leftrightarrow - \qquad + \leftrightarrow + \qquad - \leftrightarrow -$$

- Cas homonucléaire : les transitions ne combinent que les niveaux symétriques (s) ou antisymétriques (a) entre eux :

$$s \leftrightarrow s \qquad a \leftrightarrow a \qquad s \leftrightarrow a$$

Règles sur les symétries de la fonction d'onde

- Ces règles s'obtiennent en ne considérant que la partie électronique de la fonction d'onde ψ_e et en évaluant l'élément de matrice $\langle \psi_{e1} | \vec{E} \cdot \vec{D} | \psi_{e2} \rangle$.
- Parité de Kronig : les transitions dipolaires électriques de sont permises qu'entre états Σ (cas(a) ou (b)) ou 0 (cas (c)) de même parité :

$$\begin{array}{llll} \Sigma^+ \leftrightarrow \Sigma^- & \Sigma^- \leftrightarrow \Sigma^- & \Sigma^+ \leftrightarrow \Sigma^- & \text{cas (a) ou (b)} \\ 0^+ \leftrightarrow 0^- & 0^- \leftrightarrow 0^- & 0^+ \leftrightarrow 0^- & \text{cas (c)} \end{array}$$

- Cas homonucléaire : les règles de sélection concernant le caractère (u) ou (g) d'un état électronique sont les suivantes :

$$u \leftrightarrow g \qquad u \leftrightarrow \vdash \rightarrow u \qquad g \leftrightarrow \vdash \rightarrow g$$

Règles de sélection sur les moments cinétiques

D'une manière générale, la règle de sélection des transitions dipolaires électriques sur le moment cinétique total de la molécule est :

$$\Delta J = 0, \pm 1, \text{ la transition } J = 0 \rightarrow J = 0 \text{ étant interdite.}$$

Les nombres quantiques définissant le niveau d'énergie de la molécule dépendent du cas de Hund dans lequel on se place. Les règles de sélection sur ces nombres en dépendent également.

- Moment cinétique de spin : S et Σ

L'opérateur moment dipolaire n'agit pas sur le spin. Donc, si l'on peut considérer les effets de spin négligeables en première approximation, on a :

$$\Delta S = 0 \text{ et } \Delta \Sigma = 0 \text{ lorsque } \Sigma \text{ est défini.}$$

Mais il ne s'agit pas d'une règle absolue.

- Nombres quantiques Λ et Ω :

La règle de sélection sur ces nombres caractérisant les états électroniques de la molécule est :

$$\begin{array}{ll} \Delta \Lambda = 0, \pm 1 & \text{cas(a) et (b)} \\ \Delta \Omega = 0, \pm 1 & \text{cas(a) et (c)} \end{array}$$

- Moment cinétique total J :

Nous avons vu la règle suivante : $\Delta J = 0, \pm 1$, mais $J = 0 \rightarrow J = 0$ interdite. Il faut y ajouter une restriction supplémentaire : $\Delta J \neq 0$ quand $\Delta \Lambda = 0$ ou $\Delta \Omega = 0$. Ce sont les résultats appliqués à la notation moléculaire des règles de sélection sur m_L et m_J dans le problème atomique.

Remarque importante :

Il n'y a pas de règles de sélection au sens strict sur le nombre quantique de vibration v lors de transitions entre états électroniques différents. Cependant, le principe de Franck-Condon implique certaines limitations sur ces transitions. C'est ce que nous allons voir dans le paragraphe suivant.

1.2.14 Le principe de Franck-Condon

Le principe de Franck-Condon peut s'exprimer de la façon suivante : L'électron a des transitions si rapides par rapport au mouvement vibrationnel qu'immédiatement après, les noyaux ont à peu près la même position et la même vitesse relative. Cela a pour conséquence que les transitions verticales seront les plus intenses. Ce principe est illustré sur la Figure 1-11 et la Figure 1-12.

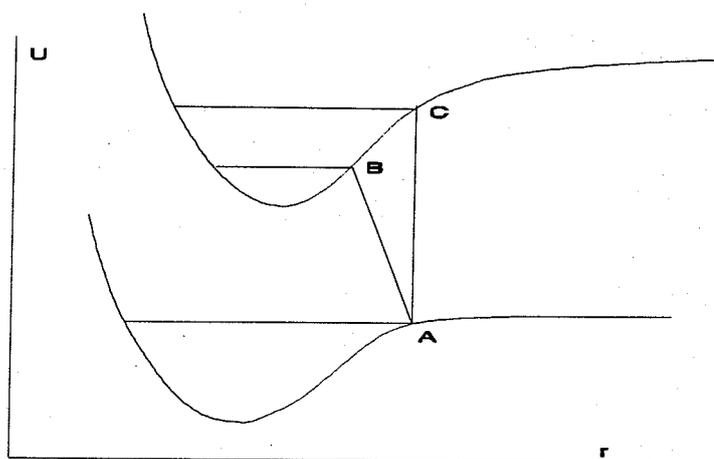


Figure 1-11 : Principe de Franck-Condon en absorption. La transition de A vers B est moins probable que la transition de A vers C .

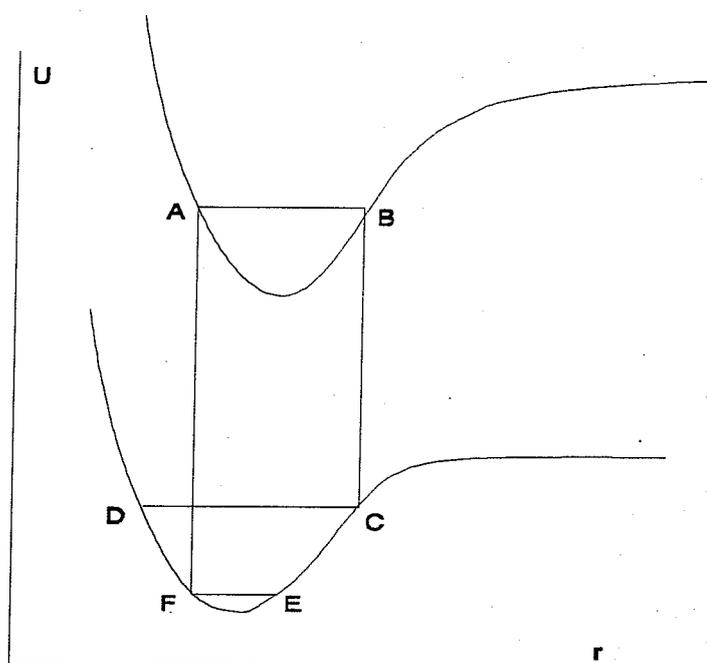


Figure 1-12 : Principe de Franck-Condon en émission. La molécule est sur l'état AB et passe la plupart de son temps au voisinage des points tournants A et B (car pour v différent de 0, l'énergie cinétique y est moins importante). La transition se fera au voisinage de ces points tournants. Si c'est à partir de A, la transition se fera vers F qui est le point tournant de l'état fondamental. Si c'est à partir du point tournant extérieur B, la transition se fera vers C qui est le point tournant extérieur d'un niveau du fondamental dont v est supérieur à celui de FE.

Ce principe peut trouver une explication quantique. Nous n'en ferons pas la démonstration mais le principe en est relativement simple : Les transitions verticales sont celles qui permettent un recouvrement maximal des fonctions d'onde initiale et finale. En effet, dans cette configuration, l'intégrale de recouvrement est maximisée par la conjonction de deux points tournants. Voir pour cela la Figure 1-13.

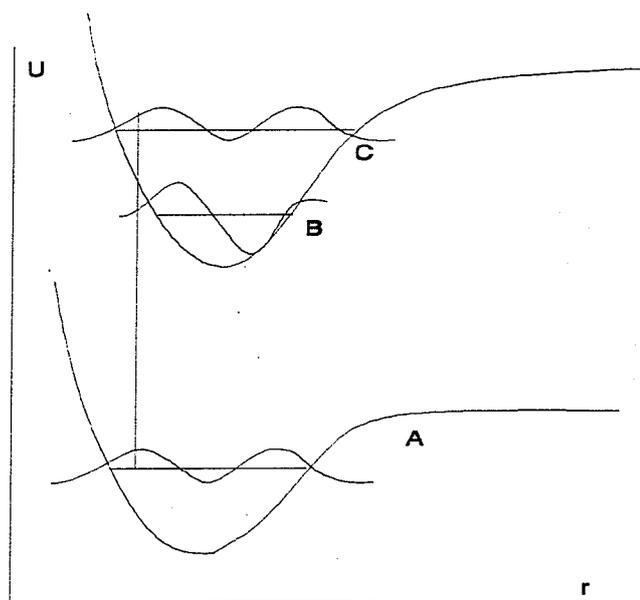


Figure 1-13 : Explication par la mécanique quantique du principe de Franck-Condon. La transition la plus probable est celle pour laquelle le recouvrement des fonctions d'onde initiale et finale est maximum. Cela induit des transitions "verticales" sur les points tournants des fonctions d'onde.

1.3 La molécule de Cs₂

1.3.1 Rappels sur l'atome de Césium

L'atome de césium est un alcalin lourd : sa masse est de 133 unités de masse atomique (il n'existe qu'un isotope naturel), il possède 55 électrons ; sa configuration électronique fondamentale est $6s^2S_{1/2}$. Un certain nombre de propriétés de la molécule diatomique découlent de cette structure. Etant un atome lourd, le césium possède un assez fort couplage spin-orbite. Il présente une structure hyperfine très importante par rapport aux autres alcalins. Sur la Figure 1-14 sont représentés les niveaux de l'atome de césium. Y sont représentés également les déplacements Zeeman qui seront utiles par la suite.

1.3.2 La molécule

C'est la combinaison des deux seuls électrons de valence qui produit la liaison chimique entre les deux atomes. L'interpénétration des deux nuages électroniques est faible. La distance internucléaire R_e de la molécule à l'équilibre est donc assez grande (R_e est de l'ordre de 5Å).

La masse réduite μ de la molécule de Cs₂ est $\mu = 66,452718 u.a.$. Plus la masse réduite est élevée, plus les niveaux vibrationnels et rotationnels sont serrés. Cs₂ a donc des niveaux d'énergie beaucoup plus serrés que les dimères d'alcalins tels que Li₂ ou Na₂. Cela augmente la difficulté d'analyse.

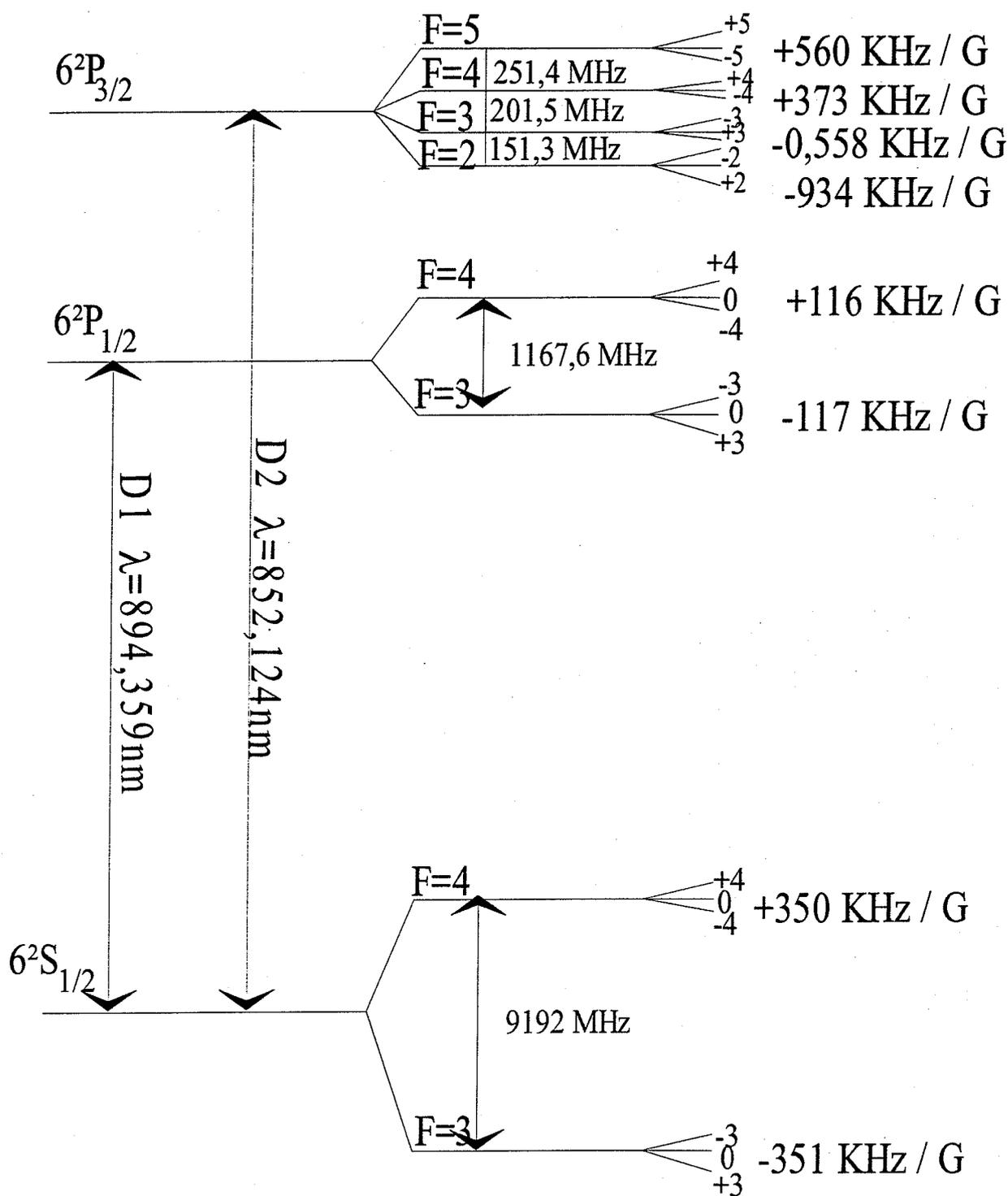


Figure 1-14 : Schéma des niveaux de césium déplacés par effet Zeeman. Les fréquences notées à droite donnent les déplacements Zeeman correspondant à la transition $F = 4 \rightarrow F' = 5$ utilisée dans le piège magnéto-optique.

La molécule de Cs₂ a également un fort couplage spin-orbite. Ses états d'énergie correspondent alors à un cas intermédiaire entre les cas (a) (ou(b)) et (c) de Hund. Les données spectroscopiques actuelles ne permettent pas de déterminer quel cas limite est le plus proche de la réalité physique. C'est pourquoi les deux notations sont employées pour décrire les états électroniques de la molécule. La plupart du temps cependant, nous utiliserons la notation $^{2S+1}|\Lambda|_{u,g}^{\pm}$ qui est la plus courante, principalement pour pouvoir comparer les résultats à ceux obtenus avec les autres dimères d'alcalins, plus légers. Il faut alors se rappeler que les règles de sélection du cas (a) ne s'appliquent pas rigoureusement au cas de Cs₂.

1.3.3 Les courbes de potentiel sans structure fine

Sur les figures suivantes sont représentées les courbes des premiers niveaux de la molécule de Cs₂. Les courbes sont classées par type de symétrie : La Figure 1-15 regroupe les niveaux de symétrie gerade tandis que la Figure 1-16 regroupe ceux de symétrie ungerade. Ces courbes ont été calculées simplement par diagonalisation (dans la base de tous les états qui peuvent être formés par des atomes dans les états 6s et 6p) de l'hamiltonien moléculaire sans prise en compte de la structure fine [FOU.93]. Il faut remarquer que les notations sont celles du cas (a) de Hund.

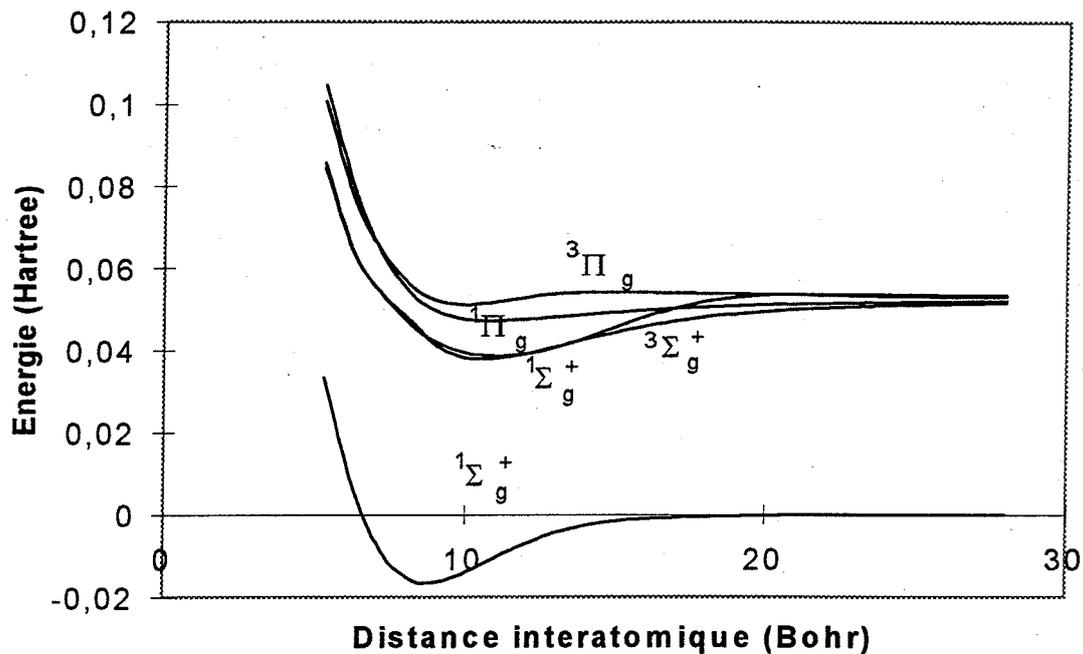


Figure 1-15 : Structure des premiers niveaux du césium de type gerade sans structure fine

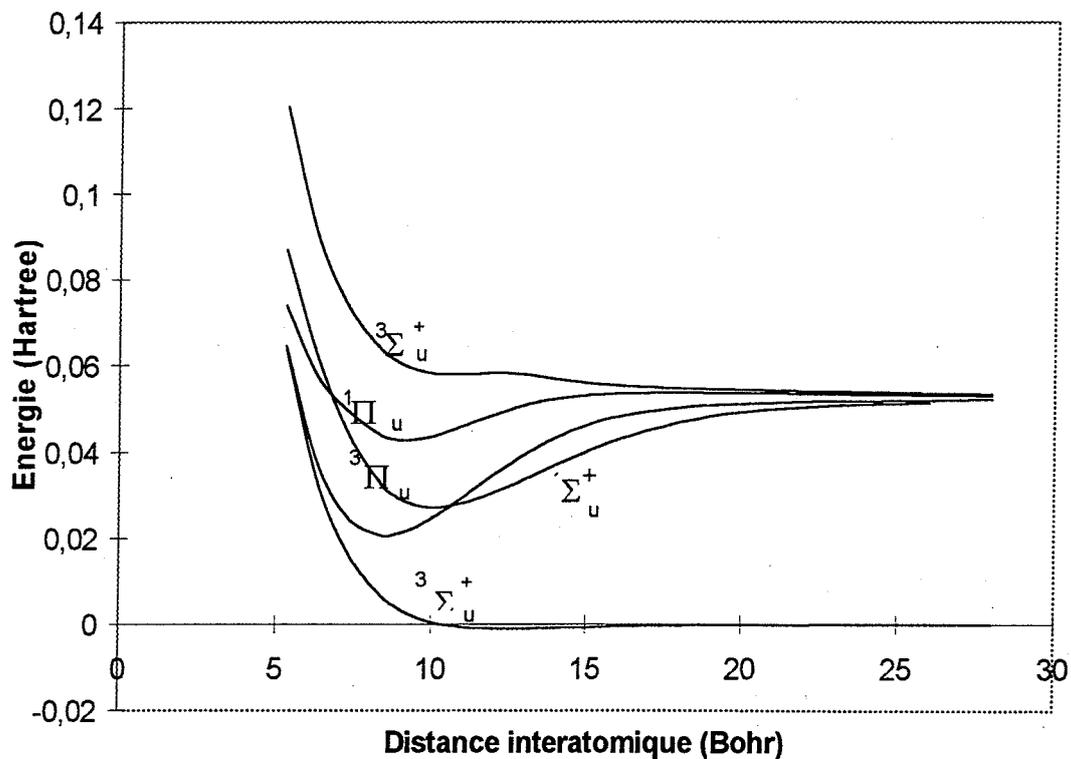


Figure 1-16 : Structure des premiers niveaux du césium de type ungerade sans structure fine.

1.3.4 Les courbes de potentiel avec structure fine

Les courbes avec prise en compte de la structure fine atomique peuvent être obtenus en rajoutant le terme adéquat dans l'hamiltonien à diagonaliser. Ce terme s'écrit comme :

$$H_{sf} = A(\vec{L}_1 \cdot \vec{S}_1 + \vec{L}_2 \cdot \vec{S}_2)$$

où les \vec{L}_i sont les moments orbitaux des électrons et les \vec{S}_i sont les spins des électrons. A est une constante.

On voit sur cette équation que le terme de structure fine moléculaire provient directement de la structure fine atomique. En première approximation, pour les distances interatomiques suffisamment importantes, la technique pour calculer les niveaux dans cette configuration est de diagonaliser dans la base des états formés par les états atomiques 6s et 6p (par combinaison linéaire d'orbitales atomiques LCAO) le hamiltonien d'énergie électrostatique développé en puissance de 1/R [BUS.84], [MAR.95]. Les résultats de ces calculs donnent sont montrés sur la Figure 1-17. Pour les états obtenus, on utilise ici la notation $|\Omega_{(u,g)}^{(\pm)}\rangle$ car nous sommes dans le cas (c) de Hund. Ces états se connectent à petite distance aux états du cas (a) de Hund. Il faut noter que les deux états 0_g^- et 1_u (représentés plus en détail sur la présente un minimum de potentiel à longue distance, ce qui donne la possibilité de former des états vibrationnels purement longue distance. Ce genre d'état a été évoqué la première fois par Pichler, Stwalley et Uang en 1978 [STW.78] et a été montré expérimentalement dans certaines expériences de photoassociation sur les autres alcalins. Nous les décrirons dans le troisième chapitre. Pour ce qui est du césium, le calcul montre que l'état 0_g^- compte pas moins de 153 niveaux tandis que l'état 1_u en compte 53. Ceci permet d'espérer détecter ce dernier niveau sur le césium, le puits étant assez profond, ce qui n'est pas le cas sur les autres alcalins.

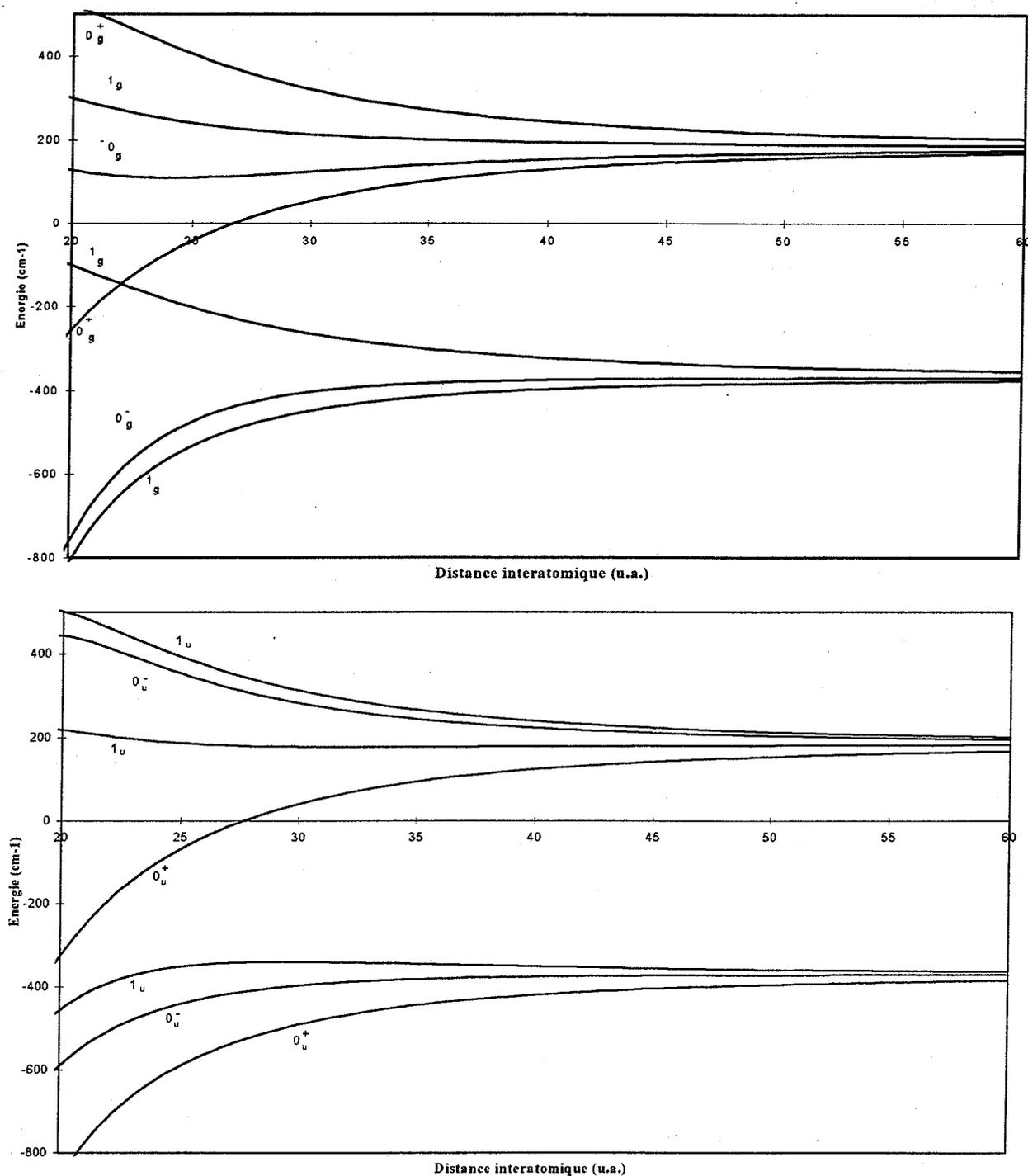


Figure 1-17 : Courbes de potentiel à longue distance avec prise en compte de la structure fine de la molécule de Cs₂. Sur la première de ces figures sont représentés les niveaux de parité gerade et sur le second les niveaux de ungerade. Notons que les niveaux convergent vers les deux limites de dissociation ${}^6s_{1/2} + {}^6p_{3/2}$ et ${}^6s_{1/2} + {}^6p_{1/2}$. Il est important de noter les deux états 0_g⁻ et 1_u qui présentent un minimum de potentiel à longue distance, donnant ainsi la possibilité de former des états vibrationnels purement longue distance.

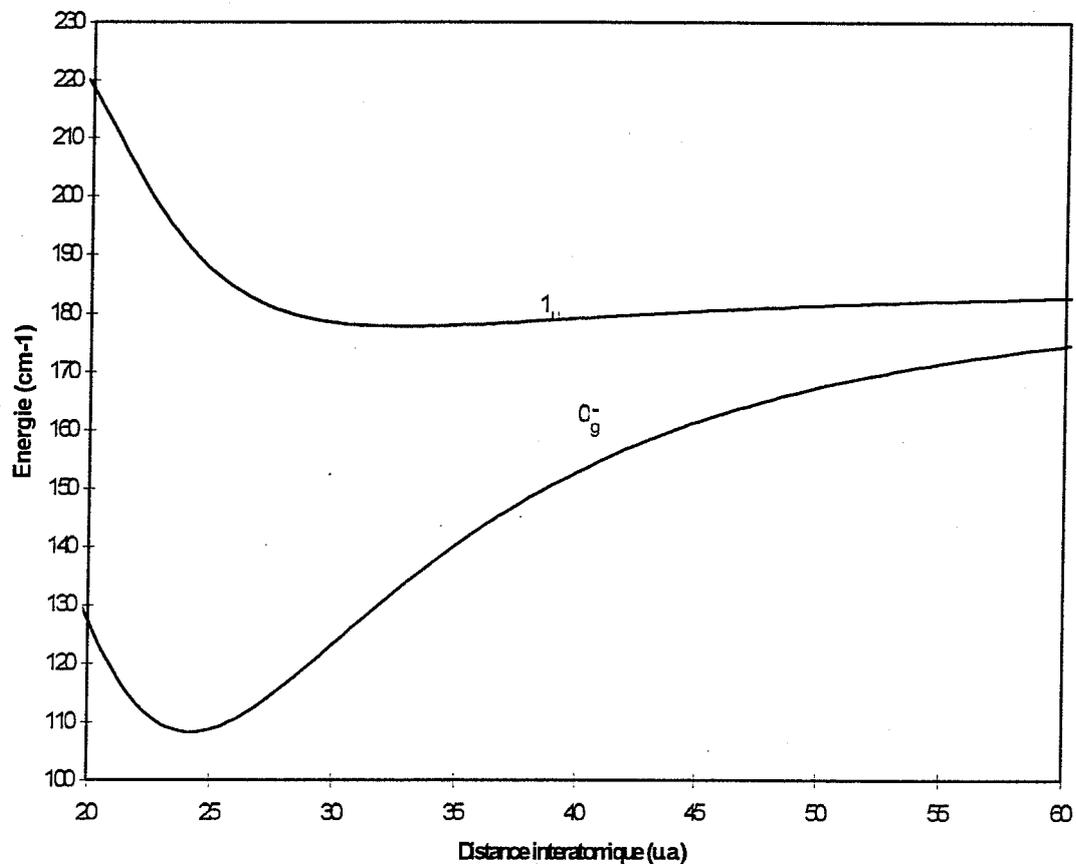


Figure 1-18 : Représentation détaillée des états 0_g^- et 1_u . Ils présentent un minimum de potentiel à longue distance, permettant ainsi la formation d'états vibrationnels purement longue distance. Le calcul montre que l'état 0_g^- a 153 niveaux vibrationnels tandis que l'état 1_u en compte 53.

1.3.5 Les courbes de potentiel avec structure hyperfine

Le hamiltonien complet d'une molécule diatomique en l'absence de tout champ extérieur peut s'écrire sous forme d'un développement du second degré :

$$H = H_0 + \lambda \mathcal{V} + \lambda^2 V'^2$$

H_0 contient alors les énergies électronique, vibrationnelle et rotationnelle, le terme du premier ordre se rapporte aux interactions spin-orbite et aux effets gyroscopiques tandis que V' regroupe toutes les interactions hyperfines.

Les différentes contributions à ce terme de second degré peuvent être décomposées comme suit :

$$V' = H_{SS} + H_{IL} + H_D + H_{SR} + H_Q$$

H_{SS} représente l'interaction électronique spin-spin et s'écrit :

$$H_{SS}(1,2) = g^2 \mu_B^2 \frac{[-3(\vec{S}_1 \cdot \vec{r}_{12})(\vec{S}_2 \cdot \vec{r}_{12}) + (\vec{S}_1 \cdot \vec{S}_2)(\vec{r}_{12} \cdot \vec{r}_{12})]}{r_{12}^5}$$

H_{IL} correspond au couplage du moment de spin nucléaire avec le moment orbital électronique et s'écrit sous la forme :

$$H_{IL}(1) = \zeta \frac{\vec{I} \cdot \vec{L}}{r_{1I}}$$

H_D est l'interaction dipôle-dipôle de type magnétique entre le spin nucléaire et le spin électronique pour les électrons non s (c'est à dire ceux pour lesquels la densité électronique tend vers zéro avec la distance internucléaire)

$$H_D(1) = \zeta \frac{[3(\vec{S}_1 \cdot \vec{r}_{1I})(\vec{I} \cdot \vec{r}_{1I}) + (\vec{I} \cdot \vec{S}_1)(\vec{r}_{1I} \cdot \vec{r}_{1I})]}{r_{1I}^5}$$

H_K correspond au terme de contact de Fermi valable pour les électrons s et s'écrit :

$$H_K(1) = \frac{8\pi}{3} \zeta \phi^s(0) \vec{I} \cdot \vec{S}_1$$

H_{SR} est la contribution de l'interaction entre le spin nucléaire et le moment orbitale des noyaux dû à la rotation de la molécule. On peut l'écrire sous la forme :

$$H_{Sr} = C_{SR} \vec{I} \cdot \vec{J}$$

où C_{SR} est la constante de couplage spin nucléaire-rotation.

H_Q , enfin, est l'interaction électrique quadripolaire.

Dans ces expressions, g et g_I sont les facteurs de Landé pour l'électron libre et le noyau, μ_B et μ_N les valeurs du magnéton de Bohr et du magnéton nucléaire, $\zeta = gg_I \mu_B \mu_N$, r_{12} la distance entre l'électron 1 et l'électron 2, r_{1I} la distance entre l'électron 1 et le noyau de spin I , $\phi^s(0)$ la densité électronique à l'origine (elle est différente de zéro pour les électrons s seulement).

La diagonalisation des termes calculés à l'aide de cet hamiltonien lève la dégénérescence d'un grand nombre de niveaux, ce qui donne une multitude de courbes difficiles à interpréter. Voici par exemple sur la Figure 1-19 les courbes obtenues pour la molécule de Na₂ [JUL.94]. Un calcul identique pour le césium est en cours au laboratoire Aimé Cotton. Le nombre de niveaux impliqués est de l'ordre de plusieurs milliers.

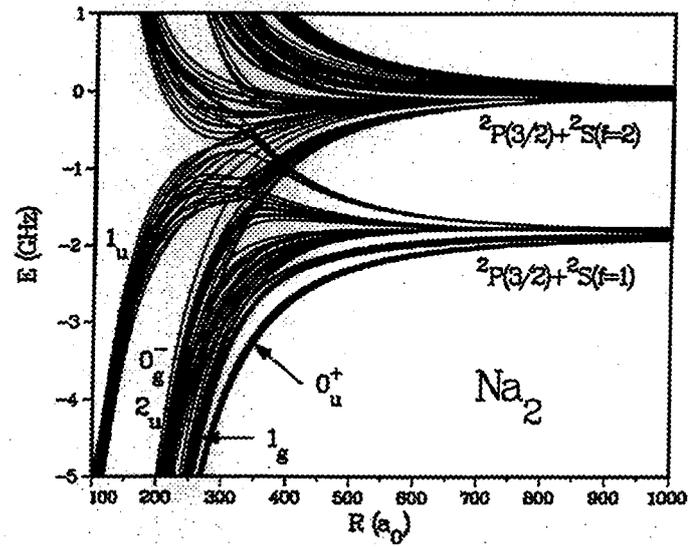


Figure 1-19 : Détail des potentiels adiabatiques hyperfins de la molécule de Na_2 au voisinage de la limite de dissociation $P(3/2)+S$. Courbe extraite de [JUL.94].

1.4 Conclusion

Les éléments de physique moléculaire présentés dans ce chapitre permettent de se poser maintenant le problème de la photoassociation. L'étude des processus collisionnels sera l'objet du chapitre 3. Parmi les molécules dimères d'alcalin, le cas du césium est particulièrement difficile, notamment à cause de la structure hyperfine très complexe et très grande, ce qui engendre un grand nombre de niveaux. Cette structure hyperfine peut même être plus large que la structure rovibrationnelle. Cela peut être la source de bon nombre de complications pour les expériences aussi bien que pour les interprétations.

Avant d'aborder le problème de la photoassociation, nous allons décrire en détail le montage expérimental.

Chapitre 1 : La molécule de Cs₂

1.5 Bibliographie

[AMA.83] G. Amat, Cours de physique moléculaire, Maîtrise de physique, Université Pierre et Marie Curie (1983)

[BUS.84] B. Bussery, M. Aubert-Frécon, J. Chem. Phys. **82**, (7) 3324 (1985)

[CRE.84] C. Crépin, Thèse de doctorat, Université Paris 6, Spectroscopie des molécules Cs₂ et CsH. (1984)

[HER.50] G. Herzberg, "Spectra of diatomic molecules", ed. Van Nostrand Reinhold Co, New York, 1945, (1950)

[JUL.94] C.J. Williams, P.S. Julienne, J. Chem. Phys., **101**,(3), (1994)

[MAR.95] M. Marinescu, A. Dalgarno, Phys. Rev. A **52**, 311 (1995)

[STW.78] W. Stwalley, Y.H. Uang et G. Pichler, Phys. Rev. Lett., **41**, 17, 1164, (1978)

Chapitre 1 : La molécule de Cs_2

Handwritten text at the top of the page, possibly a title or header.



2. Le piège magnéto-optique de césium

2.1 Introduction

Nous avons dans le premier chapitre présenté la molécule de Cs_2 . L'étude de la photoassociation moléculaire que nous voulons aborder concerne l'atome de césium. Pour aborder cette étude, nous avons décidé de réaliser un piège magnéto-optique en cellule. C'est actuellement, un des dispositifs les plus populaires pour refroidir les atomes par laser car les atomes peuvent être refroidis et capturés avec un dispositif expérimental relativement simple. Bien que ce dispositif soit tout à fait récent, il a déjà été utilisé dans un grand nombre d'expériences. Au commencement de cette thèse, aucun élément du montage utilisé n'existait. J'ai eu à assembler les différentes parties du dispositif du piège magnéto-optique, ce qui constitue une part non négligeable de cette thèse. Je vais donc les décrire en détail.

L'idée de refroidir les atomes a été proposée par Hansch et Shawlow [HAN.75] et Wineland et Dehmelt [WIN.75] en 1975. Elle a été réalisée pour la première fois sur les pièges à ions en 1978 [WIN.78]. Le principe de cette idée est d'éclairer un atome (ou un ion) par deux lasers qui se propagent en sens inverse. Pour des lasers à faible intensité, chaque onde électromagnétique exerce sur l'atome une force de pression de radiation indépendamment de l'autre onde. Quand l'atome est au repos, la somme de ces deux forces est nulle. Quand l'atome se déplace avec une composante de vitesse selon la direction de propagation des lasers, il voit un décalage Doppler de signe différent pour chacune des deux ondes. Si l'on décale la fréquence des deux lasers vers le rouge par rapport à la fréquence de résonance atomique, l'atome aura une probabilité plus grande d'absorber des photons du laser qui se propage en sens opposé à son mouvement. Ce déséquilibre entre les deux forces de pression de radiation crée une force de friction proportionnelle à la vitesse qui tend à freiner l'atome. Cette force est efficace quand le décalage Doppler ne dépasse par quelques largeurs naturelles du niveau excité, pour des atomes dont la vitesse est inférieure à une certaine vitesse v_{cap} dite vitesse de capture. Cet ensemble d'atomes refroidis constitue ce qu'on appelle une "mélasse optique", par analogie à ce que ressent une bille en mouvement dans une mélasse. Ce phénomène de ralentissement devrait conduire à une vitesse de plus en plus faible jusqu'à atteindre une valeur

Chapitre 2 : Le piège magnéto-optique de césium

nulle. En fait, ce processus a une limite due au caractère aléatoire de l'émission spontanée lorsque la vitesse devient faible. Ce caractère aléatoire produit un phénomène de chauffage qui rentre en compétition avec le phénomène de refroidissement. Il est décrit par un facteur de diffusion D . Ce facteur est lié à la température par la relation suivante :

$$k_B T = \frac{D}{\alpha}$$

où α est le coefficient de frottement, k_B la constante de Boltzmann et T la température [LET.89]. On ne peut donc pas dépasser une température limite appelée "température Doppler", qui pour un atome à deux niveaux est donnée par [WIN.79] :

$$k_B T_D = \frac{\hbar\Gamma}{2}$$

où $\Gamma/2\pi$ est la largeur naturelle du niveau de l'atome. Cette température est de l'ordre de la centaine de microKelvins pour les alcalins.

Les premières réalisations de mélasses optiques ont été faites dans le cas d'une mélasse à trois dimensions formée par l'intersection de trois paires de lasers selon trois directions. Chaque paire de lasers est formée de deux faisceaux se propageant en sens inverse [CHU.85, CHU.86]. Les mesures précises de températures réalisées à la suite de ces expériences ont permis de mesurer des températures beaucoup plus basses que la température Doppler (températures "Sub-Doppler") [LET.88, DAL.89, CHU.89]. L'interprétation de ces mesures de températures sub-Doppler a suivi de très près les expériences [COH.89, UNG.89]. Elle repose sur l'existence de nouveaux mécanismes dans les mélasses optiques. Ces derniers tiennent compte de la structure interne de l'atome, des effets de pompage optique entre les différents sous-niveaux Zeeman dans l'état fondamental, de leurs déplacements lumineux, des gradients de polarisation de la lumière. Nous n'allons pas exposer ici le détail de ces mécanismes supplémentaires, nous le ferons au cours de ce chapitre. Remarquons simplement que le refroidissement sub-Doppler repose principalement sur le fait que les atomes étudiés dans les expériences présentent plusieurs sous-niveaux Zeeman fondamentaux. Ceci implique la présence d'une nouvelle constante de temps qui est le temps de pompage optique entre les

différents sous-niveaux qui, à faible intensité, peut être très long devant le temps de vie du niveau excité. Il en résulte un suivi non adiabatique de l'évolution des variables internes de l'atome (caractérisée par ce temps de pompage) par rapport à l'évolution des variables externes. Ceci crée une force de friction beaucoup plus importante que celle calculée pour un atome à deux niveaux [WEI.89, SHE.90, VAL.92]. Les températures sub-Doppler sont données par :

$$k_B T_{SD} \approx 10 \frac{\hbar^2 k^2}{2m}$$

Les mélasses optiques se contentent de confiner les atomes dans l'espace des vitesses mais pas dans celui des positions. On peut obtenir le confinement dans l'espace réel en utilisant le dispositif d'un piège magnéto-optique à trois dimensions, dont l'idée première a été proposée par Jean Dalibard. Ce résultat a été obtenu en combinant astucieusement la force de pression de radiation des lasers avec une force de rappel créée par un champ magnétique inhomogène [RAA.87]. La même expérience a été réalisée en 1989 sur le Césium [SES.89]. Les expériences de mélasses puis celles des pièges avaient nécessité la préparation d'un jet ralenti pour le chargement. Il a été montré que les pièges magnéto-optiques peuvent aussi réalisés en cellule [MON.90, GRI.92]. Le flux d'atomes lents provenant de la distribution thermique est suffisant pour capturer un nombre significatif d'atomes. Ces pièges sont particulièrement aisés à mettre en œuvre dans le cas du césium ou du rubidium qui présentent une tension de vapeur saturante importante à température ordinaire. On notera que les mécanismes sub-Doppler sont aussi présents dans les pièges magnéto-optiques et des températures très basses ont pu ainsi être mises en évidence [STE.91, GRI.92].

Parallèlement à ces expériences de piège à trois dimensions, la possibilité d'utiliser des pièges magnéto-optiques à deux dimensions pour compresser des jets atomiques a également été démontrée. Ceci a été réalisé dans le cas du sodium [NEL.90, RII.90] montrant ainsi la faisabilité de ce qu'on appelle l'entonnoir à atomes. Un entonnoir à atomes de Césium a également été réalisé au Laboratoire Aimé Cotton [YU.93].

Dans la première partie de ce chapitre, nous rappellerons les principes théoriques des mélasses et des pièges magnéto-optiques. Nous introduirons la notion de pression de radiation et celle d'une mélasse optique. Nous n'allons nous intéresser dans tout ce chapitre qu'à la

Chapitre 2 : Le piège magnéto-optique de césium

configuration laser de polarisations $\sigma^+ - \sigma^-$. Nous commençons en premier lieu par expliquer le mécanisme Doppler dans une mélasse optique, et donner l'expression de la force dissipative qui s'exerce sur l'atome dans ce type de mélasse. Ensuite, nous expliquons le principe de fonctionnement du piège magnéto-optique Doppler à une dimension. La transition utilisée dans ce but est une transition de moment cinétique $J = 0$ pour l'état fondamental, vers le moment cinétique $J' = 1$ pour l'état excité. Cette transition nous permet de donner un modèle le plus simple possible. Nous terminons cette première partie par une étude de la force radiative stationnaire de piégeage agissant sur l'atome. Nous généraliserons ces notions au cas plus complexe d'une transition $J \rightarrow J + 1$ qui a la particularité de présenter plusieurs sous-niveaux Zeeman fondamentaux et plusieurs sous-niveaux Zeeman excités. Après avoir expliqué le mécanisme Doppler dans ce cas précis, nous introduirons les mécanismes sub-Doppler.

Dans une deuxième partie, nous nous intéresserons au côté expérimental du piège magnéto-optique. Nous exposerons le principe général de l'expérience puis passerons en revue les différents composants du montage : l'enceinte à vide, les différents champs magnétiques, les lasers, le système de détection et la procédure expérimentale utilisée pour faire fonctionner le piège.

Dans une troisième partie, nous décrirons les principales caractéristiques du piège qui sont sa forme, son nombre d'atomes, sa densité, sa température, le temps de chargement et le temps de "dépompage" du piège (cette notion sera précisée).

2.2 Principe de fonctionnement du piège magnéto-optique

2.2.1 Force de pression de radiation

Le principe de base d'une mélasse optique est basé sur celui du ralentissement. Ce dernier est réalisée à l'aide d'un seul laser. Supposons que nous avons un atome libre soumis à un laser se propageant dans la même direction que celui-ci mais en sens inverse. Il subit une force que l'on appelle force de pression de radiation. C'est une force dissipative. La détermination de cette force et son interprétation fera l'objet de ce paragraphe.

Considérons un atome à deux niveaux de masse m animé d'une vitesse v . On note f le niveau fondamental et e le niveau excité, d'énergies respectives $\hbar \omega_f$ et $\hbar \omega_e$. La fréquence de transition entre les deux niveaux est :

$$\hbar \omega_0 = \hbar \omega_e - \hbar \omega_f \quad (2.1)$$

Les niveaux f et e sont couplés entre eux par un dipôle électrique et peuvent interagir avec interagir avec une onde électromagnétique. Supposons l'atome plongé dans le champ d'une onde électromagnétique de fréquence ω_L et de vecteur d'onde \vec{k} se propageant en sens inverse de celui de la vitesse v de l'atome. Pour compenser le décalage en fréquence par effet Doppler, la fréquence ω_L du laser doit être inférieure à la fréquence de transition atomique. On note δ la différence entre ces deux fréquences L

$$\delta = \omega_L - \omega_0 \quad (2.2)$$

Lors de son interaction avec le laser, l'atome s'excite en absorbant un photon et se désexcite en en émettant un autre. En absorbant un photon, l'atome acquiert une quantité de

Chapitre 2 : Le piège magnéto-optique de césium

mouvement $\hbar\vec{k}$ et une énergie $\hbar\omega$. Les équations de conservation de quantité de mouvement et d'énergie totale du système atome-laser s'écrivent :

$$m\vec{v} + \hbar\vec{k} = m\vec{v}'$$

$$\frac{1}{2}mv^2 + \hbar\omega_l + \hbar\omega_f = \frac{1}{2}mv'^2 + \hbar\omega_e$$
(2.3)

\vec{v} et \vec{v}' sont les vitesses de l'atome respectivement avant et après l'absorption. Ce bilan nous permet de déterminer la variation de vitesse de l'atome lors de ce processus. Cette variation est appelée vitesse de recul.

$$\vec{v}_{rec} = \frac{\hbar\vec{k}}{m}$$
(2.4)

Le tableau suivant nous permet de comparer la vitesse de recul pour différents atomes utilisés dans les expériences de photoassociation :

	Li	Na	K	Rb	Cs
$v_{rec} (cm/s)$	8.6	3.0	1.3	0.30	0.35

Les différences de vitesses de recul dans ce tableau sont principalement dues aux différences de masse atomique.

Lors du processus d'émission spontanée, l'atome émet un photon dans une direction complètement aléatoire. Après n cycles d'absorption-émission spontanée, la quantité de mouvement acquise par l'atome est $n\hbar\vec{k}$. car l'émission spontanée, étant aléatoire, a un effet nul en moyenne. La force de pression de radiation exercée par l'onde sur l'atome s'écrit :

$$\vec{F} = n\hbar\vec{k}$$
(2.5)

si n représente le nombre moyen de photons absorbés par unité de temps.

Chapitre 2 : Le piège magnéto-optique de césium

En écrivant les équations d'évolution du système atome-laser, on peut démontrer que l'expression de la force moyenne est :

$$\langle \vec{F} \rangle = \hbar \vec{k} \frac{\Gamma}{2} \frac{\frac{2\Omega^2}{\Gamma^2}}{1 + \frac{2\Omega^2}{\Gamma^2} + \left(2 \frac{(\delta - kv)}{\Gamma} \right)^2} \quad (2.6)$$

où $\Gamma / 2\pi$ est la largeur naturelle du niveau excité de l'atome et Ω la fréquence de Rabi qui caractérise l'intensité du couplage entre l'onde incidente et le dipôle atomique. Cette force augmente, passe par un maximum quand $\delta = kv$, puis décroît. Elle est dissipative, quand $\delta < kv$.

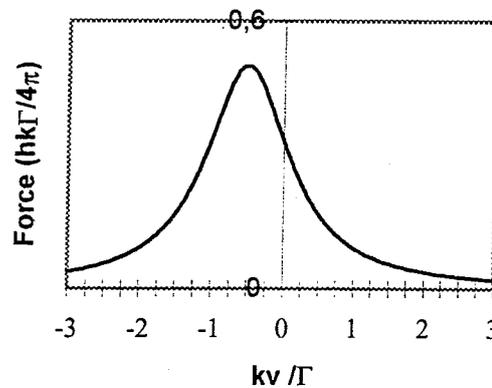


Figure 2-1 : Force de pression de radiation en fonction de la vitesse pour $\Omega = \Gamma / \sqrt{2}$ et $\delta = -0,5\Gamma$. Elle passe par le maximum quand $\delta = kv$

La Figure 2-1 montre que quand la vitesse est supérieure à δ/Γ , la force devient dissipative et l'atome est freiné.

En champ fort (Ω grand), cette force passe par un maximum égal à $\hbar k\Gamma / 2$ quand $\delta - kv$ est nul. Les forces qui s'exercent sur les atomes conduisent à des accélérations ou des décélérations considérables pouvant atteindre près de 6000 fois l'accélération du champ de pesanteur terrestre dans le cas du césium.

2.2.2 Refroidissement Doppler à une dimension

Atomes à 2 niveaux

Mélasse Doppler

La dépendance de la force de pression de radiation (2-6) en fonction de la vitesse, montre que si l'on rajoute un autre faisceau laser de même intensité que le premier mais se déplaçant en sens inverse, on peut confiner les atomes transversalement dans l'espace des vitesses. Ceci constituera une ce qu'on appelle une "mélasse" optique.

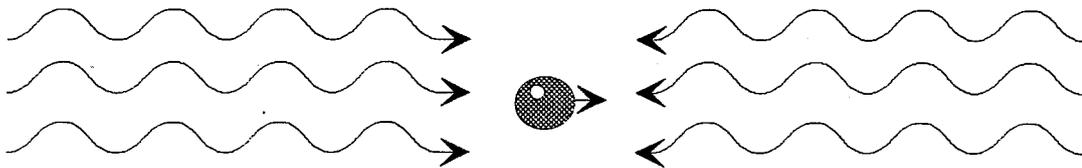


Figure 2-2 : principe d'une mélasse à une dimension.

A faible intensité laser, on peut considérer que chaque faisceau exerce indépendamment sur l'atome une force de pression de radiation (les effets d'interférence entre les deux lasers peuvent être négligés à faible intensité). Comme nous l'avons déjà dit, si la fréquence des lasers est désaccordée vers le rouge, l'atome sera d'avantage en résonance avec le laser qui se propage dans le sens contraire de son mouvement qu'avec le laser qui se propage dans le même sens. La force totale F agissant sur l'atome s'écrira ainsi :

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

(2-7)

Chapitre 2 : Le piège magnéto-optique de césium

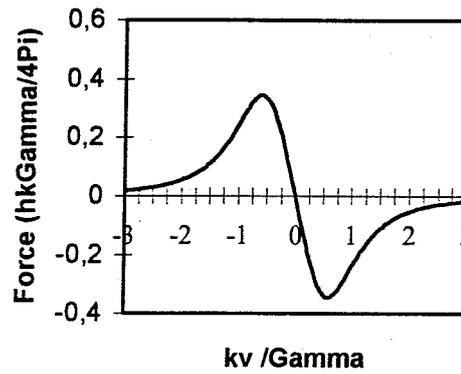


Figure 2-3 : Superposition des deux forces de pression de radiation exercées par les deux lasers se propageant en sens inverse pour $\Omega = \Gamma / \sqrt{2}$ et $\delta = -0,5\Gamma$.

On constate par le calcul que la courbe de la Figure 2-3 présente des maximums pour

$$v_c = \frac{\delta}{k}$$

C'est ce qu'on appelle la vitesse de capture car au delà de cette vitesse, la force devient de plus en plus petite pour finalement s'annuler.

A faible vitesse ($kv \ll \Gamma$ et $kv \ll \delta$), on peut linéariser et la force devient :

$$F = -\alpha v$$

(2-8)

où α s'écrit à faible intensité :

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

(2-9)

α est positif quand le laser est désaccordé vers le rouge ($\delta < 0$). Cette force est une force de friction qui permet d'amortir la vitesse des atomes et de former un échantillon d'atomes "froids" appelé mélasse Doppler.

Limite du refroidissement Doppler

La force stationnaire de friction calculée précédemment induit un taux de pertes d'énergie cinétique :

$$\left(\frac{dE_{\text{refroid}}}{dt} \right) = Fv = -\alpha v^2 \quad (2-10)$$

A cause de la nature aléatoire de l'émission spontanée de l'atome, il faut tenir compte des fluctuations de la force stationnaire qui peuvent impliquer un réchauffement et donc une augmentation de l'énergie cinétique. Ces fluctuations sont décrites par un coefficient de diffusion en impulsion proportionnelle au carré de la marche au hasard dans l'espace des impulsions, et au taux de processus aléatoires :

$$D_p = \hbar^2 k^2 \Gamma \frac{\frac{\Omega^2}{2}}{\delta^2 + \frac{\Gamma^2}{4}} \quad (2-11)$$

Cette expression du coefficient de diffusion est donnée pour un atome à deux niveaux. Le taux d'accroissement de l'énergie cinétique d'échauffement est donné en fonction du facteur de diffusion par [LET 89] :

$$\left(\frac{dE}{dt} \right)_{\text{échauf}} = \frac{D_p}{m} \quad (2-12)$$

A l'équilibre, les taux d'échauffement et de refroidissement sont égaux, ce qui donne :

$$\left(\frac{dE_{\text{refroid}}}{dt} \right) + \left(\frac{dE_{\text{échauf}}}{dt} \right) = 0$$

Chapitre 2 : Le piège magnéto-optique de césium

A cause de cette compétition entre les deux phénomènes d'échauffement et de refroidissement, l'atome ne peut être ralenti au dessous d'une certaine vitesse qu'on appelle vitesse Doppler. L'expression de la vitesse de l'atome est donnée par :

$$v_{Doppler} = \sqrt{\frac{D_p}{m \alpha}} \quad (2-14)$$

Si l'énergie thermique par degré de liberté est égale à $k_B T/2$, on obtient alors l'expression de la température à une dimension :

$$k_B T = \frac{\hbar \Gamma}{2} \quad (2-15)$$

pour un décalage δ égal à $125 \mu\text{K}$ pour le Césium, ce qui correspond à une vitesse de 88 mm/s . Ce résultat justifie bien l'approximation $kv \ll \Gamma$ que nous avons utilisée dans le calcul de la force moyenne stationnaire proportionnelle à v .

Elément	$v_{Doppler} (m / s)$
Li	0.39
Na	0.29
K	0.17
Rb	0.11
Cs	0.086

Tableau 2-1 : Ordre de grandeur de la vitesse moyenne de refroidissement Doppler pour différents atomes.

Ce tableau montre que plus l'atome est lourd, plus sa vitesse moyenne obtenue par refroidissement Doppler est faible.

Configuration lasers de polarisation $\sigma^+ - \sigma^-$

Un moyen efficace de refroidir des atomes par pression de radiation en passant par des cycles absorption-émission spontanée pour une transition $J = 0$ vers $J' = 1$ est d'utiliser deux ondes planes polarisées respectivement σ^+ et σ^- se propageant en sens inverse. Nous allons traiter ce cas un peu plus en détail.

Champ électromagnétique

Considérons donc un atome présentant une transition $J = 0 \rightarrow J' = 1$, soumis à un champ laser constitué d'une onde électromagnétique polarisée σ^+ se propageant suivant $+\vec{e}_z$ et d'une onde électromagnétique polarisée σ^- de même intensité se propageant suivant $-\vec{e}_z$. Chacune de ces ondes a la même fréquence ω_L inférieure à la fréquence ω_0 de transition atomique. On note $\delta = \omega_L - \omega_0$ le décalage entre la fréquence laser et la fréquence atomique. Dans ce paragraphe, nous allons décrire ce système en utilisant le formalisme de la matrice densité et nous donnerons l'expression de la force radiative agissant sur cet atome.

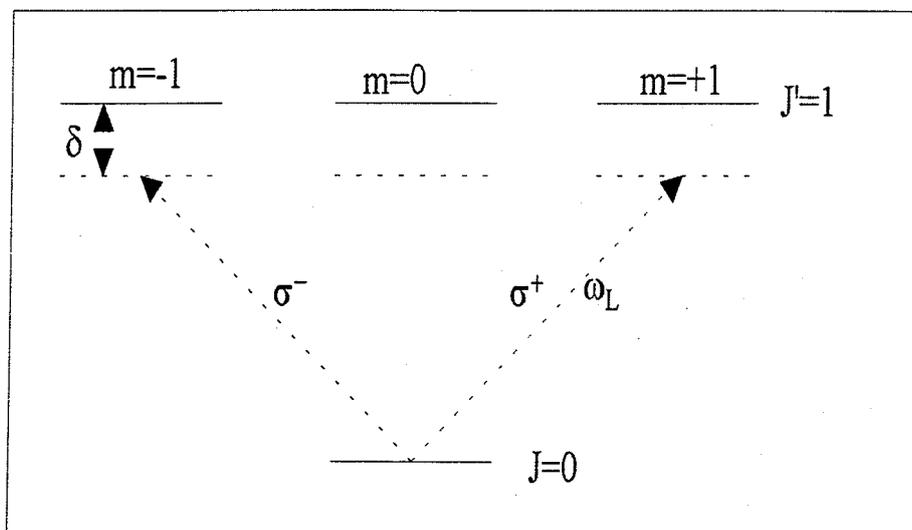


Figure 2-4 : Configuration d'une mélasse optique pour une transition. La fréquence laser est décalée vers le rouge par rapport à la résonance sur la transition.

Chapitre 2 : Le piège magnéto-optique de césium

Champ créé par le laser

Le champ électrique total agissant sur l'atome à l'instant t et en un point z est donné par :

$$\vec{E}(z,t) = \vec{E}^+(z)e^{-i\omega t} + c.c. \quad (2-16)$$

avec

$$\vec{E}^+(z) = E_0(\vec{e}^+ e^{ikz} + \vec{e}^- e^{-ikz})$$

où \vec{e}^+ et \vec{e}^- sont les vecteurs unitaires circulaires du repère cartésien (O,x,y,z) donnés par :

$$\vec{e}^+ = -\frac{1}{\sqrt{2}}(\vec{e}_x + i\vec{e}_y) \quad \text{et} \quad \vec{e}^- = +\frac{1}{\sqrt{2}}(\vec{e}_x - i\vec{e}_y) \quad (2-17)$$

L'amplitude du champ de fréquence positive s'exprime en fonction de \vec{e}_x et \vec{e}_y sous la forme suivante :

$$\vec{E}^+(z,t) = -i\sqrt{2}E_0(\sin(kz)\vec{e}_x + \cos(kz)\vec{e}_y) \quad (2-18)$$

Le champ électrique est donc polarisé selon $\vec{e}(z) = \sin(kz)\vec{e}_x + \cos(kz)\vec{e}_y$ avec une amplitude indépendante de z . Pour $z=0$, ce champ électrique est dirigé suivant $|\vec{e}_y|$. Il se déplace selon \vec{e}_z en tournant avec un angle $-kz$, son extrémité décrit une hélice de pas égal à λ , (λ étant la longueur d'onde du rayonnement).

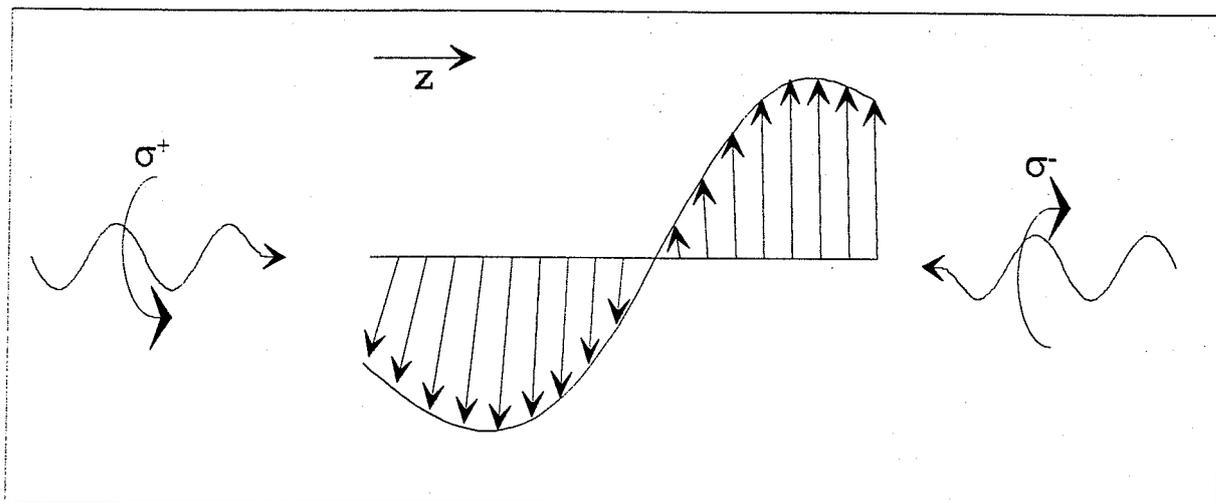


Figure 2-5 : Configuration du champ électrique dans une mélasse optique. Le vecteur de polarisation décrit une ellipse autour de l'axe Oz.

Hamiltonien atomique

On considère un atome présentant une transition $J=0$ vers $J'=1$. On note $|g\rangle$ le niveau fondamental et $|e_m\rangle$, avec $m = +1, 0, -1$, les sous-niveaux Zeeman excités. L'hamiltonien atomique décrit les degrés de liberté externes et internes de l'atome. C'est la somme de l'hamiltonien d'énergie cinétique de translation du centre de masse et de l'hamiltonien interne de l'atome qui correspond à la transition $J=0$ vers $J'=1$:

$$H_A = \frac{\vec{P}^2}{2m} + \hbar \omega_0 \sum_{m=-1,0,+1} |e_m\rangle\langle e_m|$$

(2-19)

\vec{P} est l'impulsion de l'atome et $\vec{P}^2 / 2m$ son énergie cinétique. L'autre terme correspond à l'énergie interne de l'atome. L'énergie du niveau fondamental est choisie comme origine des énergies.

Chapitre 2 : Le piège magnéto-optique de césium

A ce stade, on doit faire deux approximations :

1. On supposera que les dimensions du paquet d'onde atomique sont petites devant la longueur d'onde optique du laser. On pourra ainsi remplacer l'opérateur position R par sa valeur moyenne $\langle R \rangle$ correspondant au centre du paquet d'onde atomique. Cette approximation revient à dire que l'évolution du mouvement de l'atome peut être considérée comme classique et ne nécessite pas un traitement quantique.
2. On supposera aussi que le temps d'évolution des degrés internes de l'atome est bien inférieur aux temps d'évolution des variables externes. Ceci permet de découpler les équations correspondant à l'évolution des degrés de liberté internes et celles correspondant à l'évolution des degrés de liberté externes. Cette différence entre les temps implique que l'énergie de recul à un seul photon $\frac{\hbar^2 k^2}{2m}$ est très petite devant $\hbar\Gamma$ [DAL.84]

On pourra ainsi traiter les degrés de liberté externes classiquement et les degrés de liberté internes quantiquement (suivant en cela une démarche un peu similaire à l'approximation de Born-Oppenheimer). Ce traitement semi-classique simplifiera le calcul de la force radiative par le théorème d'Ehrenfest.

L'hamiltonien d'interaction entre le dipôle atomique et le champ électromagnétique s'écrit :

$$V_{AL} = -\vec{D} \cdot \vec{E} \quad (2-20)$$

où \vec{D} est l'opérateur dipôle électrique atomique et \vec{E} l'opérateur champ électromagnétique. L'opérateur dipôle s'écrit :

$$\vec{D} = \vec{D}^+ + \vec{D}^- \quad (2-21)$$

\vec{D}^+ est le terme qui fait passer l'atome de l'état fondamental à l'état excité et \vec{D}^- celui effectuant l'opération inverse.

Chapitre 2 : Le piège magnéto-optique de césium

Si on substitue les équations (2-16) dans l'équation (2-20), on obtient l'équation suivante :

$$V_{AL} = -\bar{D}^+ \bar{E}^+ e^{-i\omega_1 t} - \bar{D}^- \bar{E}^- e^{+i\omega_1 t} - \bar{D}^+ \bar{E}^- e^{+i\omega_2 t} - \bar{D}^- \bar{E}^+ e^{-i\omega_2 t} \quad (2-22)$$

Les processus associés aux deux premiers termes sont ceux qui interviennent dans les diagrammes habituels de la diffusion de la lumière per les atomes : l'absorption fait passer l'atome de l'état fondamental à l'état excité, et l'atome de désexcite en émettant un photon. Ce sont des termes résonnants. Ils sont plus importants que les deux derniers termes qui ne sont pas résonnants. On les négligera donc en faisant ainsi ce qu'on appelle habituellement l'approximation du champ tournant.

On a donc :

$$V_{AL} = -\bar{D}^+ \bar{E}^+ e^{-i\omega_1 t} - \bar{D}^- \bar{E}^- e^{+i\omega_1 t} \quad (2-23)$$

avec

$$\bar{D}^+ = d \left(|e_{+1}\rangle \langle g| \bar{e}^+ + |e_{-1}\rangle \langle g| \bar{e}^- + |e_0\rangle \langle g| \bar{e}_z \right) \quad (2-24)$$

et

$$\bar{D}^- = (\bar{D}^+)^+ \quad (2-25)$$

Ce qui donne :

$$V_{AL} = \frac{\hbar\Omega}{2} \left\{ \left(|e_{+1}\rangle \langle g| e^{+ikz} + |e_{-1}\rangle \langle g| e^{-ikz} \right) e^{-i\omega_1 t} + c.c. \right\} \quad (2-26)$$

avec $V_{AL} = -\frac{2dE_0}{\hbar}$ la fréquence de Rabi. Elle caractérise l'intensité de couplage entre l'onde incidente et l'atome. Ce couplage s'exerce entre le niveau fondamental et les deux sous-niveaux excités $|e_{+1}\rangle$ et $|e_{-1}\rangle$. Le système considéré est donc un système à trois niveaux.

Formalisme de la matrice densité

L'hamiltonien total qui décrit le système atome-laser est donné par la somme de H_A , l'hamiltonien propre de l'atome, et de V_{AL} , l'hamiltonien d'interaction champ laser-atome :

$$H = H_A + V_{AL} \quad (2-27)$$

Dans le formalisme de la matrice densité, l'équation d'évolution du système s'écrit :

$$i\hbar \frac{\partial \rho}{\partial t} = [H, \rho] + i\hbar \left[\frac{\partial \rho}{\partial t} \right]_{sp} \quad (2-28)$$

où ρ est la matrice densité du système considéré. Le premier terme de cette équation représente l'évolution hamiltonienne, le deuxième terme représente la relaxation due à l'émission spontanée. Ce formalisme de matrice densité est intéressant dans notre cas puisqu'il nous permet de 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.

Le traitement semi-classique nous permet de découpler l'évolution des paramètres internes et externes de l'atome. Cela nous permet d'écrire l'hamiltonien H en un hamiltonien H' où n'apparaît plus le terme d'énergie cinétique :

$$H' = \hbar \omega_0 \sum_{m=-1,0,1} |e_m\rangle \langle e_m| + V_{AL} \quad (2-29)$$

On est alors amené à remplacer dans l'équation (2-28) le terme de dérivée partielle par le terme de dérivée totale (ce qui correspond à l'approximation de l'enveloppe lentement variable):

$$\frac{d}{dt} = \frac{\partial}{\partial t} + \frac{\vec{P} \cdot \vec{\nabla}}{m}$$

(2-30)

où m est la masse de l'atome.

Les termes de relaxation par émission spontanée ne sont pas modifiés par la présence du laser, ce qui explique le fait qu'on ajoute le terme d'émission spontanée phénoménologiquement.

Pour éliminer toute dépendance temporelle due au champ électromagnétique, on pose :

$$\begin{aligned}\sigma_{e+,g} &= \rho_{e+,g} e^{i(\omega_1 t - kz)} = \langle e+1 | \rho | g \rangle e^{i(\omega_1 t - kz)} \\ \sigma_{e-,g} &= \rho_{e-,g} e^{i(\omega_1 t + kz)} = \langle e-1 | \rho | g \rangle e^{i(\omega_1 t + kz)} \\ \sigma_{e+,e-} &= \rho_{e+,e-} e^{-2ikz} = \langle e+1 | \rho | e-1 \rangle e^{-2ikz}\end{aligned}$$

(2-31)

Afin d'alléger la notation, on pose :

$$\begin{aligned}\Pi_{e+} &= \rho_{e+1,e+1} = \langle e+1 | \rho | e+1 \rangle \\ \Pi_{e-} &= \rho_{e-1,e-1} = \langle e-1 | \rho | e-1 \rangle \\ \Pi_{g,g} &= \rho_{g,g} = \langle g | \rho | g \rangle\end{aligned}$$

(2-32)

L'équation de Schrödinger en formalisme de matrice densité donne les équations d'évolution des cohérences :

$$\dot{\sigma}_{e+,g} = \frac{i\Omega}{2} (\Pi_{e+} - \Pi_g + \sigma_{e+,e-}) + i \left(\delta - kv + \frac{i\Gamma}{2} \right) \sigma_{e+,g}$$

Chapitre 2 : Le piège magnéto-optique de césium

$$\begin{aligned}\dot{\sigma}_{e^-,g} &= \frac{i\Omega}{2}(\Pi_{e^-} - \Pi_g + \sigma_{e^-,e^+}) + i\left(\delta + kv + \frac{i\Gamma}{2}\right)\sigma_{e^-,g} \\ \dot{\sigma}_{e^+,e^-} &= \frac{i\Omega}{2}(\sigma_{e^+,g} - \sigma_{g,e^-}) - \left(\Gamma + 2ikv + \frac{i\Gamma}{2}\right)\sigma_{e^+,e^-}\end{aligned}$$

(2-33)

et les équations d'évolution des populations :

$$\begin{aligned}\dot{\Pi}_g &= -\frac{i\Omega}{2}\left[(\sigma_{e^+,g} - \sigma_{g,e^+}) - (\sigma_{e^-,g} - \sigma_{g,e^-})\right] + \Gamma(\Pi_{e^+}\Pi_{e^-}) \\ \dot{\Pi}_{e^+} &= -\frac{i\Omega}{2}\left[\sigma_{g,e^+} - \sigma_{e^+,g}\right] + \Gamma\Pi_{e^+} \\ \dot{\Pi}_{e^-} &= -\frac{i\Omega}{2}\left[\sigma_{g,e^-} - \sigma_{e^-,g}\right] + \Gamma\Pi_{e^-}\end{aligned}$$

(2-34)

avec $\delta = \omega_L - \omega_0$ le désaccord entre la fréquence de l'onde incidente et la fréquence atomique de transition.

A faible intensité ($\Omega \ll \Gamma$), nous pouvons négliger les populations des niveaux excités et les cohérences entre ces niveaux. Dans l'état stationnaire, les expressions des cohérences s'écrivent:

$$\begin{aligned}\sigma_{e^-,g} &= \frac{\frac{\Omega}{2}\Pi_g}{\delta + kv + \frac{i\Gamma}{2}} \\ \sigma_{e^+,g} &= \frac{\frac{\Omega}{2}\Pi_g}{\delta - kv + \frac{i\Gamma}{2}}\end{aligned}$$

(2-35)

Les expressions des cohérences nous permettent de déduire celles des populations des sous-niveaux excités en fonction du niveau fondamental :

Chapitre 2 : Le piège magnéto-optique de césium

$$\Pi_{e^+} = \frac{s_+}{2} \Pi_g$$

$$\Pi_{e^-} = \frac{s_-}{2} \Pi_g$$

(2-36)

avec

$$s_+ = \frac{\frac{\Omega^2}{2}}{(\delta - kv)^2 + \frac{\Gamma^2}{4}}$$

(2-37)

et

$$s_- = \frac{\frac{\Omega^2}{2}}{(\delta + kv)^2 + \frac{\Gamma^2}{4}}$$

(2-38)

s_+ et s_- sont respectivement les coefficients de saturation qui caractérisent les ondes σ_+ et σ_- .

En utilisant la relation de normalisation $\sum_{m=e^{\pm},g} \Pi_m = 1$ et en considérant que Π_{e^+} et Π_{e^-} sont négligeables devant Π_g , on obtient $\Pi_g = 1$.

Ceci implique que :

$$\begin{cases} \Pi_{e^+} = \frac{s_+}{2} \\ \Pi_{e^-} = \frac{s_-}{2} \end{cases}$$

(2-39)

Nous allons maintenant effectuer le calcul de la force radiative Doppler agissant sur l'atome dans une mélasse Doppler $\sigma^+ - \sigma^-$.

Force radiative dans la configuration laser $\sigma^+ - \sigma^-$

A cause de l'effet Doppler, un atome se déplaçant selon Oz absorbe préférentiellement des photons de l'onde se dirigeant dans le sens inverse de son déplacement. Ceci crée une force de pression de radiation opposée à la vitesse atomique v_z qui ralentit le mouvement des atomes selon Oz . Pour calculer cette force, on utilise le théorème d'Ehrenfest :

$$\frac{d\langle \vec{P} \rangle}{dt} = \frac{1}{i\hbar} \langle [\vec{R}(t), \vec{H}(t)] \rangle = \frac{\langle \vec{P} \rangle}{m} \quad (2-40)$$

$$\frac{d\langle \vec{P} \rangle}{dt} = \frac{1}{i\hbar} \langle [\vec{P}(t), H(t)] \rangle = -\langle \vec{\nabla}_{\vec{R}} H(t) \rangle \quad (2-41)$$

La force radiative moyenne s'écrit :

$$F = -\langle \nabla_{\vec{R}} V_{AL} \rangle \quad (2-42)$$

Remarquons que la valeur moyenne de la force est déterminée essentiellement par la dynamique des variables internes de l'atome.

Un calcul simple montre que la force est proportionnelle à la différence entre les populations des sous-niveaux Zeeman excités :

$$F = \frac{\hbar k \Gamma}{2} (\Pi_{e^+} - \Pi_{e^-}) \quad (2-43)$$

Dans le régime à faibles vitesses, et en remplaçant les populations des sous-niveaux excités par leurs valeurs, on obtient :

$$F = \hbar k \Gamma \frac{8 \delta k v \frac{\Omega^2}{2}}{\left(\delta^2 + \frac{\Gamma^2}{4} \right)^2}$$

(2-44)

La force dépend du décalage et de l'intensité des lasers mais aussi varie linéairement avec la vitesse avec un coefficient α_D qui s'écrit :

$$\alpha_D = \hbar k \Omega \frac{8 \delta k \frac{\Omega^2}{2}}{\left(\delta^2 + \frac{\Gamma^2}{4} \right)^2}$$

(2-45)

Remarque :

En comparant la valeur de ce coefficient de frottement par rapport à celui d'un système à deux niveaux (équation (2-9)) , on remarque que le premier est 4 fois plus grand que le deuxième. En fait, il y a un facteur seulement si on considère le cas d'un système à deux niveaux donné par une transition $J=0 \rightarrow J=1$ dans une configuration laser $\sigma^+ - \sigma^-$

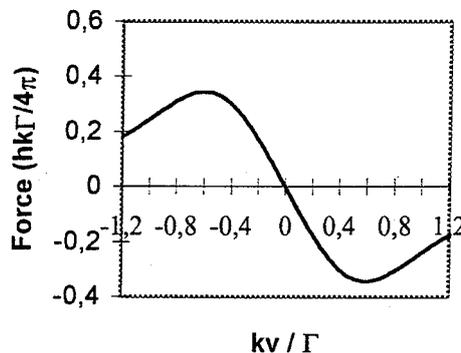


Figure 2-6 : Force Doppler en fonction de la vitesse dans une configuration $\sigma^+ - \sigma^-$ pour une transition $J=0$ vers $J'=1$ pour $\delta = -\Gamma/2$ et $\Omega = 0.707\Gamma$.

Le signe de la force dans le régime de faibles vitesses dépend du signe du décalage. Si $\delta > 0$, la force est dans le sens du mouvement de l'atome, c'est une force d'accélération qui

Chapitre 2 : Le piège magnéto-optique de césium

réchauffe l'échantillon d'atomes. Si $\delta < 0$, la force est opposée au mouvement de l'atome, c'est une force de frottement qui a tendance à freiner l'atome et à amortir sa vitesse. Sous l'effet de cette force, les atomes sont alors refroidis. La région où les atomes sont confinés est appelée "mélasse optique". La vitesse où la force atteint son maximum est appelée vitesse de capture. A $\delta = -\Omega/2$ et à $s = 1$, la vitesse de capture est de l'ordre de quelques $\Gamma/2k$. Pour se fixer les idées, nous allons donner l'ordre de grandeur de cette vitesse pour différents éléments.

Elément	Vitesse de capture(m/s)
Li	1.95
Na	3.27
K	2.18
Rb	2.30
Cs	2.25

2.2.3 Piégeage à une dimension

Jusqu'à présent, nous n'avons que ralenti et refroidi les atomes. On n'a fait que les confiner dans l'espace des vitesses. Il nous reste une étape importante qui consiste à piéger les atomes dans l'espace des positions (l'espace réel). Ceci peut être réalisé grâce à l'adjonction d'un gradient de champ magnétique à la zone de mélasse optique. On obtient alors ce qu'on appelle un piège magnéto-optique.

Dans ce paragraphe, nous expliquerons le principe du piège magnéto-optique pour un système atomique simple présentant une transition $J = 0 \rightarrow J' = 1$. Ce principe repose sur l'idée simple d'appliquer à une mélasse optique en configuration laser $\sigma^+ - \sigma^-$, un gradient de champ magnétique variant linéairement avec la distance au centre du piège. Comme nous allons le montrer, il se superpose à la force de frottement, une force de rappel qui tend à piéger les atomes refroidis dans la zone autour du champ magnétique nul.

Considérons, comme nous l'avons toujours fait jusqu'à maintenant, un atome dans un champ électromagnétique de deux lasers de polarisation respectivement σ^+ et σ^- se propageant dans la même direction \vec{e}_z mais en sens inverse. Supposons que ces lasers sont désaccordés vers le rouge par rapport à la fréquence de la transition atomique d'une quantité δ . On ajoute à ce dispositif un gradient de champ magnétique de même direction que les lasers :

$$\vec{B} = \frac{\partial B}{\partial z} z \vec{e}_z$$

(2-46)

Considérons le cas d'un atome au repos. A cause de l'effet du champ magnétique sur le niveau excité, les énergies des sous-niveaux $m'_j = \pm 1$ sont déplacés d'une quantité égale à $\Delta E = \mu_B m'_j B$ où μ_B est le magnéton de Bohr. Le sens du déplacement de ces sous-niveaux dépend du signe de m'_j . Grâce au choix de la polarisation des lasers et du désaccord, un atome positionné en $z > 0$ sera plus en résonance avec l'onde se dirigeant vers les $z < 0$. En effet, la

Chapitre 2 : Le piège magnéto-optique de césium

polarisation σ^- de l'onde induit une transition de $m_J = 0$ vers $m'_J = -1$ qui est très hors résonance. En conséquence, la pression de radiation exercée par l'onde σ^- est plus forte que celle exercée par σ^+ . A cause de ce déséquilibre de force, l'atome est donc poussé vers le centre du piège.

Quand l'atome est en mouvement, les fréquences optiques vues par l'atome vont se décaler per effet Doppler. Celle correspondant à σ^- va être égale à $\omega_l + kv$ et celle correspondant à σ^+ à $\omega_l - kv$. Ainsi, pour $v > 0$, l'atome va être plus en résonance avec le laser σ^- qu'avec le laser σ^+ . La force ressentie par l'atome résulte d'un déséquilibre entre les forces exercées des deux côtés. La situation est évidemment inversée pour $v < 0$.

A cause de ces deux effets (Zeeman et Doppler), l'atome est en résonance avec σ^+ ou σ^- quand la condition suivante est satisfaite :

$$\delta = \pm \left(kv + \frac{\mu_B g \frac{\partial B}{\partial z}}{\hbar} \right)$$

(2-47)

avec k : module du vecteur d'onde atomique

μ_B : magnéton de Bohr,

g : facteur de Landé,

δ : décalage entre la fréquence de transition atomique et la fréquence laser.

La Figure 2-7 illustre ce principe.

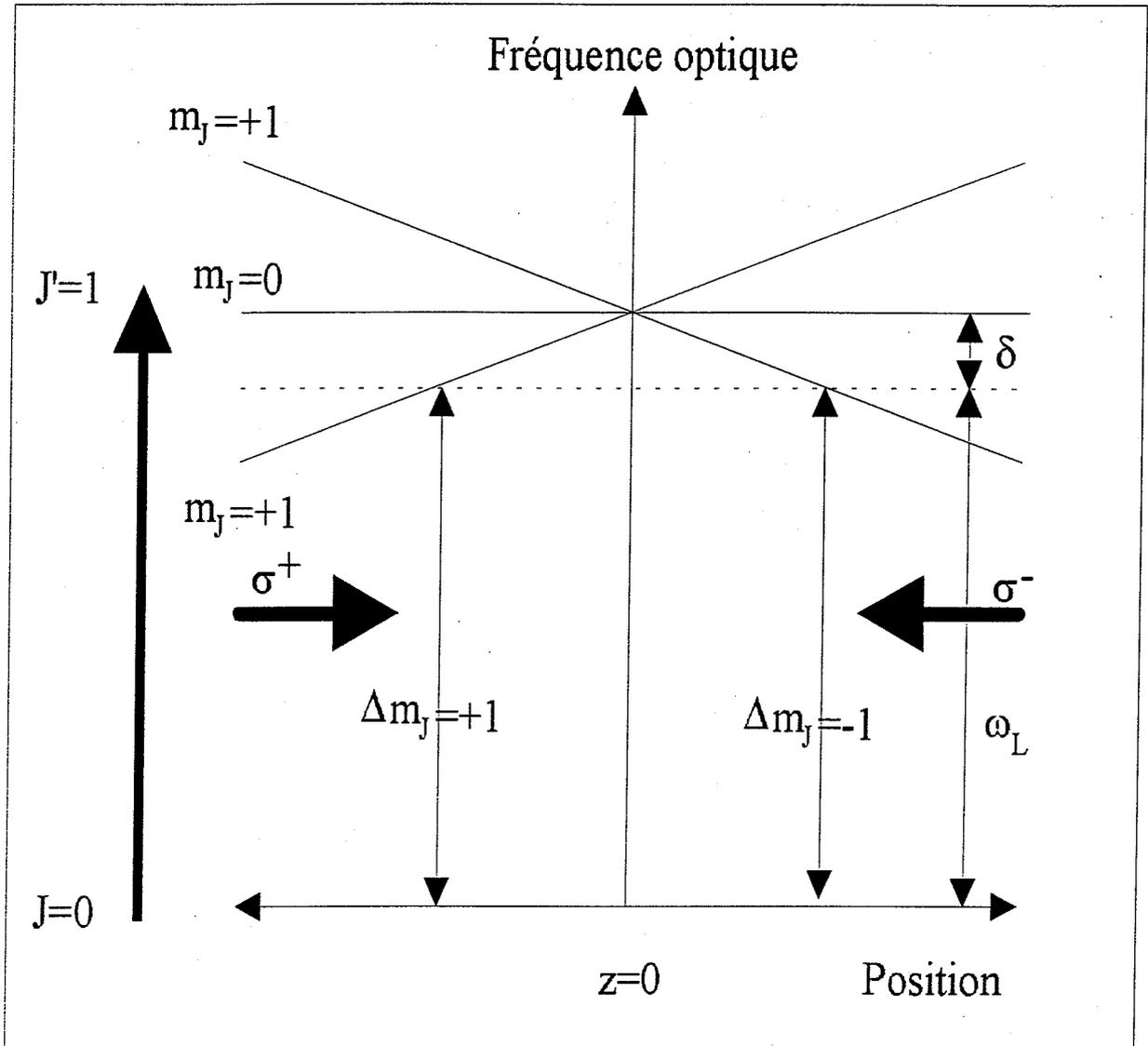


Figure 2-7 : Principe du piège magnéto-optique à une dimension pour un atome au repos de moment angulaire $J = 0$ dans le niveau fondamental et $J' = 1$ dans le niveau excité.

2.2.4 Piège magnéto-optique 1D dans le cas d'une transition J vers $J'=J+1$

Nous allons maintenant généraliser les résultats précédents au cas de la transition $J \rightarrow J+1$ (où J et $J+1$ sont les moments cinétiques associés respectivement au niveau fondamental et excité de l'atome). Nous nous limitons encore au cas d'une seule dimension spatiale. Ces transitions s'effectuent dans des systèmes multi-niveaux composés de plusieurs sous-niveaux Zeeman fondamentaux et de plusieurs sous-niveaux Zeeman excités. Il a été démontré que ces sous-niveaux ont une très grande importance et sont à l'origine de mécanismes nouveaux pour le refroidissement et la compression dans les mélasses et dans les pièges. Ce sont les mécanismes sub-Doppler. Ces mécanismes sont plus efficaces que les mécanismes Doppler lorsqu'on veut atteindre des températures très basses pour un échantillon atomique et aussi lorsqu'on veut obtenir une compression très forte.

Ce paragraphe comporte deux parties principales : La première présente les mécanismes Doppler et la force dissipative de friction pour une mélasse et pour un piège dans le cas d'un atome à transition $J \rightarrow J+1$. La deuxième partie sera consacrée à la présentation de paramètres importants comme la force de piégeage et la plage de capture. La troisième enfin présentera les mécanismes sub-Doppler.

Les mécanismes Doppler

L'interprétation physique de ce qui se passe dans un piège lorsque l'on utilise une transition J vers $J+1$ est assez compliquée. C'est pour cette raison que l'on va commencer par introduire et expliquer le rôle que joue la présence de plusieurs sous-niveaux dans une mélasse Doppler. La première étape va consister à calculer l'hamiltonien du système. Puis nous en tirerons des conséquences pour ce qui est du comportement de l'atome soumis aux différents champs.

Chapitre 2 : Le piège magnéto-optique de césium

Nous avons exposé plus haut le formalisme de la matrice densité pour la transition $J = 0$ vers $J' = 1$. Nous ne referons pas toute l'étude mais ce qui a été fait plus haut doit servir de guide intuitif dans le cas présent pour lequel nous donnerons le résultat donnant la force sans démonstration. Nos expériences ont été effectuées sur des césium qui présente une transition $F = 4$ vers $F' = 5$. On notera désormais la transition F vers $F + 1$ plutôt que J vers $J + 1$. L'axe de quantification sera l'axe Oz , axe de propagation des lasers.

Dans le cas F vers $F' = F + 1$, l'hamiltonien de l'atome isolé est la somme de l'hamiltonien énergie cinétique associé aux degrés de liberté externes de l'atome et de l'hamiltonien associé aux degrés de liberté internes de l'atome. Il s'écrit donc :

$$H_A = \frac{P^2}{2m} + \sum_{m'_F} \hbar \omega_{FF'} |F', m'_F\rangle \langle F', m'_F| \quad (2-48)$$

où $\omega_{FF'}$ est la fréquence propre atomique de la transition considérée et m'_F sont les sous-niveaux correspondant au niveau excité F' . On prend comme origine des énergies l'énergie du niveau fondamental F en l'absence de champ magnétique.

L'hamiltonien d'interaction entre l'atome et le champ magnétique s'écrit quant à lui :

$$H_{AC} = -g_F \mu_B \vec{B} \cdot \vec{F} - g_{F'} \mu_B \vec{B}' \cdot \vec{F}' \quad (2-49)$$

où g_F et $g_{F'}$ sont les facteurs de Landé correspondant respectivement aux niveaux F et F' et μ_B est le magnéton de Bohr.

L'hamiltonien d'interaction entre l'atome et le champ électromagnétique s'exprime en fonction de l'opérateur dipôle électrique \vec{D} et de l'opérateur champ électrique $\vec{E}(z)$:

Chapitre 2 : Le piège magnéto-optique de césium

$$V_{AL} = -\vec{\mathbf{D}} \cdot \vec{\mathbf{E}} \quad (2-50)$$

Le théorème de Wigner-Eckart dans l'espace des moments cinétiques nous permet d'écrire :

$$\vec{\mathbf{D}} = \vec{\mathbf{D}}^+ + \vec{\mathbf{D}}^- \quad (2-51)$$

avec

$$\begin{aligned} \vec{\mathbf{D}}^+ &= \sum_{q=0,\pm 1} \sum_{m_F m_F'} C_{m_F}^{m_F'} (-1)^{F-m_F} |F', m_F'\rangle \langle F, m_F| d\vec{e}_q \\ \vec{\mathbf{D}}^- &= \sum_{q=0,\pm 1} \sum_{m_F m_F'} C_{m_F}^{m_F'} (-1)^{F-m_F} |F, m_F\rangle \langle F', m_F'| d\vec{e}_q \end{aligned} \quad (2-52)$$

où d représente l'élément de matrice réduit qui peut être rendu réel par un choix de phase adéquat. $\vec{\mathbf{D}}^+$ est la partie ascendante et $\vec{\mathbf{D}}^-$ la partie descendante. Les vecteurs de polarisation sont écrits dans la base standard :

$$\begin{aligned} \vec{e}_0 &= \vec{e}_z \\ e_{\pm 1} &= \mp \frac{1}{\sqrt{2}} (\vec{e}_x \pm i\vec{e}_y) \end{aligned} \quad (2-53)$$

Les $C_{m_F}^{m_F'}$ sont les coefficients 3j proportionnels aux coefficients de Clebsch-Gordan et sont donnés par :

$$C_{m_F}^{m_F'} = \begin{pmatrix} F & 1 & F' \\ -m_F & q & m_F' \end{pmatrix} \quad (2-54)$$

Nous allons écrire maintenant l'expression du champ électromagnétique $\vec{\mathbf{E}}(z)$. Ce champ est obtenu par la superposition des deux ondes σ^+ et σ^- qui sont de même intensité mais de vecteurs d'onde opposés :

Chapitre 2 : Le piège magnéto-optique de césium

L'amplitude totale s'écrit (cette description a été faite plus précisément dans le chapitre sur le refroidissement Doppler) :

$$\bar{\mathbf{E}}(z, t) = \bar{\mathbf{E}}^+(z, t)e^{-i\omega_L t} + c.c. \quad (2-55)$$

avec

$$\bar{\mathbf{E}}^+(z, t) = E_0 e^{ikz} \bar{\mathbf{e}}_{+1} + E_0 e^{-ikz} \bar{\mathbf{e}}_{-1} \quad (2-56)$$

Dans l'approximation du champ tournant, l'hamiltonien d'interaction s'écrit :

$$V_{AL} = -\bar{\mathbf{D}}^+ \cdot \bar{\mathbf{E}}^+ e^{-i\omega_L t} - \bar{\mathbf{D}}^- \cdot \bar{\mathbf{E}}^- e^{i\omega_L t} \quad (2-57)$$

En utilisant les expressions de l'opérateur dipolaire et du champ électromagnétique, l'hamiltonien d'interaction s'écrit :

$$V_{AL} = -d \sum_{q=0, \pm 1} \sum_{m_F, m'_F} C_{m_F}^{m'_F} \left[E_q e^{-i\omega_L t} |F', m'_F\rangle \langle F, m_F| + c.c. \right] \quad (2-58)$$

Pour décrire l'évolution du système, on utilise le formalisme de la matrice densité. Cette description est similaire à ce qui a été fait dans le cas plus simple J vers $J+1$. Nous n'en développerons pas les calculs.

Considérons le cas physique qui est le notre : Un système atomique à transition $F = 4$ vers $F' = 5$. La Figure 2-8 montre les différents niveaux du césium et les coefficients de Clebsch-Gordan des différentes transitions.

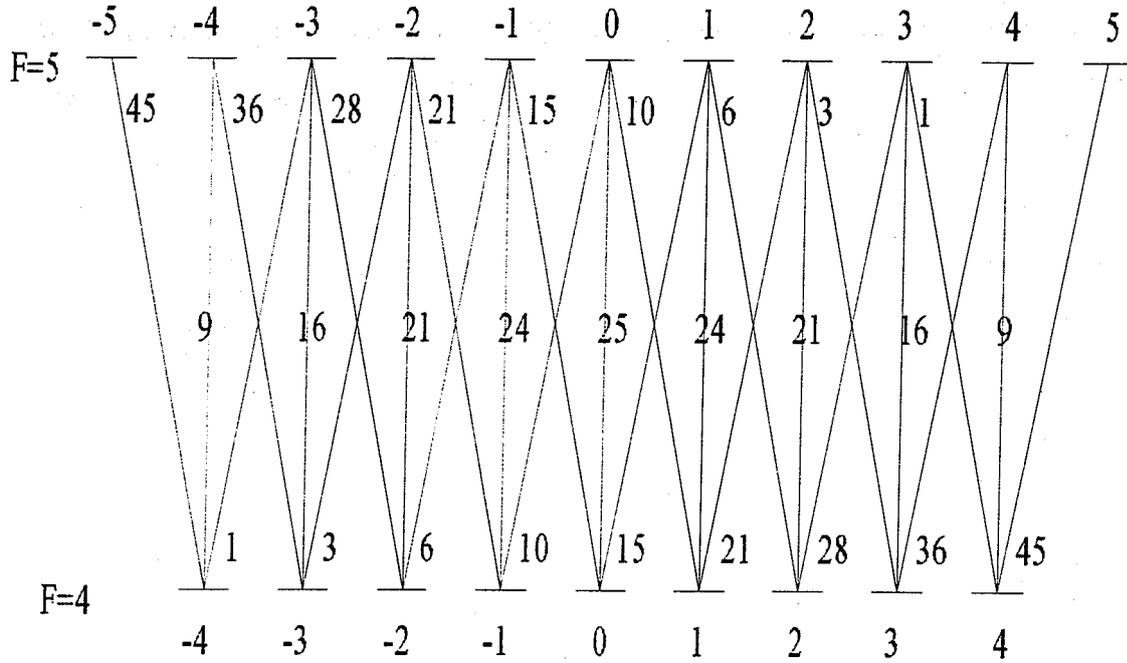


Figure 2-8 : Schéma des niveaux du césium et coefficients de Clebsch-Gordan des différentes transitions.

La transition $F=4$ vers $F'=5$ est excitée par deux faisceaux lasers polarisés respectivement σ^+ et se propageant en sens inverse et décalés en fréquence vers le rouge d'une quantité $\sigma = \omega_L - \omega_0 < 0$. La Figure 2-8 montre des probabilités d'absorption différentes pour les polarisations de champ σ^+ et σ^- . On constate de plus que ces probabilités dépendent du sous-niveau magnétique considéré. Si le champ électromagnétique est polarisé σ^+ (respectivement σ^-), tous les atomes seront portés par pompage optique dans le niveau fondamental $m_F = 4$ (respectivement $m_F = -4$) et le système sera équivalent à un système à trois niveaux pour la transition cyclante $m_F = 4$, $m'_F = 5$ et $m'_F = 3$ (respectivement $m_F = -4$, $m'_F = -5$ et $m'_F = -3$). Dans notre mélasse optique, si l'atome est davantage en résonance avec σ^+ , ce qui est le cas si sa vitesse est opposée à la direction de propagation de ce laser, il aura tendance à être pompé vers $m_F = 4$. Etant dans ce niveau, il aura 45 fois plus de chances d'absorber des photons σ^+ , si on ne tient pas compte de l'effet Doppler qui va encore renforcer ce déséquilibre. On pourra donc considérer que dans sa phase stationnaire, l'atome de vitesse v non nulle et positionné en z est en interaction avec σ^+ (respectivement σ^-) et est équivalent à un système à deux niveaux qui sont $m_F = 4$ et $m'_F = 5$ (respectivement $m_F = -4$

Chapitre 2 : Le piège magnéto-optique de césium

et $m'_F = -5$). L'atome effectue un grand nombre de cycles absorption-émission spontanée sur l'une des deux transitions. A chaque absorption, il perd une quantité de mouvement équivalente à sa vitesse de recul. Les forces de pression de radiation provenant des deux lasers agissant sur cet atome sont donc différentes. Comme la force totale est la somme de ces deux forces à faible intensité laser, elle présentera les caractéristiques d'une force dissipative de mélasse qui s'oppose au mouvement de l'atome.

Le calcul de la force se fait par le théorème d'Ehrenfest :

$$F = -\langle \nabla_R V_{AL} \rangle \quad (2-59)$$

En faisant le calcul d'une manière générale, l'expression de la force pour une transition F vers $F = F + 1$ est donné, si on néglige toute cohérence entre niveaux Zeeman, par :

$$F_D = \frac{\hbar k \Gamma}{2} \sum_{i=-F}^F (s_+ C_{m_i}^{m'_i+1} - s_- C_{m_i}^{m'_i-1}) \Pi_i \quad (2-60)$$

avec

$$s_{\pm} = \frac{\frac{\Omega^2}{2}}{(\delta_{\pm} kv)^2 + \frac{\Gamma^2}{4}} \quad (2-61)$$

où les s_{\pm} représentent les paramètres de saturation des deux ondes σ^+ et σ^- de la transition qui a un coefficient de Clebsch-Gordan égal à 1. Cette force fait intervenir simplement les populations des sous-niveaux fondamentaux Π_i . Ceci explique bien le fait qu'elle résulte du déséquilibre entre ces populations. Celles-ci sont calculées à partir des solutions à l'état stationnaire des équations d'évolution de la matrice densité.

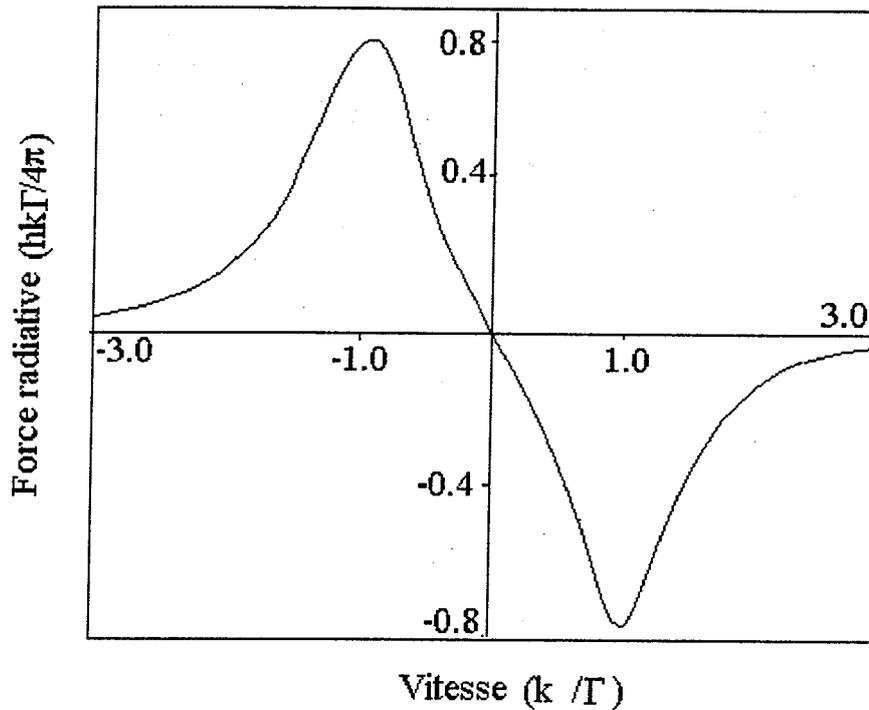


Figure 2-9 : Force Doppler en fonction de la vitesse pour la transition $F = 1 \rightarrow F' = 2$ pour $s_0 = 3$ et $\delta = -2\Gamma$.

Les mécanismes du piège magnéto-optique

Considérons maintenant le système atome-laser présenté précédemment mais soumis en plus à un champ magnétique qui a la même direction que les lasers et un gradient constant $B = z \partial B / \partial z$. Comme expliqué auparavant l'atome subit une force de frottement et une force de rappel. Dans cette partie, nous allons expliquer le fonctionnement du piège Doppler pour un système multi-niveaux.

Commençons tout d'abord par étudier le déplacement des sous-niveaux avant de donner l'expression de la force Doppler de piégeage.

Chapitre 2 : Le piège magnéto-optique de césium

Le déplacement d'un niveau dû à la présence d'un champ magnétique peut s'écrire ainsi :

$$\delta_{mag} = g \omega_B z \quad (2-62)$$

si $\omega_B = \frac{\mu_B}{\hbar} \frac{\partial B}{\partial z}$ et g le facteur de Landé du niveau considéré.

Compte tenu du déplacement dû à l'effet Doppler, le décalage total entre deux sous-niveaux s'écrit donc :

$$\delta_{m_F, m_F' = m_F \pm 1} = \delta + m_F (kv + g_F \omega_B z) - (m_F \pm 1) (kv + g_F' \omega_B z) \quad (2-63)$$

où δ est le décalage entre la fréquence du laser et la fréquence de la transition atomique, g_F le facteur de Landé du niveau F et g_F' celui du niveau F' .

La Figure 2-10 illustre la contribution du déplacement Zeeman au décalage entre les différents couplages optiques dans la transition $F = 4$ vers $F' = 5$ d'un atome au repos. D'après les règles de sélection, un atome à $z > 0$ sur le sous-niveau $m_F = -4$ ne peut être excité que vers le sous-niveau $m_F' = -5$ en absorbant un photon σ^- ou vers le sous-niveau $m_F' = -3$. A δ négatif, la première est beaucoup plus résonante que la deuxième. Le système pourra donc être considéré comme un système à deux niveaux. Le décalage Zeeman compense le décalage dû aux coefficients de Clebsch-Gordan jusqu'à ce que les deux ondes se compensent, c'est à dire quand l'atome sera revenu au centre du piège.

On constate, en regardant le mécanisme en détail, que le moment magnétique de l'atome s'oriente toujours suivant la direction du champ magnétique local. Ceci est vrai pour une dimension mais le reste à deux et trois dimensions. Une bonne description de ce phénomène peut être trouvée dans [DJE.95].

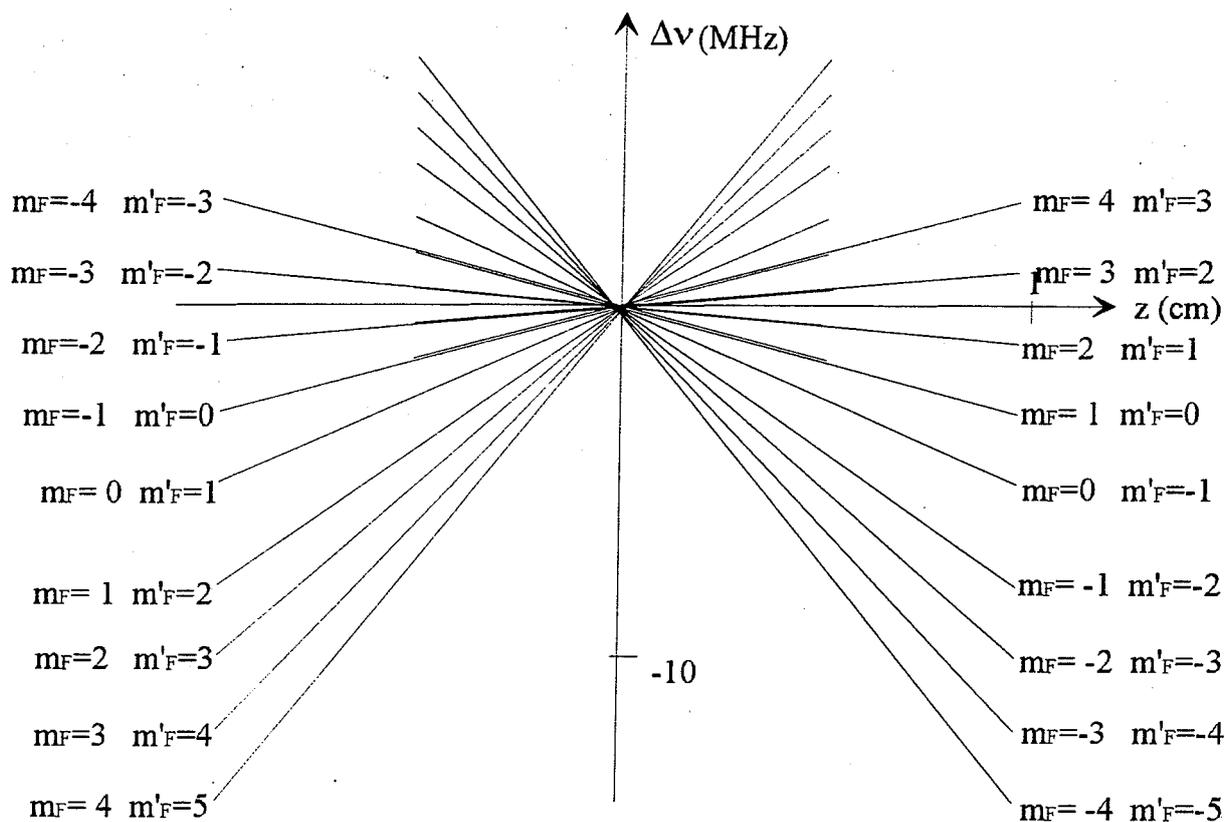


Figure 2-10 : Décalage Zeeman des sous-niveaux de la transition $F = 4$ vers $F' = 5$ pour un atome de césium au repos. A $z > 0$, l'atome est plus en résonance avec le laser σ^- qu'avec le laser σ^+ , ce qui entraîne des cycles de fluorescence absorption-émission spontanée entre le sous-niveau $m_F = -4$ et le sous-niveau $m'_F = -5$. Ce système à plusieurs niveaux devient équivalent à un système à deux niveaux. A vitesse non nulle, ces sous-niveaux vont se déplacer et sera plus en résonance avec σ^- et moins en résonance avec σ^+ . L'effet Doppler accentue le phénomène de piégeage.

Donnons maintenant l'expression de la force dans le cas où l'atome est sur le niveau $m_F = -4$. Elle s'écrit d'après ce qui précède et en considérant que toutes les populations sont négligeables devant Π_4 :

$$F_{m_F=\pm 4} = \frac{\hbar k \Gamma}{2} \left\{ \frac{\frac{\Omega^2}{2}}{\left(\left(\delta \pm 4 \left(kv + 0.35 \frac{\partial B}{\partial z} z \right) \pm 5 \left(kv + 0.56 \frac{\partial B}{\partial z} z \right) \right)^2 + \frac{\Gamma^2}{4} \right)} - \frac{\frac{\Omega^2}{2}}{\left(\left(\delta \pm 4 \left(kv + 0.35 \frac{\partial B}{\partial z} z \right) \pm 3 \left(kv + 0.56 \frac{\partial B}{\partial z} z \right) \right)^2 + \frac{\Gamma^2}{4} \right)} \right\} \quad (2-64)$$

Cette force est représentée sur la Figure 2-11.

Un paramètre important pour les expériences est ce qu'on appelle la plage de capture. Elle est définie comme étant la distance au centre pour laquelle la dérivée de la force s'annule. Le calcul montre que ce paramètre est égal à :

$$z_{\text{Capture}} = \pm \frac{\delta - kv}{1.4 \frac{\partial B}{\partial z}} \quad (2-65)$$

Il faut noter sur cette expression que cette zone de capture est inversement proportionnelle au gradient de champ magnétique. Donc, plus le champ sera important, plus la taille du piège sera faible.

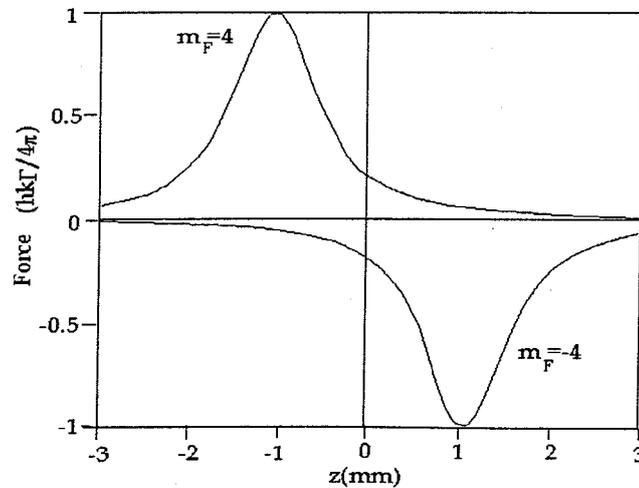


Figure 2-11 : Variation des deux forces $F_{m_F=\pm 4}$ en fonction de la position transversale pour $\delta = -\Gamma, \Omega = 0.707\Gamma$ et à un gradient de champ magnétique de 40 G/cm.

2.2.5 Les mécanismes sub-Doppler

On a vu que pour les mélasses optiques, des mesures de températures plus faibles que les [LET.88], [SHE.89], [DAL.89]^a, [CHU.89] ont conduit à de nouvelles explications de refroidissement : les mécanismes sub-Doppler [DAL.89]^b, [UNG.89]. Ces explications reposent sur la prise en compte de la structure en sous-niveaux Zeeman de l'état fondamental et de la dépendance spatiale de la polarisation des lasers . Si on inclut les cohérences entre les sous-niveaux Zeeman de l'état fondamental, les atomes subissent une force de friction supplémentaire dont le coefficient de friction est plus important mais dont la plage de capture est plus réduite. Cette force conduit à des températures plus faibles que les températures Doppler. C'est pour cette raison qu'on les appelle des températures "sub-Doppler".

Nous ne présenterons pas en détail ces mécanismes qui sont au delà du sujet de notre étude. Dans un premier paragraphe, nous en présenterons les grandes lignes dans le cas des mélasses, dans Les mécanismes dans les pièges magnéto-optiques feront l'objet du deuxième paragraphe.

Mélasses sub-Doppler

Plaçons nous dans la situation physique où un atome est au repos et subit l'action de deux faisceaux lasers σ^+ et σ^- se propageant en sens inverse et étant décalés vers le rouge. Comme l'atome est fixe, il voit un champ électrique de polarisation linéaire fixe selon, mettons, Oy . L'effet Stark dynamique va déplacer les sous-niveaux Zeeman de l'atome sans toutefois lever la dégénérescence entre m_F et $-m_F$. Pour cette raison, il n'y a aucune force qui s'applique sur l'atome.

Si l'atome est maintenant en mouvement avec une vitesse v suivant Oz , il voit une polarisation linéaire qui tourne autour de l'axe Oz , dans le plan xOy , et avec un angle $\phi = kv t$ par rapport à l'axe Oy . Dans ce genre de situation, il est adéquat d'introduire dans le

Chapitre 2 : Le piège magnéto-optique de césium

repère lié à l'atome et tournant autour de l'axe Oz avec une pulsation $-kv$, de sorte que, dans ce repère, la polarisation laser garde une direction fixe indépendante de la position.

Cette transformation, en terme de mécanique quantique, est unitaire et peut s'écrire :

$$T(t) = e^{\frac{-ikzF_z}{\hbar}} \quad (2-66)$$

où F_z est la composante du moment cinétique total \vec{F} de l'atome suivant Oz . Par cette transformation, on est conduit à un nouvel hamiltonien [COH.73]:

$$\tilde{H} = T(t)HT^+(t) + i\hbar \left(\frac{dT(t)}{dt} \right) T^+(t) \quad (2-67)$$

Le premier terme de cette expression correspond simplement à l'hamiltonien d'un atome interagissant avec un champ laser de polarisation linéaire fixe parallèle à Oy . En revanche, le deuxième terme est un terme inertiel provenant de la rotation du référentiel. Il est égal à :

$$V_{rot} = kvF_z \quad (2-68)$$

Il peut être considéré comme un hamiltonien d'interaction entre l'atome et un champ magnétique fictif parallèle à Oz et autour duquel la précession de Larmor du moment cinétique total s'effectuerait à la pulsation kv . Ce champ magnétique fictif serait donné par :

$$B_{fictif} = -\frac{kv}{g_F \mu_B} \quad (2-69)$$

où g_F est le facteur de Landé du niveau fondamental et μ_B le magnéton de Bohr de l'électron. Si on compare le nouvel hamiltonien avec celui de l'atome au repos, on constate que c'est ce terme additionnel qui est à l'origine des nouveaux mécanismes de refroidissement. En effet, quand l'atome se déplace, la polarisation du champ laser change tellement rapidement que le

Chapitre 2 : Le piège magnéto-optique de césium

moment cinétique total n'arrive plus à suivre la rotation de la polarisation. Ce qui veut dire que les degrés de liberté internes de l'atome n'arrivent pas à suivre ses degrés de liberté externes. Ce terme inertiel induit un couplage non-adiabatique proportionnel à $k\nu$ entre les sous-niveaux fondamentaux. On démontre [DAL.89]^b [COH.91] que ce couplage dû au mouvement entraîne une différence entre les populations des états m_F et $-m_F$. En calculant les solutions stationnaires du système d'équations différentielles couplées, il en résulte que la différence de populations entre ces sous-niveaux dépend linéairement de la vitesse. Ce déséquilibre conduit à une force de friction importante. On relie ce déséquilibre au fait que les atomes ne suivent pas adiabatiquement la variation de polarisation tournant à la vitesse angulaire $-k\nu$.

La force sub-Doppler, dans une mélasse $F \rightarrow F+1$ par exemple, est donnée par [DAL.89]^b :

$$F = -\alpha v \tag{2-70}$$

avec

$$\alpha = \frac{120}{17} \frac{-\mathcal{A}\Gamma}{5\Gamma^2 + 4\delta^2} \hbar k^2 \tag{2-71}$$

Le coefficient de frottement ne dépend pas de l'intensité du laser, contrairement à la force Doppler. Ce qui signifie qu'à faible vitesse, c'est le refroidissement sub-Doppler qui va l'emporter. Cependant, la plage de capture est beaucoup plus faible et par conséquent, l'effet sera faible.

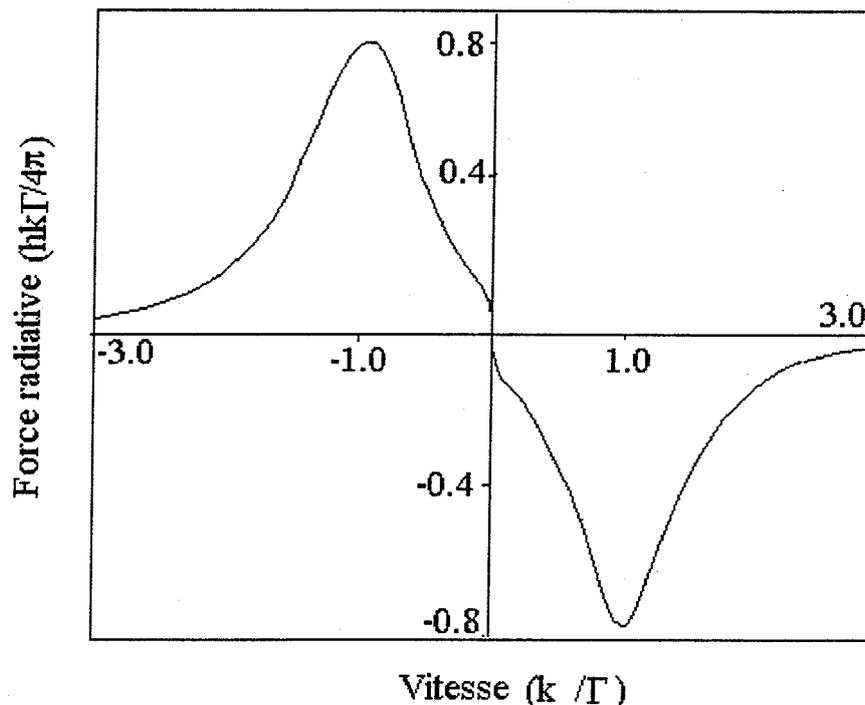


Figure 2-13 : Force sub-Doppler en fonction de la vitesse pour la transition $F = 2 \rightarrow F' = 3$ pour $s = 3$ et $\delta = -2\Gamma$.

Pièges magnéto-optiques sub-Doppler

Comme pour la force de mélasse, à la force de rappel Doppler se superpose une force "sub-Doppler" plus efficace autour de $z = 0$ mais de portée moindre. Cette force a exactement la même origine que la force sub-Doppler dans une mélasse. L'utilisation de la théorie des mélasses sub-Doppler de configuration $\sigma^+ - \sigma^-$ et du théorème de Larmor permet d'effectuer l'analyse du refroidissement sub-Doppler dans un piège [WAL.92]. Nous allons dans ce paragraphe simplement donner le point de départ de l'analyse, donner le résultat de la force et la commenter rapidement.

L'hamiltonien utilisé est celui du système atome + interaction atome - champ laser + interaction atome - champ magnétique :

Chapitre 2 : Le piège magnéto-optique de césium

$$H = H_0 + kvJ_z - \mu_z B$$

(2-72)

En résolvant les équations de Bloch optiques pour l'état stationnaire, on obtient l'expression de la force sub-Doppler :

$$F = -\kappa_{sub} z$$

(2-73)

avec

$$\kappa_{sub} = c_F \frac{g_F \mu_B k}{2} \frac{dB_z}{dz} \frac{|\delta| \Gamma}{\delta^2 + \frac{\Gamma^2}{4}}$$

(2-74)

Remarques :

- les coefficients sub-Doppler varient suivant l'inverse de δ alors que ceux de la force Doppler varient suivant l'inverse du cube de δ .
- les premiers ne dépendent pas de l'intensité laser alors que les seconds en dépendent linéairement.

En conclusion, dans un piège magnéto-optique, les mécanismes sub-Doppler jouent un rôle important dans la zone du piège au voisinage du champ magnétique nul et la compression devient plus efficace à cause du refroidissement sub-Doppler.

2.2.6 Le piège magnéto-optique à trois dimensions

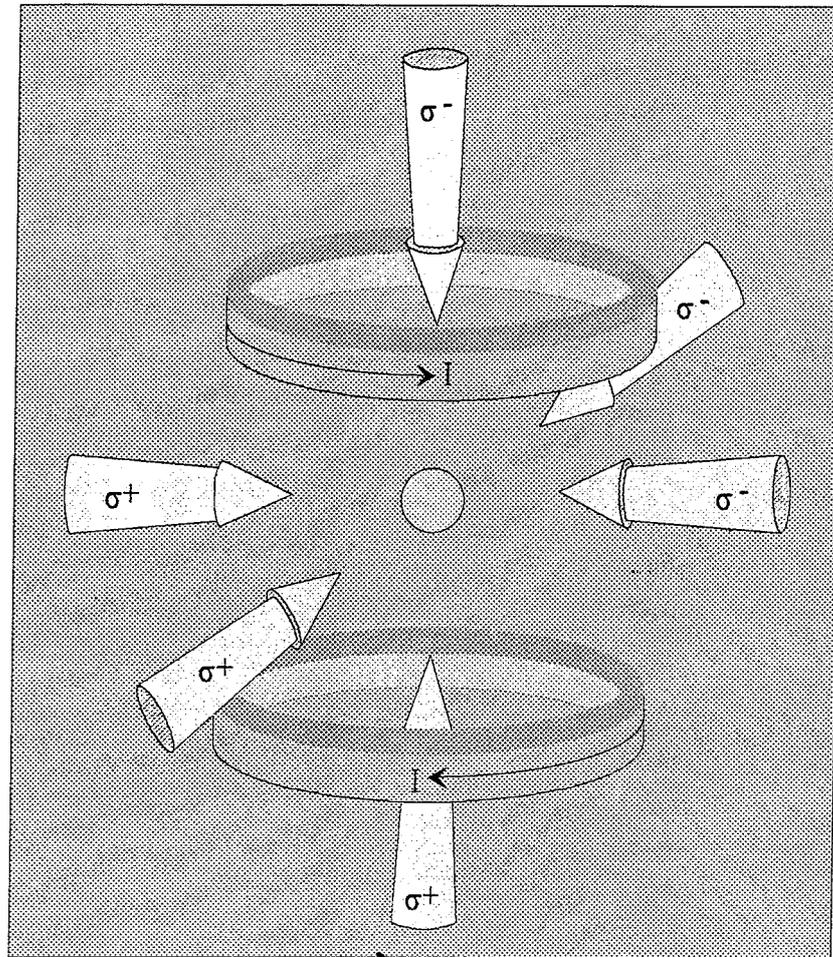


Figure 2-14 : Schéma de principe du piège magnéto-optique à trois dimensions. Le gradient de champ magnétique dans les trois directions de l'espace est créé par une paire de bobines en configuration anti-Helmoltz (Les intensités sont en sens opposés). Chaque paire de lasers comprend un laser polarisé σ^+ et un laser polarisé σ^- .

Tout ce qui a été décrit dans ce chapitre l'a été dans le cas où nous sommes en présence de deux lasers seulement. Mais il est en fait impossible de piéger des atomes à une dimension. En effet, le fait de piéger les atomes suivant Oz n'assure pas du tout que les atomes vont avoir la bienveillance de rester sur cet axe. Au contraire même, les processus d'émission spontanée qui permettent le piégeage suivant Oz sont la source d'une dispersion de la vitesse des atomes dans le plan xOy . Il faut bien entendu, si l'on veut avoir la moindre chance d'obtenir des

Chapitre 2 : Le piège magnéto-optique

atomes piégés empêcher ces pertes par l'adjonction de lasers dans les deux autres directions de l'espace, ce qui porte le nombre de faisceaux à six. Par conséquent, il faut aussi prévoir un dispositif qui permette d'obtenir un gradient de champ magnétique dans les trois directions de l'espace. Ceci est rendu possible par l'utilisation de 2 bobines en position Anti-Helmoltz. Le dispositif est représenté sur la *Figure 2-14*.

Le passage de une dimension à trois dimensions introduit dans le piège de nouvelles propriétés assez intéressantes. Mais la compréhension de la dynamique atomique n'est pas évidente pour deux raisons essentielles. Premièrement, alors que l'intensité de lumière totale est constante dans l'espace à une dimension dans le cas d'une configuration $\sigma^+ \sigma^-$, à trois dimensions, la superposition de trois paires de faisceaux orthogonaux mène à une modulation spatiale de l'intensité. Deuxièmement, la direction du champ magnétique n'est plus la direction des lasers et la compétition de la précession de Larmor et du pompage optique montre une structure spatiale compliquée par rapport à ce qui a été discuté à une dimension. Cette description dépasse le cadre de cette étude, nous ne la traiterons pas. En résumé, disons que le moment magnétique de l'atome doit en permanence s'aligner localement avec la direction que lui impose le champ magnétique. Ce phénomène s'apparente à ce qui se passe à une dimension quand l'atome est pompé optiquement dans la transition $m_F = 4 \rightarrow m'_F = 5$. On peut dans ce cas, en effet, considérer que l'atome aligne son moment magnétique avec le gradient de champ magnétique, puisque, quand le champ est positif ($z > 0$), l'atome est pompé dans un état de moment magnétique positif maximum ($m_F = 4$). A trois dimensions, l'atome est en permanence dans l'état $m_F = 4$ si on prend comme axe de quantification l'axe du champ magnétique. Evidemment, dans une autre base, l'atome est dans une superposition d'états et la situation est plus confuse.

Chapitre 2 : Le piège magnéto-optique

Après avoir discuté certains aspects théoriques des mélasses et des pièges magnéto-optiques, nous allons maintenant discuter les aspects expérimentaux du problème et la réalisation pratique d'un piège magnéto-optique à trois dimensions.

Voici dans ce tableau quelques quantités importantes pour le refroidissement des alcalins

	⁷ Li	²³ Na	³⁹ K	⁸⁵ Rb	¹³³ Cs
λ (nm)	671	589	767	780	852
τ (ns)	27	16	26	27	32
Structure hyperfine ² S _{1/2} (GHz)	406	1772	462	3036	9193
Structure fine ² P _{3/2} (nm)	0.01	0.59	3.41	14.73	42.23
Intensité de saturation (mW/cm ²)	2.7	6.3	1.7	1.4	0.9
Température Doppler (μK)	141	239	148	141	119
Vitesse de recul (cm/s)	8.6	3.0	1.3	0.30	0.35
Température sub-Doppler (μK)	31	12	4	2	1

2.3 Dispositif expérimental

Dans le paragraphe précédent, nous avons décrit rapidement le principe et le fonctionnement d'un piège magnéto-optique à trois dimensions. Nous allons maintenant décrire le dispositif expérimental permettant de mettre en œuvre tous ces principes.

La mise en œuvre d'un piège magnéto-optique est une chose maintenant bien maîtrisée. Il ne faudrait pas croire pour autant que la réalisation pratique ne pose aucun problème. Il faut en effet être attentif à plusieurs paramètres très importants et veiller à leur stabilité dans le temps. Il est primordial d'avoir :

- une enceinte avec un très bon vide
- des champs magnétiques très bien définis
- des lasers de fréquence stable et très bien définie
- une visualisation efficace

Ce sont tous ces points que nous discuterons en détail dans ce paragraphe. Nous présenterons successivement l'enceinte à vide, les champs magnétiques, les diodes lasers puis la technique de visualisation. Nous ferons la description du dispositif expérimental de photoassociation dans le chapitre 4 entièrement consacré à ce sujet.

2.3.1 Vue d'ensemble

Tentons tout d'abord de préciser schématiquement en quoi consiste le dispositif expérimental. A cette fin, la Figure 2-15 donne un schéma de celui-ci. Les différents éléments seront décrits plus en détail dans le chapitre.

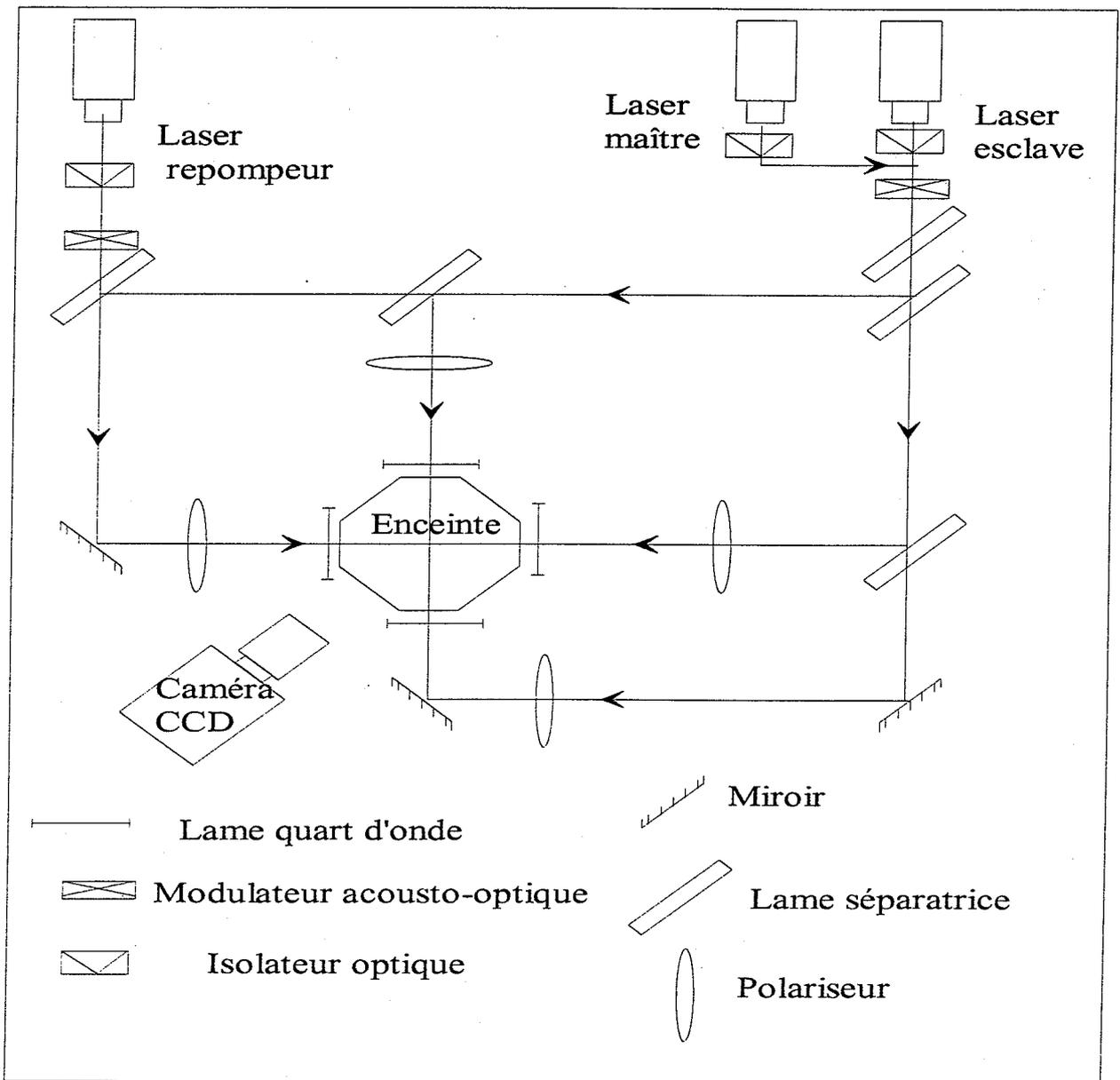


Figure 2-15 : Schéma du dispositif expérimental

2.3.2 L'enceinte

Un des premiers points à soigner est la préparation d'une enceinte à vide de première qualité. Il faut en effet que les vides atteints soient du domaine de l'ultravide (10^{-8} mbar) au maximum. Au dessus de cette valeur, les collisions des atomes du piège avec ceux du gaz résiduel deviennent tellement importantes qu'elles le détruisent. Ce vide peut être atteint facilement mais à condition d'être attentif à tous les maillons de la chaîne. Il faut en particulier:

- une étanchéité extrême au gaz par l'utilisation pour l'enceinte de joints métalliques.
- que le dégazage des parois intérieures de l'enceinte à vide et des éléments de liaison qui lui sont raccordés (canalisations, vannes, joints, etc...) soit amené à un taux extrêmement faible.
- prévoir les moyens appropriés pour éviter que des gaz, des vapeurs ou leurs produits de réaction remontent depuis les pompes utilisées (aucune rétrodiffusion). Pour pouvoir remplir ces conditions, les éléments de construction utilisés pour les appareillages à ultravide doivent être étuvables et testés pour leur parfaite étanchéité. On utilise de préférence des aciers inoxydables.
- que tout l'appareillage soit testé au détecteur de fuites. Les liaisons et soudures en particulier doivent être particulièrement inspectées.
- que l'appareillage soit étuvé dans sa totalité.

Les pompes à vide

On doit utiliser des pompes permettant d'atteindre un vide de 10^{-8} mbar. Ceci ne peut être réalisé qu'en plusieurs étapes. On a besoin pour cela de trois étapes de pompage.

La pompe primaire

La première étape est en fait l'obtention d'un vide grossier grâce à une pompe à membranes ordinaire. Celle-ci est en fait branchée directement sur la pompe secondaire pour la prévider.

Chapitre 2 : Le piège magnéto-optique de césium

La pompe secondaire

La pompe utilisée est une pompe turbo-moléculaire de marque macrotorr et de capacité 60 l/s. Une pompe turbo-moléculaire fonctionne sur un principe uniquement mécanique sans lubrification : C'est sa grande vitesse de rotation (70 000 tours/min.) qui permet un vidage efficace. Ceci permet :

- n'avoir aucune vapeur d'hydrocarbure
- d'avoir un gaz résiduel principalement composé de dihydrogène.
- de pomper efficacement à partir de 10^{-3} mbar
- de pomper efficacement les gaz lourds
- d'avoir très peu de vibrations.

Dans nos conditions d'utilisation, on atteint à peu près avec cette pompe un vide de 10^{-6} mbar.

Les pompes à ultravide

Le pompage final s'effectue grâce à des pompes ioniques. Ces pompes, de conception assez récente, fonctionnent par adsorption d'ions, ceux-ci étant créés par une décharge de type Penning. Il se forme un courant :

$$I = n_0 n_- \sigma l$$

où n_0 est la densité de particules neutres, n_- est la densité d'électrons, σ la section efficace pour les chocs ionisants et l la longueur de l'espace de décharge. Le but n'est pas ici de commenter le fonctionnement d'une pompe ionique mais de constater que le courant de décharge est proportionnel à la densité de particules neutres. La pompe permet donc de grâce à ce courant de mesurer la pression dans l'enceinte (ce qui n'est pas possible avec les autres pompes où l'utilisation de jauges est indispensable). Les pompes ioniques fonctionnent efficacement à partir d'un vide primaire de 10^{-5} . Il n'est donc pas utile de les faire fonctionner trop vite, car on risque alors de les polluer. Elles pompent l'azote, le dioxyde de carbone, la vapeur d'eau. Elles pompent aussi très bien l'oxygène, l'hydrogène, le méthane et les autres hydrocarbures légers, un peu moins bien l'argon et l'hélium. Un des problèmes de ces pompes est que, utilisant des aimants, elles produisent un fort champ magnétique (environ 1 Gauss au niveau de l'enceinte). Nous avons donc été obligés de les blinder avec des feuilles de μ -métal, ce qui réduit le champ d'un important facteur (~ 10). Nous avons utilisé deux pompes ioniques, l'enceinte étant de dimensions verticales assez importantes.

Les parois de l'enceinte

Une attention toute particulière a été portée à la réalisation des parois de l'enceinte. L'ultravide impose des contraintes sur le choix des matériaux utilisés et des précautions pour l'utilisation courante.

Les pièces mécaniques

Toute la partie métallique de l'expérience a été réalisée en acier inoxydable non magnétique. C'est le seul qui soit à la fois facile à travailler (donc de réaliser les pièces au laboratoire) et qui dégage très peu. La partie centrale et les pièces spéciales ont toutes été réalisées à l'atelier de mécanique du laboratoire. Les parties standard telles que les vannes et les brides ont toutes été achetées dans le commerce (chez Varian pour la plupart). On doit utiliser des joints métalliques en cuivre qui seuls permettent un bon raccord sans fuite. Les hublots qui permettent le passage des lasers sont également spécialement conçus pour l'ultravide et sont traités anti-reflets à 852 nm. Une difficulté est venue également du système de détection qui imposait la pose de grilles de champ électrique et de galettes de micro-canaux pour nos expériences. Ce qui nécessite l'utilisation de passages de courant spécialement conçus pour ultravide.

Le dégazage

Les pièces mécaniques peuvent désorber des quantités plus ou moins importantes de gaz quand elles sont soumises à des pressions très faibles. Cela impose tout d'abord d'utiliser des matériaux spécifiques, nous l'avons vu plus haut. Mais cela n'est pas suffisant, car des quantités importantes d'éléments divers se sont adsorbées sur les parois avant le montage (par simple contact avec l'air). Pour désorber ces particules, il est nécessaire de procéder à un chauffage des parois avec des résistances chauffantes de forte puissance. Elles sont alors directement pompées par les pompes ioniques. Les températures atteintes peuvent être de l'ordre de 150 à 200 °C. Ceci impose à nouveau d'utiliser des matériaux suffisamment résistants à la chaleur et prohibe l'usage de plastiques ou autres matériaux fondants, aussi bien à l'intérieur qu'à l'extérieur de l'enceinte.

2.3.3 Les champs magnétiques

En ce qui concerne les champs magnétiques, deux opérations distinctes sont à effectuer. Premièrement, on doit compenser les champs magnétiques parasites pour que la zone centrale du piège soit bien une zone de champ nul. Deuxièmement, on doit créer un gradient de champ magnétique pour le fonctionnement du piège.

Compensation des champs magnétiques parasites

Les divers parasites

Les parasites de champ magnétique proviennent essentiellement de deux sources. La première est, comme nous l'avons vu, la présence proche des pompes ioniques. Ces pompes créent un champ important qui ne doit pas être négligé (1 Gauss). La deuxième est tout simplement le champ magnétique terrestre qui provoque lui aussi un parasitage. Mais on peut citer aussi la présence de masses métalliques importantes dans la salle de manipulations qui sont la source d'une partie importante du champ parasite.

Les bobines de compensation

Pour obtenir une zone homogène de champ nul, il faut tout d'abord vérifier que les parasites ne varient pas trop sur une zone de quelques cm autour du centre de l'enceinte. Si cette condition n'est pas vérifiée, il est hors de question d'espérer obtenir de bonnes conditions. Si elle est vérifiée, il reste simplement à créer un champ magnétique suffisamment uniforme. Ceci se fait facilement grâce à des paires de bobines montées en position Helmholtz. On a besoin de trois paires de bobines : Une pour chaque dimension de l'espace. Le champ créé par une bobine sur son axe est donné par la formule suivante :

$$B_z = \frac{1}{2} \mu_0 N I a^2 \frac{1}{(z^2 + a^2)^{\frac{3}{2}}}$$

où N est le nombre de spires, I l'intensité du courant, a le rayon de la bobine et z la distance du point considéré au centre de la bobine.

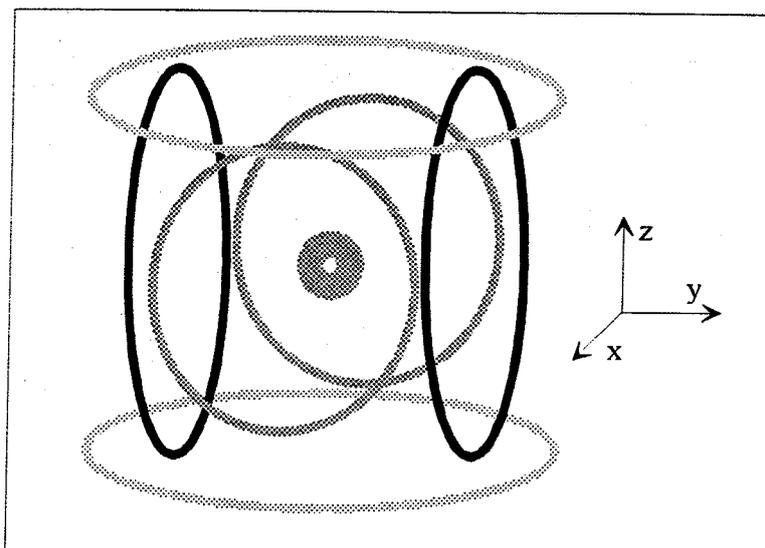


Figure 2-16 : Configuration des bobines de compensation des champs magnétiques parasites.

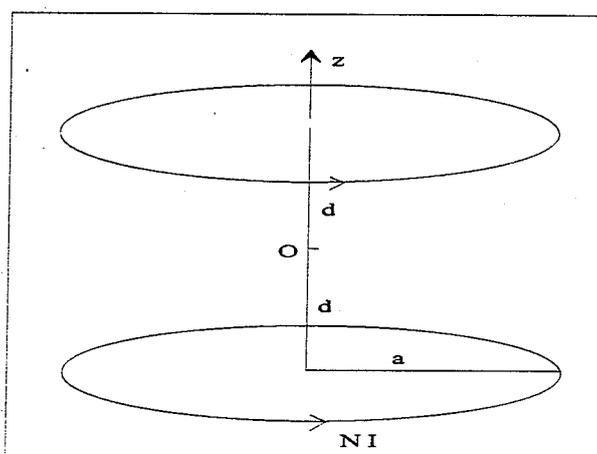


Figure 2-17 : Configuration Helmholtz des bobines créant le gradient de champ magnétique

Le champ créé par deux bobines en position Helmholtz s'écrit donc comme :

$$B_z = \frac{1}{2} \mu_0 N I a^2 \frac{1}{((d+z)^2 + a^2)^{\frac{3}{2}}} + \frac{1}{((d-z)^2 + a^2)^{\frac{3}{2}}}$$

si d est la demi-distance entre les deux bobines.

Les champs nécessaires pour compenser les champs parasites sont de l'ordre du Gauss. Il n'est pas nécessaire pour compenser ce genre de champs d'appliquer de fortes intensités : quelques dixièmes d'ampères suffisent à des distances de l'ordre de la dizaine de centimètres.

Les gradients de champs magnétiques

Le gradient de champ magnétique est créé par des bobines en position Anti-Helmoltz.

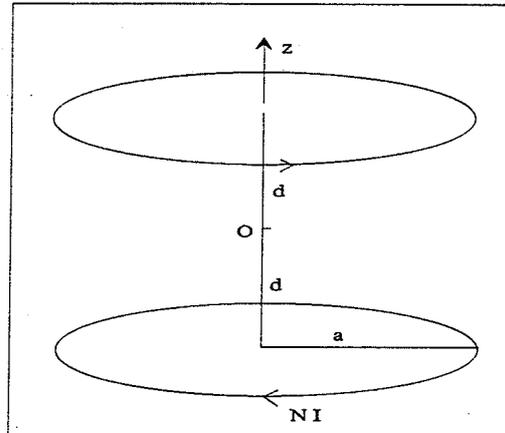


Figure 2-18 : Configuration Anti-Helmoltz des bobines créant le gradient de champ magnétique

Le champ créé sur l'axe inter-bobines par deux bobines en position Anti-Helmoltz s'écrit comme :

$$B_z = \frac{1}{2} \mu_0 N I a^2 \frac{1}{((d-z)^2 + a^2)^{3/2}} - \frac{1}{((d+z)^2 + a^2)^{3/2}}$$

Une représentation graphique de ce champ est donné dans un cas particulier sur la Figure 2-19.

Comme tout champ magnétique vérifie :

$$\text{Div} \vec{B} = \frac{\partial B_x}{\partial x} + \frac{\partial B_y}{\partial y} + \frac{\partial B_z}{\partial z} = 0$$

et que, par symétrie :

$$\frac{\partial B_x}{\partial x} = \frac{\partial B_y}{\partial y}$$

alors :

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

Ce qui signifie que le gradient n'est pas isotrope. On a seulement une symétrie cylindrique. Le piège aura donc une forme d'ellipsoïde aplatié.

Chapitre 2 : Le piège magnéto-optique de césium

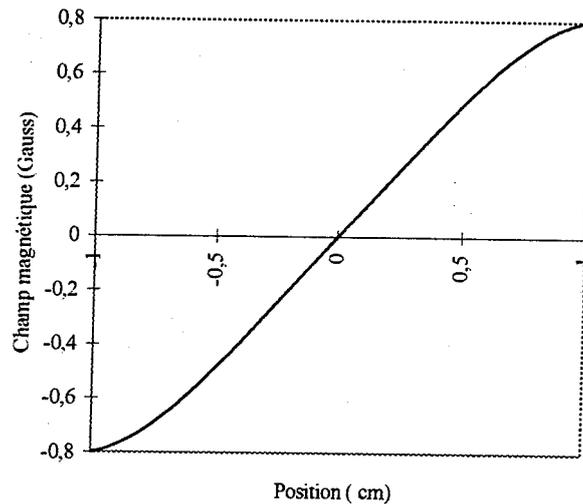


Figure 2-19 : Représentation graphique du champ magnétique créé par deux bobines en position Anti-Helmoltz pour des valeurs $a = 1\text{cm}$ et $NI = 2a / \mu_0$

Pour que le gradient de champ soit maximal entre les deux bobines, au centre, il faut vérifier la relation reliant a et d : $a / d = 2$.

Le gradient de champ obtenu dans notre configuration était d'une valeur de 15 G/cm, ce qui permet d'obtenir un effet Zeeman suffisant pour piéger les atomes.

Refroidissement des bobines

Mais pour parvenir à une telle valeur de gradient, il nous a fallu imposer des courants assez importants (3 A) car les bobines étaient en fait relativement éloignées du centre du piège. A ces intensités, les bobines subissent un fort réchauffement. Ce réchauffement nous a gêné car il provoquait un réchauffement général de l'enceinte, et par conséquent un dégazage des parois, ce qui était suffisant pour diminuer fortement la taille du piège. Nous avons donc été contraints de fabriquer un système de refroidissement liquide parcourant la plus grande surface possible des bobines, ce qui ne fut pas facile, étant donnée l'extrême imbrication des éléments sur l'enceinte. Mais ceci permit de revenir à des températures acceptables.

2.3.4 La source de césium

La source de césium est très simple dans notre expérience. Elle est constituée d'une petite cavité isolée du reste de l'enceinte par une vanne ultravide. Cette cavité est remplie de 1 gramme de césium à l'état liquide et on peut contrôler la quantité de vapeur saturante de césium dans l'enceinte grâce à l'ouverture plus ou moins grande de la vanne. Cette technique est très pratique car l'entretien est minimum. De plus, cette source a une grande durée de vie: Nous ne l'avons pas changé en un an d'utilisation.

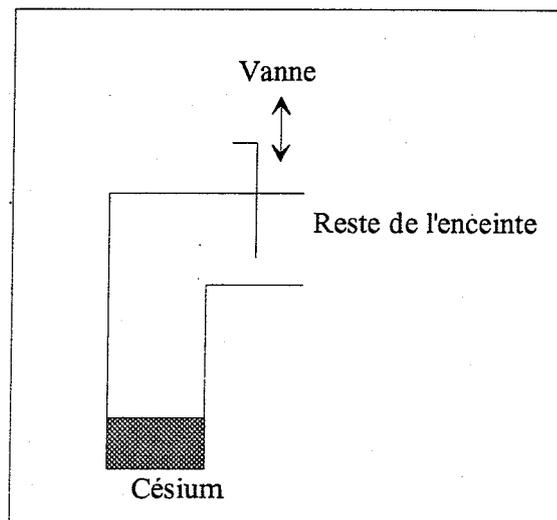


Figure 2-20 : Dispositif schématique de la source de césium.

2.3.5 Les faisceaux lasers

Le piège utilise deux systèmes lasers. Il faut en effet former le piège par un laser accordé sur la transition entre les états $F=4$ et $F'=5$ du césium. Cette transition est en principe fermée. Mais l'atome peut aussi retomber sur le niveau $F=3$ après avoir transité par le niveau $F'=4$. Cela nécessite l'utilisation d'un deuxième laser accordé sur la transition $F=3 \rightarrow F'=4$. Ce laser est appelé "laser de repompage" ou "laser repompeur" car il repompe les atomes sur la transition piégeante.

La transition sur laquelle nous travaillons est la raie D_2 du césium à 852 nm. Cette longueur d'onde est très pratique car on trouve dans le commerce des diodes correspondant à

cette longueur d'onde. En balayant l'intensité et la température fournies à la diode, on peut la balayer en fréquence. Leur puissance est assez importante pour effectuer des expériences de piégeage puisque l'intensité de saturation du césium est de 1.1 mW/cm^2 et la puissance facilement fournie par une diode laser est de l'ordre de quelques dizaines de mW.

Nous avons utilisé dans notre expérience des diodes commerciales de marque STC et SDL. Les deux sont des diodes monomodes d'assez forte puissance ($\sim 50 \text{ mW}$). Leur largeur spectrale est d'environ 20 MHz. L'accordabilité en fréquence reste difficile avec ces diodes car il se produit dans ces systèmes de nombreux sauts de mode. Cet inconvénient est pallié par l'utilisation de diodes de marque SDL type DBR. Ces diodes sont en fait un réseau de diodes lasers et permettent d'obtenir une fréquence stable dans le temps ainsi qu'un affinement spectral.

Nous décrivons dans ce paragraphe les deux systèmes dont, précisons le dès maintenant, le laser de repompage est le plus simple des deux.

Le système laser de piégeage

Le laser de piégeage doit avoir une largeur spectrale inférieure à la largeur naturelle du niveau excité du césium qui est de 5 MHz. Ce n'est pas le cas dans un mode de fonctionnement libre. Nous avons réalisé un montage dit "Littrow" (faisceau laser rétro-refléchi dans la diode par un réseau, ce qui augmente la longueur de la cavité) pour affiner spectralement la diode. Cette diode présente ensuite les bonnes caractéristiques de fréquence mais ne possède pas une puissance suffisante. Nous avons donc utilisé la technique dite "esclave-maître" qui permet d'obtenir la puissance du laser esclave et les caractéristiques spectrales du laser maître affiné par le montage Littrow.

Le laser maître

Le laser maître est constitué d'une diode STC, d'un réseau qui permet de sélectionner la longueur d'onde et d'affiner la largeur de la diode par augmentation de la longueur de la cavité, d'un isolateur optique et d'un montage d'absorption saturée (voir Figure 2-21)

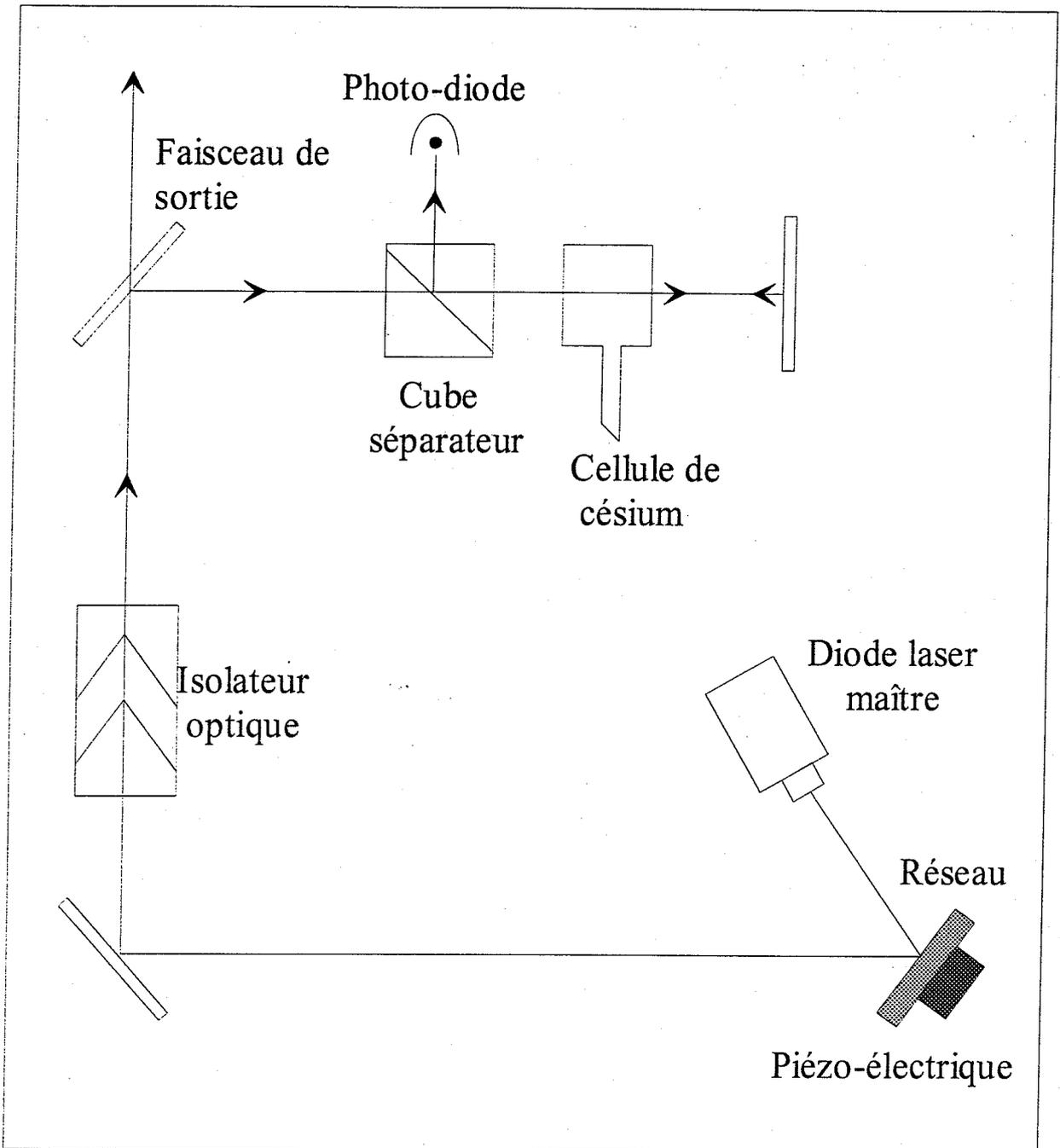


Figure 2-21: Schéma expérimental du laser maître et de ses différents constituants : la diode elle-même, le réseau monté sur un cristal piézo-électrique, l'isolateur optique et le montage d'absorption saturée.

Le réseau est monté sur une platine micro-contrôle et un cristal piézo-électrique. La platine micro-contrôle permet d'assurer le réglage manuel de la longueur d'onde et le cristal piézo-électrique d'effectuer l'asservissement de la cavité laser constituée par la paroi intérieure réfléchissante de la diode et le réseau. Le signal de correction est fourni par le montage

Chapitre 2 : Le piège magnéto-optique

d'absorption saturée. Ce signal est envoyé vers un boîtier de détection synchrone qui envoie lui-même le signal au piézo-électrique.

L'isolateur optique empêche les retours de lumière laser dans la cavité qui sont très gênants pour la stabilité de la fréquence.

Le faisceau de sortie présente une puissance de 6 mW et une largeur spectrale d'à peu près 100 kHz. La largeur spectrale est tout à fait satisfaisante mais la puissance est quant à elle tout à fait insuffisante car le faisceau va subir toutes sortes de vicissitudes avant d'arriver dans l'enceinte, ce qui va réduire d'un facteur important sa puissance. On est donc conduit tout naturellement à utiliser la technique "maître-esclave".

La technique esclave - maître

Cette technique permet de profiter des qualités de deux systèmes laser différents pour en faire une synthèse. Le faisceau décrit précédemment qu'on appelle "maître" est injecté dans une diode appelée "esclave". Cette injection a pour but d'utiliser la puissance du faisceau esclave tout en gardant la pureté spectrale du laser stabilisé (maître). Le laser esclave sera verrouillé sur la même plage de fréquence que le laser maître [YU.92].

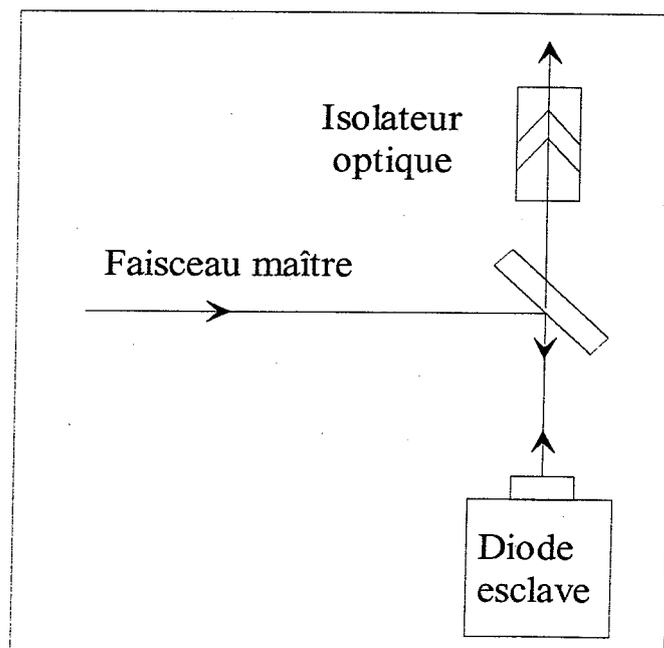


Figure 2-22 : Schéma de fonctionnement de l'injection d'une diode esclave par un faisceau maître. On rajoute un isolateur optique pour empêcher les retours de faisceau laser dans la diode esclave, ce qui provoquerait des parasites.

Chapitre 2 : Le piège magnéto-optique

La puissance de sortie du laser esclave est de 50 mW avant le passage dans les différents éléments d'optique de travail des faisceaux.

Modification, division et polarisation des faisceaux

Le faisceau de sortie n'est pas encore utilisable pour le piège. Il a une forme ellipsoïdale qui n'est pas acceptable. Pour y remédier, on le fait passer un télescope cylindrique constitué de deux lentilles cylindriques de focale différente. Il faut ensuite diviser le faisceau pour obtenir les six "bras" nécessaires. On procède à cette opération par l'utilisation de deux cubes séparateurs puis trois lames séparatrices successives. Il ne reste plus qu'à obtenir une polarisation correcte. Ceci se fait en deux étapes. La première consiste à sélectionner une des deux composantes linéaires du faisceau en faisant passer celui-ci dans un cube polariseur, la deuxième à faire passer ce faisceau linéaire dans une lame $\lambda/4$, ce qui nous donne une polarisation circulaire σ^+ ou σ^- suivant l'orientation de la lame par rapport à l'axe initial de polarisation.

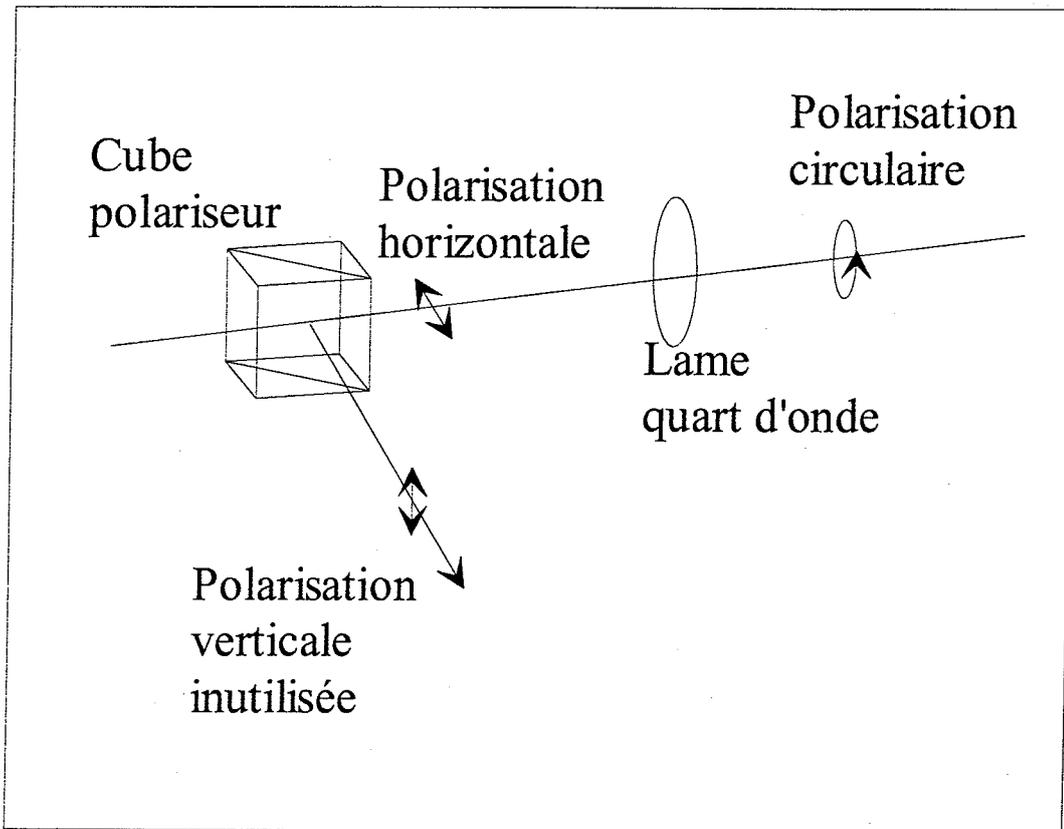


Figure 2-23 : Schéma de principe pour la polarisation des faisceaux avant l'entrée dans l'enceinte.

La diode de repompage

Le repompeur ne nécessite pas d'efforts aussi importants que la diode de piégeage, le seul objectif étant de ramener sur la transition $F = 4 \rightarrow F' = 5$ les quelques "brebis égarées". Nous avons donc tout simplement utilisé une diode laser en fonctionnement libre, c'est à dire sans aucun dispositif d'affinement ou de stabilisation. Cela nous a été facilité par la grande stabilité des diodes DBR qui ne présentent aucun saut de mode sur une journée entière. La seule contrainte est d'asservir le courant sur un signal d'absorption de césium car la fréquence dérive légèrement de façon irrégulière. Le faisceau ne nécessite pas non plus d'être divisé : Un seul bras suffit. On n'a donc qu'à "irradier" le piège sur toute sa surface pour que le repompage soit efficace.

Les modulateurs acousto-optiques

Nous avons utilisé de nombreux modulateurs acousto-optiques dans notre expérience dont deux pour la partie purement "piège". Ceux-ci étaient utilisés pour, à volonté, allumer ou éteindre le faisceau du piège ou du repompeur et ceci à des cadences importantes (jusqu'à 100 kHz).

Le principe des modulateurs acousto-optiques est simple. Il repose sur la collision d'un photon avec un phonon. Le phonon est créé par la vibration d'un cristal. Le photon a deux possibilités :

- Il n'est pas dévié. C'est l'ordre 0.
- Il est dévié. C'est l'ordre 1. Dans ce cas, il ressort avec une direction et une fréquence différentes. La différence de fréquence est la fréquence de vibration du cristal. Comme les cristaux acousto-optiques sont contrôlés par des synthétiseurs de fréquence dont la précision est très grande, les acousto-optiques sont des outils précieux pour contrôler la fréquence des lasers.

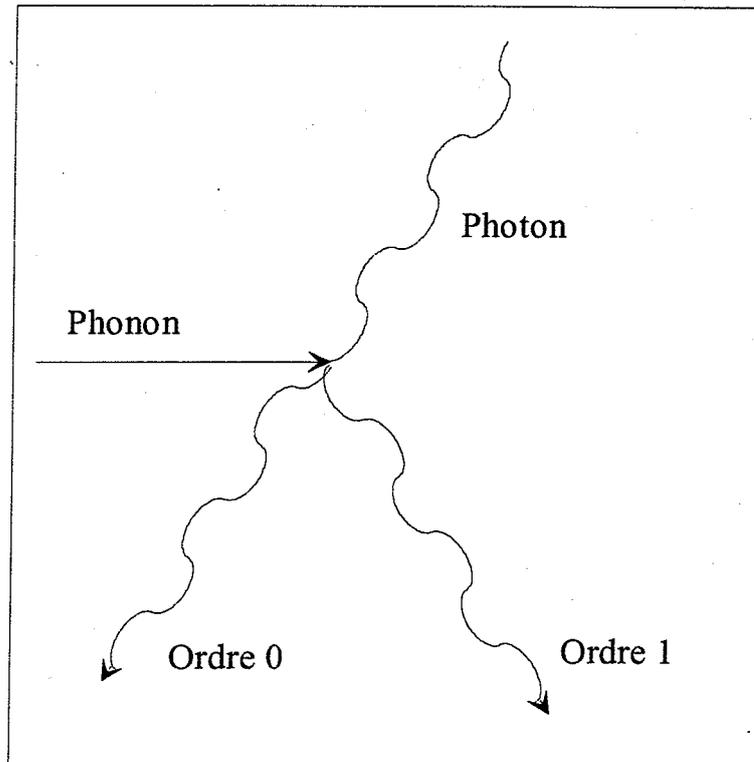


Figure 2-24 : Schéma de principe du fonctionnement d'un modulateur acousto-optique.

Dans notre dispositif, les synthétiseurs de fréquence sont déclenchés par des générateurs de pulse de tension de type TTL pouvant atteindre un grand nombre de cycles par seconde (100 MHz).

2.3.6 Détection

La détection des caractéristiques du piège s'est faite essentiellement grâce à trois dispositifs :

- Un moniteur de visualisation du piège.
- Une carte d'acquisition couplée à un second moniteur
- Une diode calibrée.

Le moniteur

Relié à une caméra CCD, le moniteur permet de visualiser le piège et d'exercer un contrôle permanent sur la forme et l'intensité du piège. Les faibles dimensions et la longueur d'onde nécessitent l'utilisation d'une caméra CCD sensible à l'infrarouge et d'un objectif permettant de faire des acquisition à des faibles distances. Ceci a été réalisé simplement par l'emploi de petites bagues adaptatrices, ceci changeant la distance focale de l'objectif initiale de 50mm.

La carte d'acquisition

Une deuxième caméra CCD a été utilisée pour la mesure des répartitions de la lumière induite par la fluorescence du piège. Ceci a été réalisé par la connexion de cette caméra à une carte d'acquisition compatible PC. Un logiciel sur le PC permet de faire diverses analyses telles que des profils de fluorescence ou des mesures totales de fluorescence.

La diode calibrée

Une photodiode calibrée nous a permis de faire des mesures précises de nombre de photons. Ceci nous a été utile pour connaître la densité et le nombre d'atomes du piège. La méthode utilisée est la technique de mesure de l'absorption d'un faisceau laser sonde à la fréquence du césium (852nm).

2.3.7 Procédure expérimentale

La procédure à suivre pour obtenir le piège est assez courte une fois que tous les éléments sont en place et que tous les réglages grossiers ont été effectués (alignement des faisceaux, champs magnétiques compensés, fréquences des lasers stabilisées).

Il faut suivre les étapes suivantes :

- Obtention du vide
- Mise sous césium
- Alignement fin des faisceaux
- Optimisation des champs magnétiques

Il faut tout d'abord s'assurer que le vide a bien atteint son niveau optimal (2.10^{-9} mbar). La première fois après ouverture de l'enceinte, il faut environ 4 jours pour atteindre ce niveau. L'étanchéité étant très bonne dans notre enceinte nous n'avons jamais eu à nous soucier, en rythme de croisière, de ce paramètre.

Si le vide est bon, on peut alors procéder à la mise sous césium par ouverture de la vanne. Si ceci prend à peu près 30 secondes en temps normal, il n'en est pas de même lors de la première ouverture du césium. Il faut en effet attendre quelques jours pour que le césium diffuse partout dans l'enceinte.

L'allumage des lasers ne pose en principe pas de gros problèmes si ce n'est quelques fois (après une coupure de courant imprévue par exemple) où le point de fonctionnement peut avoir bougé de quelques mA. Le réglage de l'alignement des lasers est un facteur primordial pour l'obtention du piège : Des écarts de quelques millièmes de radians peuvent entraîner des variations très importantes de la forme du piège et de sa grosseur.

Une dernière étape toute aussi primordiale est l'ajustement des champs magnétiques. Il faut en effet que le centre du gradient de champ magnétique coïncide avec l'intersection des six faisceaux. On peut régler ce paramètre avec la compensation de champ magnétique.

Les meilleurs résultats sur le nombre d'atomes dans le piège ont été obtenus avec un décalage par rapport à la fréquence atomique de 8 MHz.

2.4 Caractérisation du piège

Nous allons dans ce chapitre décrire le piège expérimentalement sous ses différents aspects. Nous verrons dans un premier temps sa forme. Ensuite, nous donnerons une approximation de la densité et du nombre d'atomes dans le piège. Nous évoquerons dans un quatrième paragraphe sa température. Pour finir, nous parlerons de deux problèmes temporels qui sont le chargement et le "dépompage".

2.4.1 Forme du piège

La forme du piège est peut-être un des paramètres les plus difficiles à maîtriser. Elle est en effet déterminée par de nombreuses conditions. En premier lieu, il est très important d'aligner parfaitement les faisceaux car une légère imperfection peut conduire à des formes tout à fait surprenantes. On peut par exemple voir apparaître des pièges bifides (2 centres) ou même trifides. Dans certaines conditions de désalignement, on peut aussi observer des sortes de pièges circulaires. Ou bien encore le piège sera complètement linéaire avec quelques contorsions. Dans tous les cas, on constate que la fluorescence n'est pas aussi importante que dans le cas d'un piège parfaitement sphérique, nous ne nous attarderons donc pas trop sur ces cas "exotiques".

La carte d'acquisition nous a permis de mesurer des profils de fluorescence. Avec ces profils, nous pouvons mesurer les largeurs à mi-hauteur, donc la taille du piège. Nous avons couramment une taille de piège égale à 600 μm . Sur la Figure 2-25 est représenté un profil dans le cas où le piège est sphérique.

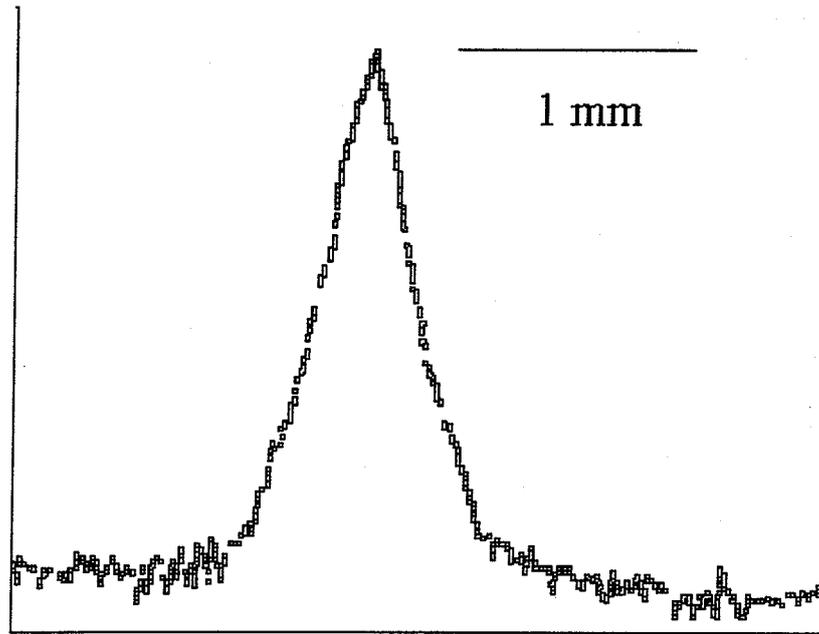


Figure 2-25: Profil de fluorescence du piège magnéto-optique sur une coupe transversale passant par le centre du piège.

Le moniteur nous permet d'avoir des représentations aussi fidèles que possible de la forme du piège. En voici un exemple sur la Figure 2-26.

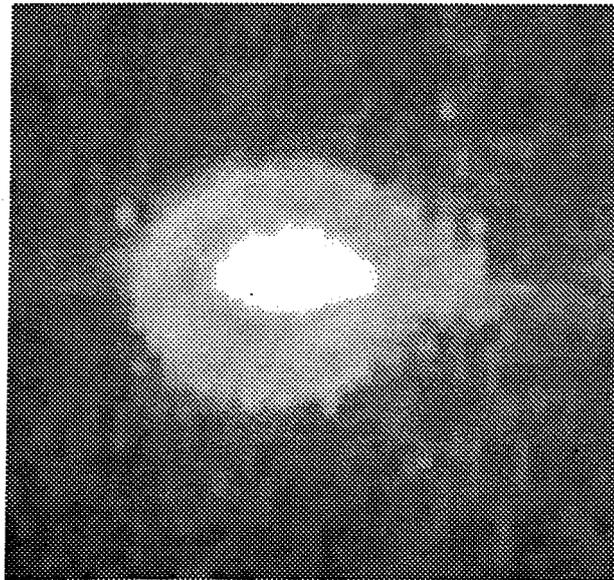


Figure 2-26 : Vue du piège magnéto-optique en niveaux de gris. Noter la forme non sphérique.

2.4.2 Nombre d'atomes

Nous avons déterminé le nombre d'atomes dans le piège grâce à l'utilisation de la diode calibrée et l'interprétation des résultats par un petit modèle. Ce modèle est basé sur la formule qui donne la puissance émise par le piège :

$$P = h \nu \Gamma \frac{S/r^2}{4\pi} \frac{N}{2}$$

où S est la surface de la photodiode, Γ la durée de vie du niveau excité du césium, r la distance de la photodiode au piège, N le nombre d'atomes et ν la fréquence du césium. Cette puissance est mesurée par la calibration de la diode. Nous avons mesuré des puissances de 200 nW, ce qui correspond à un nombre d'atomes $n = 1.5 \cdot 10^8$.

2.4.3 Densité

La densité se calcule aisément avec les deux résultats précédents. Avec un modèle simple, nous estimons une valeur de $4-5 \cdot 10^{11}$ atomes / cm^3 . Cette valeur est tout à fait en accord avec tout ce qui s'est fait dans le domaine des pièges magnéto-optiques de césium et est supérieure à toutes les densités obtenues dans les pièges pour d'autres alcalins.

2.4.4 Température

La température n'est pas notre préoccupation principale car les expériences de photoassociation ne demandent pas des températures extrêmement basses pour fonctionner (l'important est la densité). Nous n'avons donc pas mis en place de dispositif de mesure de la température. Cependant, nous pouvons donner une limite supérieure à la température du piège. En effet, dans certaines manipulations d'absorption de la lumière laser, un des paramètres intervenant dans la largeur de raie est la largeur provoquée par l'effet Doppler. On peut ainsi

remonter à la température maximale du piège. Nous avons mesuré des largeurs de l'ordre de 6 MHz ce qui est de l'ordre de la largeur naturelle du niveau excité. Cette largeur correspond à une température d'environ 200 μ K. Le piège est donc à cette température, ce qui est suffisant pour le phénomène de photoassociation ou même en dessous. Nous avons en tout cas des températures comparables à celles mesurées dans les autres pièges (de l'ordre de la centaine de microKelvins).

2.4.5 Temps de chargement

Le temps de chargement du piège est un paramètre important car une grande partie de nos expériences s'est fait avec des séquences temporelles. Nous avons mesuré le temps de chargement par mesure temporelle de la fluorescence. Voici un exemple de ce type d'enregistrement :

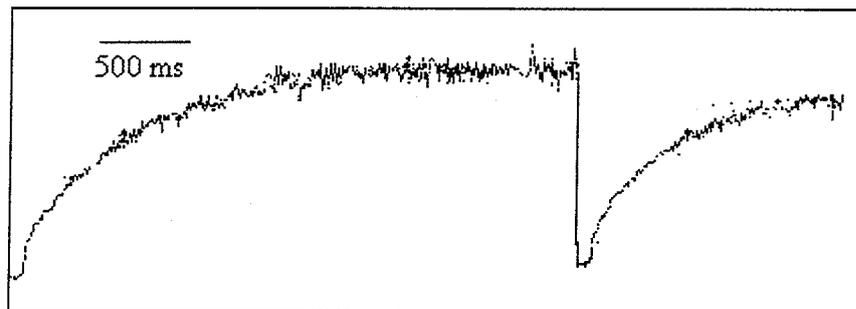


Figure 2-27 : Diagramme temporel de fluorescence après coupure puis allumage du piège.

Les temps de montée mesurés sont en moyenne de 1,2 secondes avec une interpolation exponentielle.

2.4.6 Temps de dépompage

Une autre caractéristique utile est ce que nous appelons le temps de dépompage. Nous le définirons comme le temps nécessaire pour que, après que le laser repompeur soit coupé, tous les atomes soient pompés optiquement dans le niveau $F = 3$. Les atomes sont en quelque sorte "dé pompés" dans le niveau $F = 3$. Nous avons mesuré ce temps en coupant simplement le laser repompeur, la fluorescence décroît alors et on peut mesurer le temps de "dé pompage". On obtient un temps de dé pompage $\tau_{dep} = 3ms$.

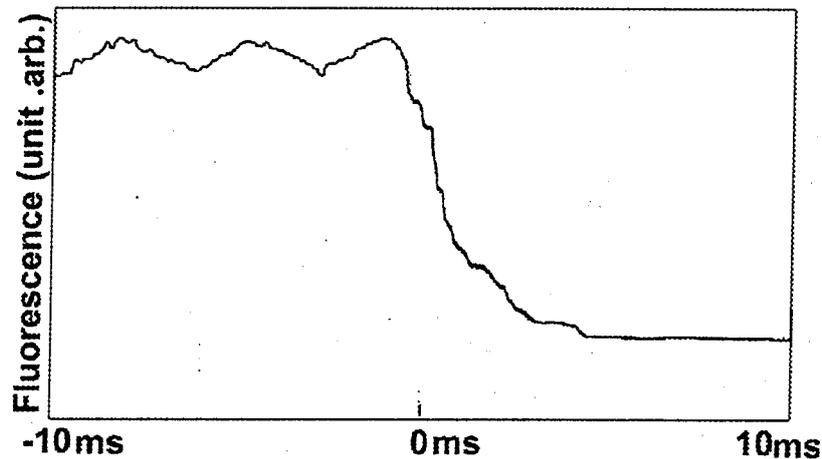


Figure 2-28 : Diagramme temporel de la fluorescence du piège après que le repompeur soit recoupé. Le temps de "dé pompage" mesuré est à peu près de 3 ms.

2.5 Conclusion

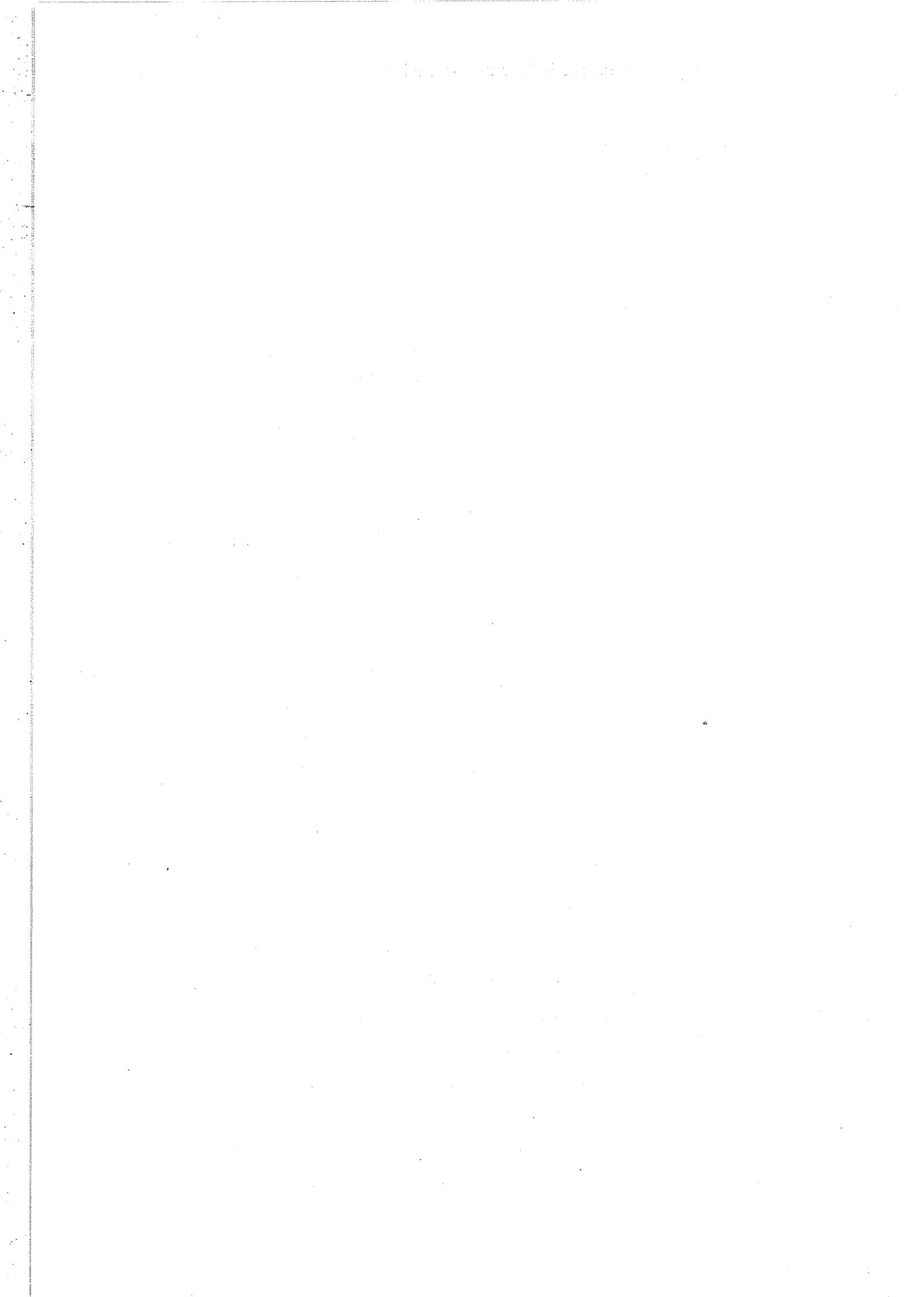
Nous avons présenté dans ce chapitre les principes et les principales caractéristiques de notre piège magnéto-optique. Nous nous sommes cantonnés dans la description expérimentale à la partie purement "piège magnéto-optique" pour délaissé ce qui traite de la photoassociation. Nous décrivons cette partie dans le chapitre 3 qui traite exclusivement de la photoassociation.

2.6 Bibliographie

- [CHU.85] S. Chu, L. Hollberg, J. Bjorkholm, A. Cable and A. Ashkin, Phys. Rev. Lett. **55**, 48 (1985)
- [CHU.86] S. Chu, L. Holberg, A. Ashkin, A. Cable, Phys. Rev. Lett. **57** n°3, 314 (1986)
- [CHU.89] S. Chu, Y. Shevy, D. Weiss, P. Unger, in Atomic Physics 11 (1989)
- [COH.89] J. Dalibard, C. Cohen Tanoudji, J.O.S.A. **B6**, 2023 (1989)
- [DAL.84] J. Dalibard, S. Reynaud, C. Cohen-Tannoudji, J. Phys. B : At. Mol. Phys **17**, (1984) 4577
- [DAL.89] J. Dalibard, C. Salomon, A. Aspect, E. Arimondo, R. Kaiser, N. Vansteenkiste, C. Cohen. Tanoudji, in Atomic Physics 11 (1989)
- [DJE.95] Jouda Djemaa, Thèse de doctorat, Université Paris-Sud, Orsay (1995)
- [GRI. 92] D. Grison, thèse de doctorat, Université Pierre et Marie Curie, Paris (1992)
- [HAN.75] T. Hansch, A. Schawlow, Opt. Comm. **13** 68 (1975)
- [LET.88] P. Lett, R. Watts, C. Westbrook, W. Phillips, P. Gould, H. Metcalf, Phys. Rev. Lett. **65** 1571 (1990)
- [MON.90] Very Cold Trapped Atoms in a Vapor Cell., C. Monroe, W. Swann, H. Robinson and C. Wieman, Phys. Rev. Lett. **65**, 1571 (1990)

Chapitre 2 : Le piège magnéto-optique de césium

- [NEL.90] J. Nellesen, J. Werner, W. Ertmer, Opt. Comm. Vol 78, n°3,4, (1990)300
- [RAA.87] Trapping of Neutral Sodium Atoms with Radiation Pressure., A.L. Raab, M. Prentiss, A. Cable, S. Cju and D.E. Pritchard, Phys. Rev. Lett. **59**, 2631 (1987)
- [RII.90] E. Riis, D. Weiss, K. Moler, S. Chu, Phys. Rev. Lett. **64** 1658(1990)
- [SES.89] D. Sesko, T. Walker, C. Monroe, A. Gallagher, C. Wieman, Phys. Rev. Lett. **63** n°9, 961(1989)
- [SHE.90] B. Sheevy, S.Q. Shang, P. Van der Stran, S. Hatamian, H.Metcalf, Phys. Rev. Lett **64**, 1118, (1990)
- [STE.91] A. Steane, C. Foot, Europhysics. Lett. **14** 231 (1991)
- [UNG.89] P.J. Ungar, D.S. Weiss, E. Riis, S. Chu, J.O.S.A. B6, 2058 (1989)
- [WIN.75] D. Wineland, H. Dehmelt, Bull. Am. Phys. Soc. **20**, 637, (1975)
- [WIN.78] D. Wineland, R.Drullinger, F. Walls, Phys. Rev. Lett. **40**, 1639 (1978)
- [WIN.79] Dd. Wineland, W. Itano, Phys. Rev. A **20**, n°4, 1521 (1979)

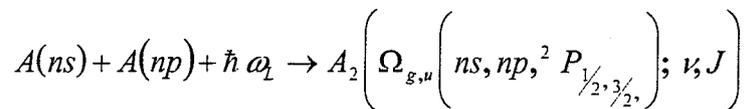


3. La photoassociation.

3.1 Introduction

Pour un gaz à basse température et haute densité, les interactions atome-atome changent considérablement. On s'attend à ce que les atomes de très faible vitesse restent des temps longs en interaction conduisant à des durées de collision de l'ordre de la nanoseconde voire la dizaine de nanosecondes. Cet aspect du phénomène collisionnel va profondément changer et compliquer l'interaction atome-atome en présence de rayonnement si un atome peut absorber et émettre des photons pendant sa collision avec un autre atome. Ce qui était une collision à deux corps se transforme en collision à trois corps.

Le processus collisionnel que nous allons étudier ici est celui de la photoassociation moléculaire d'atomes dans un gaz préalablement refroidi par laser. Pour fixer les idées, nous nous limiterons à considérer le cas des expériences qui ont été réalisées jusque là qui est celui d'atomes alcalins. Deux atomes A de très faible vitesse dans leur état fondamental ns en présence d'un champ laser intense de longueur d'onde $h\nu$ quasi résonnante avec la transition $ns \rightarrow np$ (ignorons les structures fine et hyperfine de l'atome) mais décalée vers le rouge par rapport à cette transition vont former une molécule A_2 dans un état excité rovibrationnel correspondant à la limite de dissociation de la molécule $ns-np$. Nous avons la réaction :



Lorsque cette thèse a débuté, ce phénomène, proposé pour la première fois par Thorsheim [THO.87], mis en évidence pour la première fois sur le sodium par Lett [LET.93], n'avait pas été étudié pour d'autres alcalins mais plusieurs autres expériences avaient déjà démarré pour les atomes de lithium, potassium et rubidium. Nous avons décidé de démarrer le césium qu'aucune équipe n'avait choisi et pour lequel nous développons un piège magnéto-optique dans le but d'études fort différentes sur les interactions entre atomes dans un gaz de Rydberg froid dont il ne sera pas question ici [NOS.96]. Cette étude a été également motivée par la possibilité que nous avons eue de disposer d'un laser Saphir:Titane de forte puissance.

Chapitre 3 : La photoassociation

Comparées au sodium où le processus de photoassociation est suivi d'un processus de photoionisation où la molécule excitée formée donne un ion moléculaire A_2^+ en absorbant un photon identique à celui du processus de photoassociation, les expériences avec les autres alcalins sont très différentes. Nous ne discutons pas ici du détail de ce processus qui peut être une photoionisation directe ou indirecte via des états doublement excités. Dans le cas des autres alcalins, l'énergie du photon de photoassociation ne permet pas d'atteindre le niveau fondamental de l'ion moléculaire. Le phénomène de photoionisation ne se produit donc pas. De ce fait, les expériences deviennent passablement plus compliquées. Elles vont consister à étudier les modifications du piège (en fait le piège d'atomes) par le processus de photoassociation. Nous verrons que ces pertes seront très différentes pour les différents alcalins, ceci devant conduire à des méthodes expérimentales adaptées à chaque situation. La plupart des expériences analyse la perte d'atomes par fluorescence. Nous avons voulu développer une méthode différente basée sur la détection d'ions formés par un laser supplémentaire (laser à Argon servant également au pompage du Sa:Ti) soit dans le but d'obtenir des ions moléculaires, soit dans le but d'analyser le nombre d'atomes dans le piège. Comme nous le verrons, l'intérêt du processus de photoassociation dans un gaz d'atomes froids est qu'il est résonnant pour les transitions libre-lié (free-bound) de la réaction donnée plus haut. On passe d'un état du continuum moléculaire correspondant à la limite de dissociation ns-ns à un état lié excité. Seuls les états du continuum d'énergie inférieure à $k_B T$ (de l'ordre du MHz) sont peuplés. Il est ainsi possible de réaliser une spectroscopie des niveaux rovibrationnels. La méthode est efficace surtout au voisinage de la limite de dissociation. On atteint ainsi les niveaux vibrationnels de grand v . Elle constitue une méthode spectroscopique complémentaire des méthodes de spectroscopie traditionnelles qui n'ont, en général, pas accès à ces niveaux. De plus, du aux faibles vitesses des atomes, seuls les niveaux de faibles J seront atteints, ce qui simplifie notablement des spectres. Les résultats spectroscopiques que l'on peut ainsi obtenir intéressent tout particulièrement les physiciens théoriciens de la physique moléculaire car ils permettent de remonter à la partie longue distance des potentiels d'interaction de manière très précise.

Dans ce chapitre, nous donnons d'abord dans le paragraphe 3.2 les principales propriétés de la photoassociation. Nous discutons les principes de l'expérience et nous donnons l'exemple des applications de ces expériences avec la possibilité de déterminer la constante C_3 des courbes de potentiel. Dans le paragraphe 3.3, nous présentons brièvement les résultats

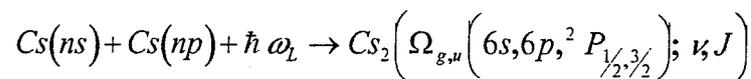
obtenus par d'autres équipes, résultats qui ont été publiés au cours de cette thèse. Dans un troisième paragraphe nous décrivons le dispositif expérimental. Le paragraphe suivant 3.4 décrit le dispositif expérimental et le paragraphe 3.5 donne les résultats très préliminaires pour les différentes procédures expérimentales que nous avons mises en œuvre. Les spectres obtenus sont assez pauvres compte tenu de la densité insuffisante d'un piège magnéto-optique. Elles constituent cependant une approche préliminaire de ce problème dans le cas du césium. Le paragraphe 3.6 s'intéresse aux aspects théoriques de la photoassociation. Nous avons développé une méthode perturbative purement quantique permettant de comprendre les difficultés de l'expérience et d'interpréter les résultats obtenus pour différents alcalins. Cette méthode permet l'obtention d'une formule analytique donnant un ordre de grandeur raisonnable de l'efficacité du processus. Nous utilisons une approximation dite réfléctive pour calculer le recouvrement entre les fonctions d'onde moléculaires. Le paragraphe 3.7 s'intéresse à un résultat inattendu que nous avons obtenu. Tandis que nous cherchions à observer un signal correspondant à une série rovibrationnelle sur la partie rouge de la résonance $6s_{1/2} \rightarrow 6p_{3/2}$, nous avons observé une structure sur la partie bleue de celle-ci. Cette structure peut être interprétée comme une série vibrationnelle mais son interprétation fait appel à une collision avec un atome dans l'état $F=3$ qui n'est pas présent au début du processus. Nous discutons la dynamique de ce spectre relativement complexe. Il pourrait correspondre à un mélange de configurations entre une série vibrationnelle convergeant vers la limite de dissociation $6s_{1/2}(F=3) + 6p_{3/2}$ avec le continuum de la limite de dissociation $6s_{1/2}(F=4) + 6p_{3/2}$. En conclusion, nous discutons les possibilités pour mener à bien des expériences de spectroscopie par photoassociation pour l'atome de césium.

3.2 Photoassociation moléculaire d'atomes froids

Dans ce paragraphe, nous tenterons de dégager les grands principes simples qui guident le phénomène de photoassociation, dans un piège magnéto-optique (ou plus généralement dans un échantillon d'atomes ultra froids). Nous montrons qu'il peut permettre d'effectuer une spectroscopie des états vibrationnels à longue distance des premiers niveaux excités de molécules d'alcalin.

3.2.1 Photoassociation moléculaire

La réaction de photoassociation est un processus à trois corps, deux atomes d'alcalins et un photon. Lors d'une collision entre ces atomes, il y a absorption d'un photon. Si la longueur d'onde du photon est supérieure à celle de la transition S-P de l'atome considéré, il peut y avoir production d'un état moléculaire lié. En effet, la courbe de potentiel de l'état excité chute plus rapidement (en $1/R^3$) que celle de l'état fondamental de la molécule (en $1/R^6$) quand on se rapproche des petites distances internucléaires. Pour cette raison, à longue distance, on peut considérer que la courbe de potentiel du fondamental est plate (on est dans le continuum moléculaire). Au contraire, la courbe de l'état excité s'est déjà profondément déplacée et on peut rencontrer des états vibrationnels liés. La fréquence de la transition entre l'état lié et l'état libre est donc décalée vers le rouge par rapport à la transition atomique (voir Figure 3-1). Dans le cas du césium, on a la réaction :



On peut considérer indifféremment la raie D₁ ou la raie D₂.

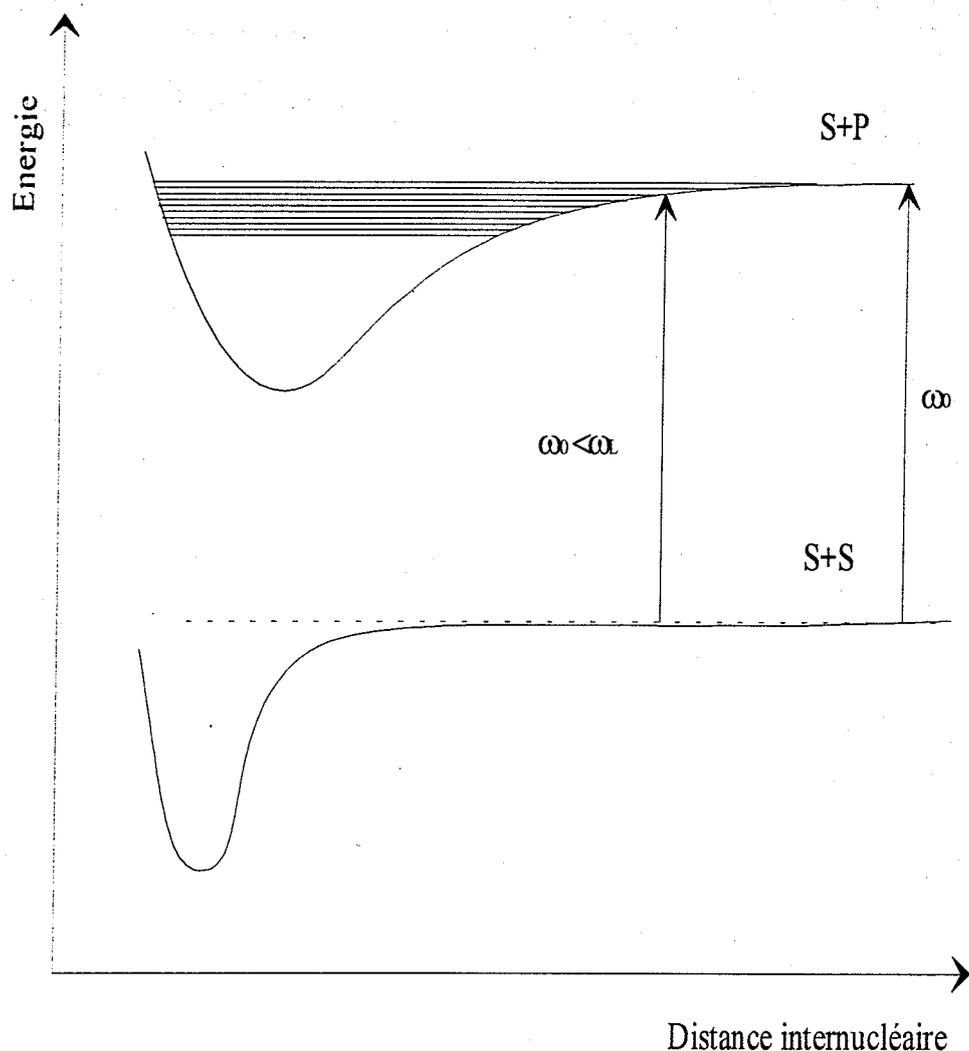


Figure 3-1 : Schéma simplifié de la photoassociation dans une molécule d'alcalin. la courbe de potentiel de l'état excité chute plus rapidement (en $1/R^3$) que celle de l'état fondamental de la molécule (en $1/R^6$) quand on se rapproche des petites distances internucléaires. Pour cette raison, les courbes de potentiel se rapprochent l'une de l'autre et la fréquence de transition entre les deux états diminue.

Pour résumer, l'état initial correspond à deux atomes alcalins dans leur fondamental que d'un point de vue moléculaire on considère comme un état du continuum. L'état final est un état rovibrationnel de la molécule d'alcalins proche de la limite de dissociation considérée. Ce dernier état serait difficilement accessible à partir de l'état fondamental de la molécule à cause du facteur de Franck-Condon car le recouvrement entre la fonction d'onde initiale et la fonction d'onde finale est très faible si on considère une molécule. Pour la molécule dans l'état

fondamental, la fonction d'onde est maximale au centre du puits alors que pour un état proche de la dissociation, ce maximum est au bord du puits, la probabilité d'une telle transition est quasiment nulle. Nous verrons que ce n'est pas le cas dans le processus de photoassociation.

Pour obtenir des réactions de photoassociation, on envoie un laser de forte puissance et de fréquence "adéquate" sur le piège. En balayant la fréquence du laser à partir de la résonance de l'atome et vers le rouge de la transition, on doit parcourir les différents niveaux vibrationnels et ainsi effectuer la spectroscopie des états moléculaires.

La photoassociation peut a priori avoir lieu aussi bien à haute qu'à basse température. On va montrer que l'intérêt de l'utilisation d'atomes froids réside dans la possibilité d'une grande résolution spectrale. Pour donner un ordre de grandeur de la largeur des niveaux, on écrit, dans le cas d'une réaction de photoassociation, la conservation de la quantité de mouvement et de l'énergie cinétique :

$$\begin{aligned} \frac{1}{2}mv_1^2 + E_1 + \frac{1}{2}mv_2^2 + E_1 + \hbar \omega &= E_2 + mV^2 \\ m\vec{v}_1 + m\vec{v}_2 + \hbar\vec{k} &= 2m\vec{V} \end{aligned} \tag{3.1}$$

où E_1 est l'énergie de l'atome l'état s,

E_2 est l'énergie de la molécule diatomique dans le niveau vibrationnel excité,

v_1 et v_2 sont les vitesses initiales des atomes,

V est la vitesse de la molécule formée

$\hbar \omega$ et $\hbar\vec{k}$ sont l'énergie et l'impulsion du photon absorbé.

En introduisant la vitesse relative v_r et la vitesse du centre de gravité v_g des deux atomes, on obtient :

$$E_2 - 2E_1 = \hbar \omega + \left[-\frac{\hbar^2 k^2}{4m} - \vec{v}_g \cdot \hbar\vec{k} + mv_r^2 \right] \tag{3.2}$$

Le premier terme de l'expression entre crochets correspond à l'énergie de recul, il est négligeable devant les autres. Le deuxième terme traduit l'effet Doppler, il est de l'ordre de 12,6 kHz pour une température de 100 μ K. Le troisième terme, le plus important, est lié à l'énergie cinétique relative des deux atomes dans l'état fondamental. Il représente la dispersion en énergie de ce niveau et est de l'ordre de 1MHz à 100 μ K. Ces valeurs sont inférieures à la largeur naturelle du niveau excité de la molécule (proche de celle de l'atome dans l'état P, 5,22 MHz pour le césium). Pour comparaison, à température ordinaire (300K), l'énergie de recul est à peu près de l'ordre de 200 cm^{-1} (à peu près 6 000 GHz). On a donc atteint la limite ultime de résolution, une diminution de la température ne l'améliorerait pas. Une bonne résolution spectrale est importante car au voisinage de la limite de dissociation, les niveaux vibrationnels sont a priori très serrés. Ces considérations très simples montrent tout l'intérêt d'utiliser la photoassociation pour des expériences de spectroscopie. Nous allons maintenant décrire la manière de réaliser une telle expérience.

3.2.2 Principe d'une expérience de photoassociation

Une expérience de photoassociation nécessite un échantillon d'atomes froids et un laser intense. Au cours de l'expérience, des molécules dans un état excité vont se former. On peut détecter directement ces molécules en les ionisant (c'est en particulier le cas dans les expériences de sodium). Cette méthode est très intéressante car elle permet d'obtenir un signal sur un fond noir. L'autre méthode consiste à étudier les pertes d'atomes dans le piège dus à la production de molécules. Ces processus sont assez complexes et nous allons les discuter.

Dans un premier paragraphe, nous allons expliciter les méthodes par analyse des pertes d'atomes (trap-loss). Dans un deuxième paragraphe, nous discuterons les méthodes à deux couleurs par ionisation de la molécule excitée.

a) Méthode dite par perte d'atomes ou trap-loss

Cette technique repose sur le fait que lorsqu'on forme une molécule par photoassociation à partir d'atomes du piège, le nombre d'atomes dans le piège peut s'en trouver

diminué. Cela peut sembler une évidence mais le processus est assez complexe. Les molécules ont en fait une durée de vie très courte (~ 30 ns) et se désexcitent par émission spontanée après leur formation. Une première possibilité est que la molécule se désexcite dans un état moléculaire du fondamental. Ce processus est en fait assez peu probable. La deuxième possibilité (la plus probable) est que la molécule se désexcite vers le continuum du fondamental. La molécule est donc dissociée et les atomes en résultant ont des vitesses différentes de leur vitesse initiale qui peuvent leur permettre de s'échapper du piège. En analysant les atomes restant dans le piège, on obtient l'efficacité de la photoassociation. En balayant la longueur d'onde du laser de photoassociation, on peut obtenir le spectre rovibrationnel de la molécule excitée.

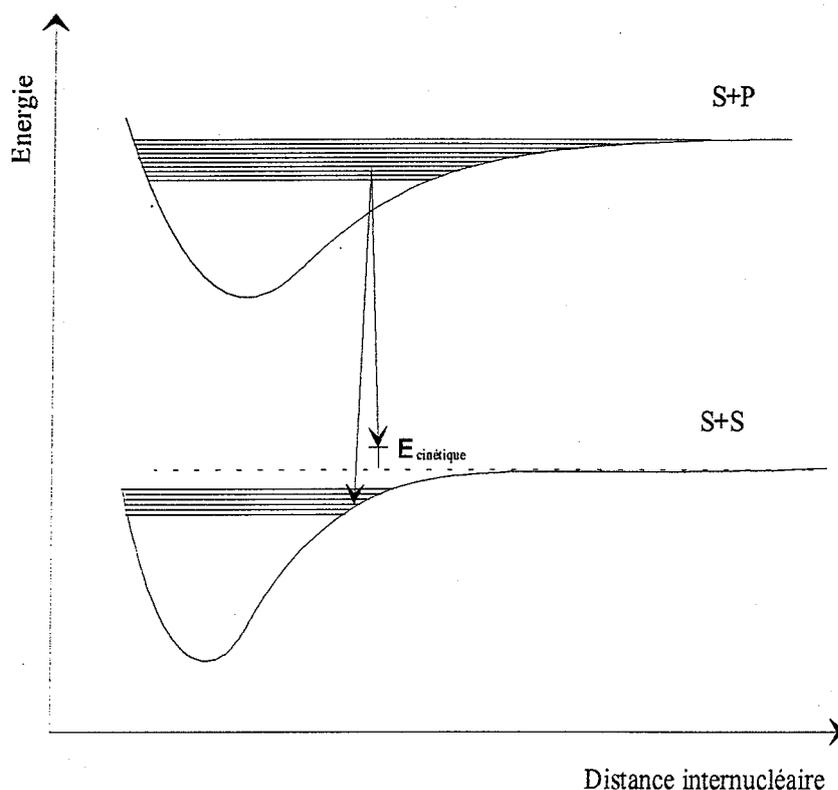


Figure 3-2 : Désexcitation après la formation de la molécule. Deux possibilités s'offrent à elle (la désexcitation vers l'état initial est très peu probable) : production de deux atomes dont la vitesse est trop importante pour qu'ils soient recapturés, ou désexcitation dans un état moléculaire du fondamental.). Dans les deux cas, les atomes sont en fait perdus par le piège (trap-loss).

Dans nos expériences, nous avons utilisé, pour analyser les atomes du piège, une impulsion laser de faible puissance obtenue à partir du faisceau de laser à Argon. Cette impulsion permet d'ioniser faiblement les atomes excités du piège et donne un signal d'ion proportionnel au nombre d'atomes dans le piège. On analyse ainsi les pertes d'atomes.

b) Analyse directe des molécules par photoionisation

Une deuxième méthode utilise un deuxième étage d'excitation après la photoassociation. On cherche à obtenir l'ionisation de la molécule car les ions sont plus faciles à détecter. Deux types d'ions peuvent être formés : les ions moléculaires qui résultent d'une transition dont la fréquence est décalée vers le rouge par rapport à la limite d'ionisation et les ions atomiques qui résultent d'une ionisation directe ou d'un niveau doublement excité auto-ionisant. Les ions atomiques peuvent être détectés par des dispositifs simples comme des

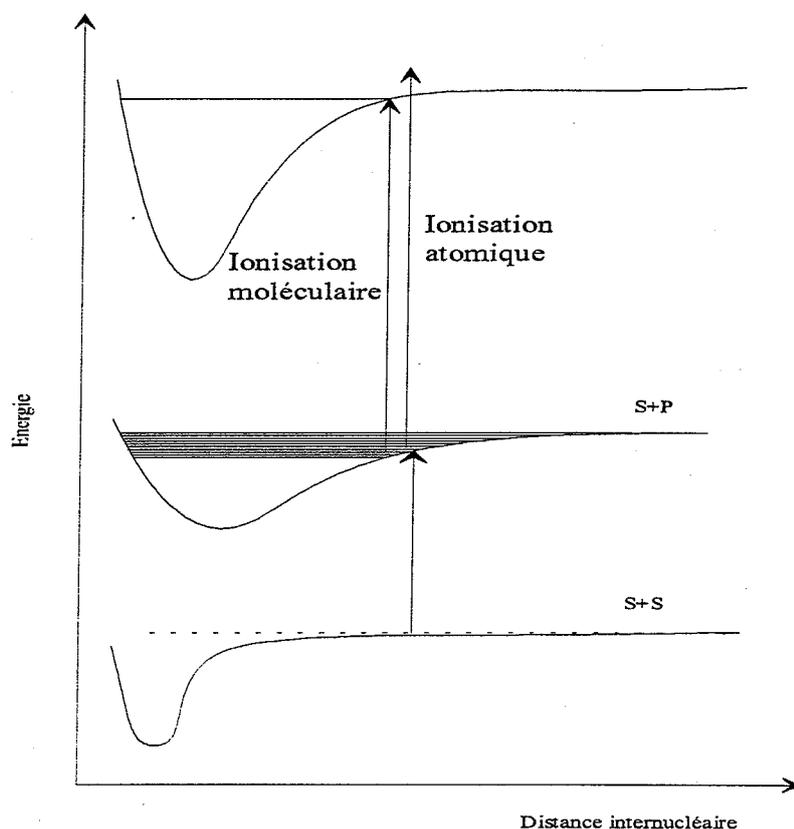


Figure 3-3 : Schéma descriptif des deux processus d'ionisation pouvant intervenir lors de l'irradiation de la molécule par un second laser : l'ionisation atomique et l'ionisation moléculaire.

galettes de micro-canaux. Un temps de vol peut permettre de discriminer les ions atomiques des ions moléculaires. La détection d'ions moléculaires permet de signer de façon irréfutable la production de molécules excitées (il est en effet possible de confondre l'ionisation atomique à

partir de la molécule de l'ionisation atomique à partir d'un état atomique P). Ces expériences sont des expériences à deux couleurs et nécessitant en général deux lasers différents. Les lasers doivent éclairer l'échantillon atomique dans le même temps, la molécule se désexcitant par émission spontanée.

3.2.3 Exemple d'application de la spectroscopie par photoassociation: Calcul de la constante moléculaire C_3

A partir des résultats expérimentaux et des spectres que l'on peut obtenir, on peut remonter aux données des courbes de potentiel moléculaires. On peut en particulier déterminer la valeur de la constante C_3 , le premier terme du développement en puissance du potentiel du premier état moléculaire excité. Nous allons ici expliciter la méthode utilisée [LER.69] [STW.70].

Près de la limite de dissociation, le potentiel inter-atomique peut s'écrire en un développement de puissance sous la forme:

$$V(R) = D - \sum_{m \geq n} \frac{C_m}{R^m} \quad (3.3)$$

où D est l'énergie à la limite de dissociation moléculaire, C_m les coefficients d'expansion et n la puissance du terme dominant quand on s'approche de la limite de dissociation. Physiquement, on peut se satisfaire de cette approximation à longue distance car les molécules dans l'état excité élevé d'un potentiel anharmonique seront la plupart du temps dans le point tournant extérieur. Le point tournant intérieur peut être assimilé à une barrière de potentiel infinie, donc le point tournant extérieur qui dépend de la forme de l'anharmonicité du potentiel détermine les propriétés diatomiques comme l'espacement des niveaux vibrationnels (voir Chapitre 1). Au premier ordre, l'équation (3.3) peut être approximée par le premier terme uniquement :

$$V(R) = D - \frac{C_n}{R^n} \quad (3.4)$$

Si l'équation (3.3) est utilisée dans un calcul de type WKB, pour calculer les valeurs propres du potentiel $V(R)$, on obtient [LEO.95] :

$$\nu + \frac{1}{2} = \frac{(2\mu)^{1/2}}{\hbar} \int_{R_1(\nu)}^{R_2(\nu)} [E(\nu) - V(R)]^{1/2} dR \quad (3.5)$$

où ν est le nombre quantique vibrationnel, μ la masse réduite, $R_{1,2}(\nu)$ la distance radiale du point tournant intérieur et extérieur, et $E(\nu)$ l'énergie du niveau vibrationnel ν . Une expression analytique des espacements entre états liés peut être calculée [LER.69][STW.70] :

$$\frac{dE(\nu)}{d\nu} = \hbar \left(\frac{2\pi}{\mu} \right)^{1/2} \frac{\Gamma(1+1/n)}{\Gamma(1/2+1/n)} \frac{n}{C_n^{1/n}} [D - E(\nu)]^{[(n+2)/2n]} \quad (3.6)$$

Il est plus aisé de traiter ν comme une variable continue. On peut réécrire cette équation sous la forme :

$$\frac{dE(\nu)}{d\nu} = K_n [D - E(\nu)]^{[(n+2)/2n]} \quad (3.7)$$

où

$$K_n = \hbar \left(\frac{2\pi}{\mu} \right)^{1/2} \frac{\Gamma(1+1/n)}{\Gamma(1/2+1/n)} \frac{n}{C_n^{1/n}} \quad (3.8)$$

En intégrant, on obtient :

$$E(v) = D - [(v_D - v)H_n]^{(2n/(n-2))} \quad (3.9)$$

où $H_n = [(n-2)/2n]K_n$ et v_D est une constante d'intégration. Il est bien connu que, à longue distance, dans une interaction dipôle-dipôle, C_3 est le terme dominant dans le développement (3.3). On peut donc réécrire les équations (3.7) comme :

$$\frac{dE(v)}{dv} = \hbar \left(\frac{2\pi}{\mu} \right)^{1/2} \frac{\Gamma(4/3)}{\Gamma(5/6)} \frac{3}{C_3^{1/3}} [D - E(v)]^{5/6} \quad (3.10)$$

et (3.9) comme :

$$E(v) = D - [(v_D - v)H_3]^6 \quad (3.11)$$

Rappelons que pour obtenir ce résultat, deux approximations sont faites :

- le point tournant intérieur est omis dans le calcul WKB ce qui conduit à une valeur de C_3 plus importante que s'il était pris en compte.
- les termes d'ordre supérieurs dans le développement (3.3) sont négligés, ce qui conduit à des valeurs de C_3 trop faibles.

En définitive, on peut écrire en rassemblant (3.8) et (3.11) :

$$(v_D - v)^6 = \left(\frac{2}{\pi\hbar} \right)^6 (2\mu)^3 C_3^2 (D - E_v) \quad (3.12)$$

Cette équation permet de déterminer la valeur de C_3 en fittant les résultats expérimentaux. C'est cette méthode qui a été utilisée dans la plupart des expériences réalisées jusqu'à maintenant. Dans le paragraphe qui suit, nous allons décrire rapidement ces expériences réalisées au cours de cette thèse par diverses équipes.

3.3 Expériences avec les alcalins autres que le césium

Les expériences de photoassociation ont été menées avec toute la série des alcalins jusqu'au rubidium. Toutes ont permis, à des degrés divers d'obtenir des spectres de photoassociation. Pour des raisons de structure d'atome, les résultats sur le sodium ont été particulièrement concluants. Nous allons dans ce chapitre décrire ces diverses expériences en traitant dans l'ordre le lithium, le sodium, le potassium et le rubidium. Le choix de cet ordre est "plus physique" (ordre de masse) que chronologique. Nous ne mentionnons que les expériences de photoassociation permettant de déterminer la structure vibrationnelle de la molécule considérée et omettons les expériences plus élaborées qui sondent la structure hyperfine des niveaux. Nous ne prétendons pas à l'exhaustivité mais nous tenterons tout de même dans un dernier paragraphe de dresser un tableau récapitulatif des expériences et de leurs principales caractéristiques. Nous discuterons de ces caractéristiques dans le paragraphe 3.7 concernant l'interprétation théorique du processus de photoassociation.

3.3.1 Lithium

Les expériences sur le lithium ont été menées à Rice University à Houston au Texas par l'équipe de Hulet [HUL.95]². Les énergies des niveaux vibrationnels de l'état $1^3\Sigma_g^+$ du ${}^6\text{Li}_2$ (Cas(b) de Hund) ont été mesurés. Le piège utilisé est un piège magnéto-optique classique dont la température annoncée est inférieure à 1 mK. La plage de fréquence balayée est de 100 cm^{-1} . Le laser de photoassociation est continu avec une puissance de 500 mW et un waist de $500\text{ }\mu\text{m}$. La méthode de détection utilisée est une méthode de trap-loss analysant la fluorescence du piège. Elle permet d'obtenir des séries nettes légèrement dédoublées dont l'origine est expliquée par la présence des deux états $1^3\Sigma_g^+$ et $1^1\Sigma_u^+$. Des calculs théoriques permettent de déterminer une valeur de $C_3=11.048\pm 0.066\text{ u.a.}$. Il faut noter que cette valeur est en accord avec celle obtenue à partir des données expérimentales par la méthode de LeRoy et Bernstein [LER.69]. Un spectre obtenu est représenté sur la Figure 3-5.

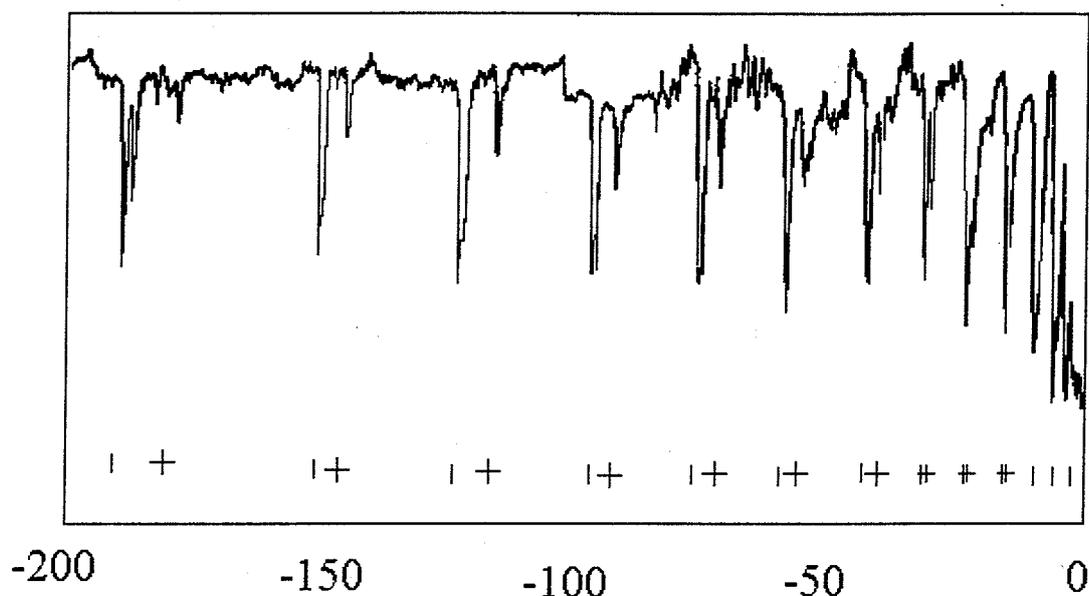


Figure 3-5: Fluorescence induite par le laser du piège en fonction du décalage en fréquence donné en GHz. Le 0 correspond à la résonance atomique $2S_{1/2}-2P_{1/2}$. Deux séries distinctes sont observées : la série notée + correspond aux valeurs calculées de $1^3\Sigma_g^+$ tandis que la série notée | correspond aux valeurs calculées de $1^1\Sigma_u^+$. Schéma extrait de [HUL.95]

3.3.2 Sodium

Les expériences sur le sodium ont été menées par plusieurs équipes, celle de P.D. Lett au NIST à Gaithersburg dans le Maryland, celle de Heideman à Utrecht et celle de Bagnato [LET.93] [LET.94] [MOL.96] [BAG.93].

Les expériences de Lett [LET.93] sont les premières à avoir mis en évidence la structure vibrationnelle du premier niveau excité de la molécule Na_2 . Les mesures portent sur les niveaux vibrationnels 1_g et 0_u^+ de l'état du Na_2 ($\text{Cas}(c)$ de Hund). Le piège utilisé est un piège magnéto-optique classique dont la température est inférieure à $500 \mu\text{K}$. La plage de fréquence balayée est de 100 GHz. Le laser de photoassociation est alterné avec le laser du piège à une fréquence de 100 kHz. La méthode de détection utilisée est le comptage d'ions avec deux portes : l'une en phase avec le laser piège et l'autre en phase avec le laser de

photoassociation. Le spectre est obtenu par différence des deux signaux. Les résultats montrent deux séries dont l'origine est expliquée par la présence des deux états 1_g et 0_u^+ . L'application de la formule

$$E_v - D = \frac{\alpha}{C_3^2} (v - v_D)^6$$

où les différents termes ont été définis plus haut [LER.69] conduit à des valeurs de $C_3=10.37\pm 0.07$ u.a. et $C_3=10.8\pm 0.7$ u.a.. Le spectre obtenu est représenté sur la Figure 3-6.

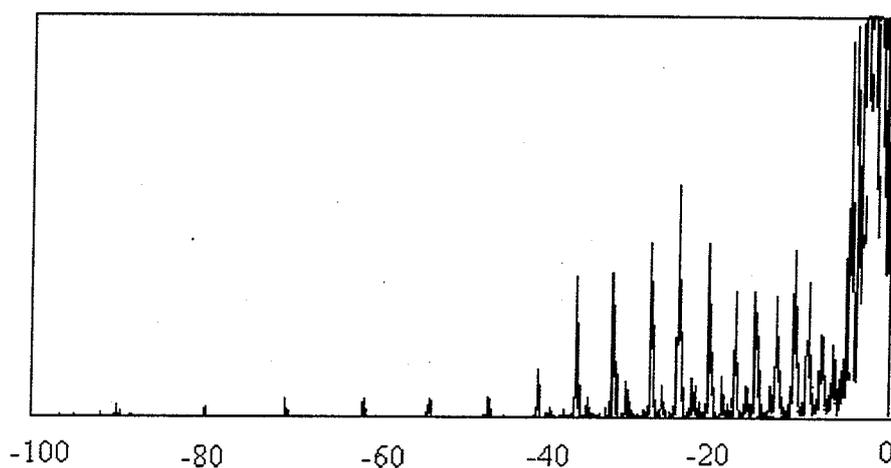


Figure 3-6 : Spectre de photoassociation du sodium obtenu par mesure des ions. Les graduations sont en GHz. Le laser de photoassociation est alterné avec le laser du piège à une fréquence de 100 kHz. La méthode de détection utilisée est le comptage d'ions avec deux portes : l'une en phase avec le laser piège et l'autre en phase avec le laser de photoassociation. Le spectre est obtenu par comparaison des deux signaux. Schéma extrait de [LET.93].

La deuxième expérience sur le sodium a été menée à Utrecht [MOL.96] et donne des résultats à peu près similaires : Pour 1_g , $C_3=10.67(11)$, ce qui est assez proche de la valeur trouvée par Lett. Mais Molenaar observe un second état qu'il identifie comme étant 0_g^- alors que Lett observe un état 0_u^+ . Notons que cet état 0_g^- est très intéressant car c'est un état dont le point tournant intérieur se trouve à une très grande distance internucléaire (environ $60 a_0$). Notons que les expériences ont été améliorées avec l'utilisation d'un dark-spot au lieu d'un piège magnéto-optique. Nous en discutons en conclusion de ce chapitre avec l'amélioration possible des expériences de photoassociation.

3.3.3 Potassium

Les expériences sur le potassium ont été menées par l'équipe de W.C. Stwalley à l'université du Connecticut [STW.95]. Les mesures ont porté sur les niveaux vibrationnels 1_g , 0_g^- et 0_u^+ de l'état excité du K_2 (Cas(c) de Hund). Le piège utilisé est un piège magnéto-optique de type dark-spot de température égale à $500 \mu\text{K}$. La plage de fréquence balayée est de 8 cm^{-1} . Le laser de photoassociation est un laser continu de puissance 1W et de waist 0.5 mm. La détection est effectuée par mesure du trap-loss.

Un des spectres obtenus est représenté sur la Figure 3-7.

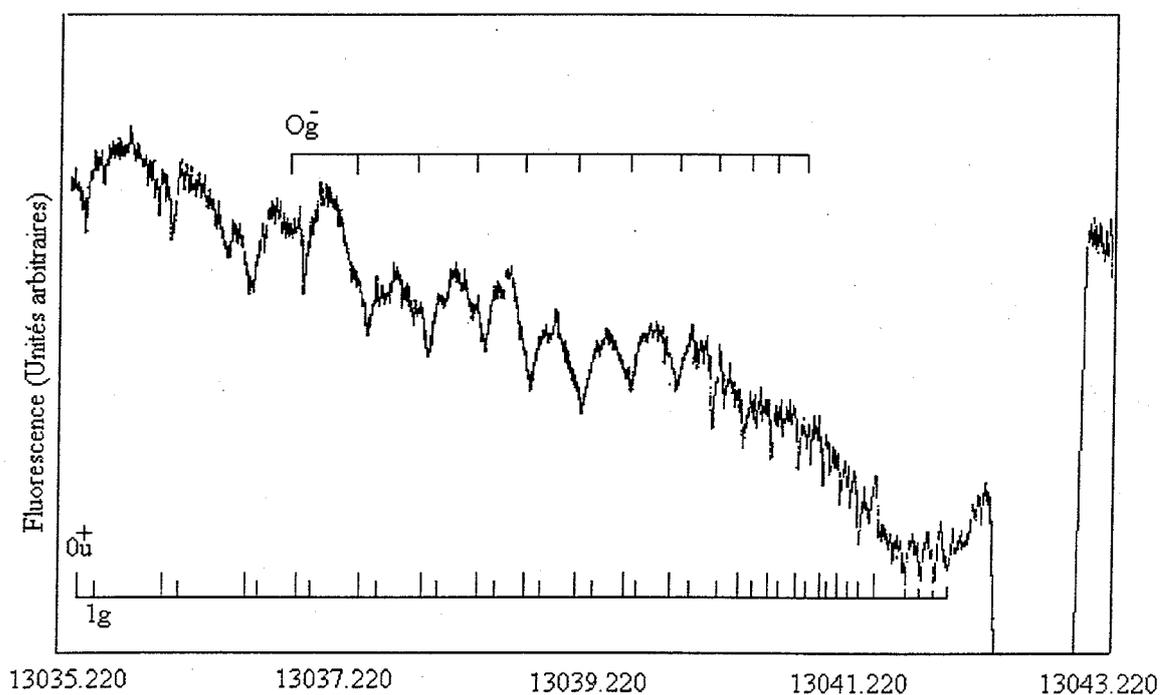


Figure 3-7 : Spectre de photoassociation du potassium obtenu par mesure du trap-loss. Les graduations sont en cm^{-1} . Schéma extrait de [STW.95].

Les résultats montrent trois séries, une forte (0_u^+) et deux faibles (1_g et 0_g^-). L'application de la formule

$$E_v - D = \frac{\alpha}{C_3^2} (v - v_D)^6$$

conduit aux valeurs suivantes :

Etat	C_3 (u.a)
0_u^+	14.14 ± 0.05
1_g	13.54 ± 0.10

3.3.4 Rubidium

Les expériences sur le rubidium ont été menées par deux équipes avec des méthodes assez différentes, celle de celle de Leonhardt et Weiner à l'université du Maryland [LEO.95] et celle de Heinzen à l'université du Texas à Austin [HEI.93] [HEI.94]¹ [HEI.94]².

Les expériences de Leonhardt sont les plus conventionnelles des deux, nous les évoquerons donc en premier lieu bien qu'elles soient plus récentes. Le piège utilisé est un piège magnéto-optique classique dont la température n'est pas donnée. La plage de fréquence balayée est de 2 cm^{-1} . Le laser de photoassociation est alterné avec les lasers du piège à une fréquence de 20 kHz. La méthode de détection utilisée est l'analyse par ionisation de la molécule Rb_2 excitée. Le laser utilisé pour l'ionisation est un laser à argon dont la longueur d'onde permet d'atteindre la limite de dissociation de l'ion moléculaire. Le spectre est obtenu par comptage des ions Rb_2^+ . Les résultats montrent une série dont l'origine est attribuée à l'état 1_g . L'application de la formule [LER.69] [STW.70] conduit à des valeurs de $C_3(1_g) = 14.2 \pm 1.0$ u.a.. Le spectre obtenu est représenté sur la Figure 3-8.

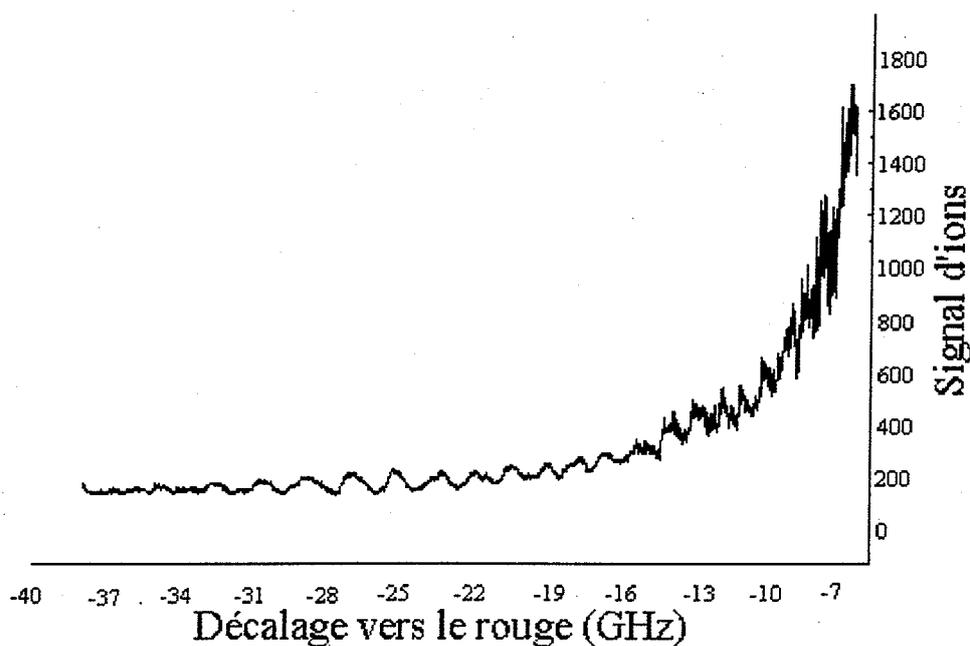


Figure 3-8 : Spectre de photoassociation rubidium obtenu par mesure des ions Rb_2^+ . Les graduations sont en cm^{-1} . Schéma extrait de [LEO.95].

La méthode utilisée par l'équipe de Heinzen est un peu différente de toutes celles passées en revue jusqu'à maintenant. En effet, le piège utilisé n'est pas un piège magnéto-optique mais un piège dipolaire ou FORT (Far Off Résonance Trap). La force de piégeage vient de la force dipolaire due au gradient de champ électromagnétique. Le chargement du piège est d'abord assuré par le MOT pendant 25 ms. Il s'ensuit une alternance MOT-FORT à une cadence de 200 kHz pendant 25 ms, puis le FORT est laissé seul, assurant le piégeage de quelques 2700 atomes à une température estimée entre 0.4 et 0.7 mK et, en même temps, assurant le rôle du laser de photoassociation, ce pendant 100 ms. La détection est effectuée par mesure du trap-loss analysé par absorption d'un laser de faible puissance. Les raies mesurées sont attribuées aux états 1_g , 0_u^+ et 0_g^- . Les coefficients C_3 annoncés sont $C_3(1_g)=14.29\pm 0.7$ et $C_3(0_u^+)=14.64\pm 0.7$. La courbe obtenue, assurément l'une des plus spectaculaires, est représentée sur la Figure 3-9.

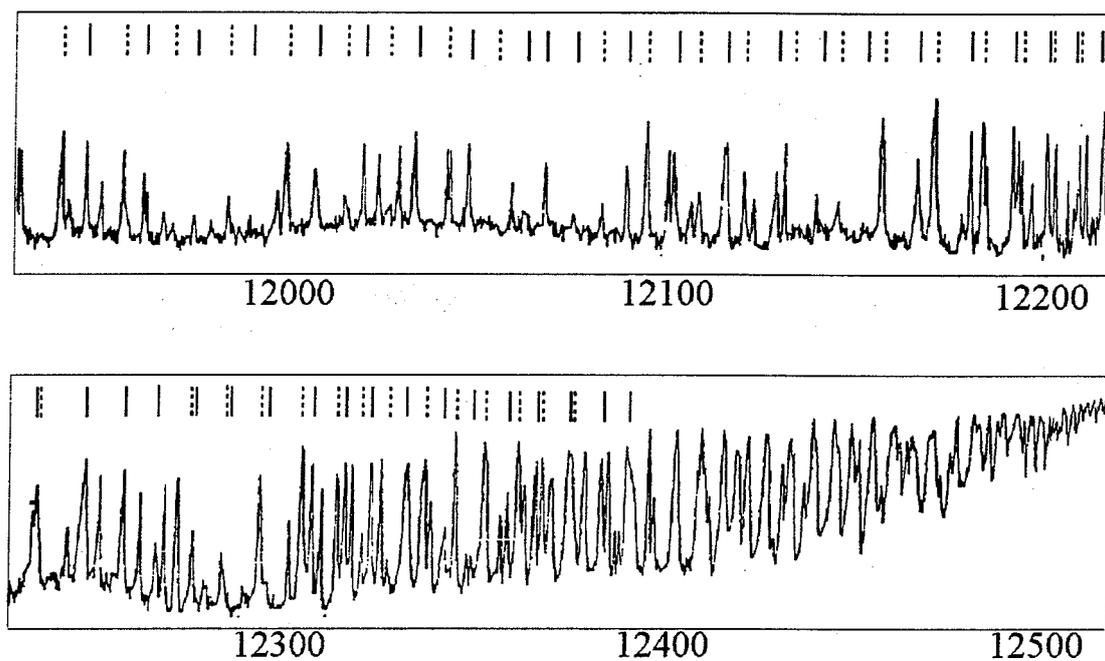


Figure 3-9 : Spectre de photoassociation du rubidium obtenu par mesure du trap-loss. Les graduations sont en cm^{-1} . Le laser FORT qui joue en même temps le rôle de laser de photoassociation est alterné avec le laser du piège à une fréquence de 200 kHz pendant 25ms. Ensuite, le laser de photoassociation est branché pendant 100 ms. Les traits plains indiquent les états 0_g^- et les traits pointillés indiquent les états 1_g^- . Schéma extrait de [HEI.93].

3.3.5 Récapitulatif

Voici un tableau récapitulatif des différentes expériences passées en revue ci-dessus.

Equipe	Hulet	Lett	Heideman	Stwalley	Weiner	Heinzen
Lieu des expériences	Houston Texas	NIST Maryland	Utrecht Pays-Bas	Univ. du Connecticut	Univ. du Maryland	Austin Texas
Élément	Lithium	Sodium	Sodium	Potassium	Rubidium	Rubidium
Technique de piège	MOT	MOT et Dark-spot	MOT	Dark-spot	MOT	FORT
Méthode de détection	fluores.	Ions Na_2^+	ions Na^+	fluores.	Ions Rb_2^+	Absorption
Densité (atomes/cm ³)		10^{12}	4.10^{10}			2700atomes
Température (mK)	1	0.5	0.15	0.5		0.5
Plage de balayage (cm ⁻¹)	100	3	3	8	2	1000
Puissance du laser (mW)	500		20	1000	50	1.5
Waist du laser (μm)	500		~200	500		10
Méthode de détection	Trap-loss	Ions avec portes	Trap-loss + ions	Trap-loss	Ions Rb_2^+	Trap-loss
Cas de Hund	b	c	c	c	c	c
Etats détectés	$^3\Sigma_g^+$ et $^1\Sigma_u^+$	1_g et 0_u^+	1_g et 0_g^-	1_g , 0_g^- et 0_u^+	1_g	1_g , 0_u^+ et 0_g^-
$\text{C}_3(1_g)$ u.a.		10.37 ± 0.07	$10.67(11)$	13.54 ± 0.10	14.2 ± 1.0	14.29 ± 0.7
$\text{C}_3(0_u^+)$ u.a.		10.8 ± 0.7		14.14 ± 0.05		14.64 ± 0.7

3.4 Dispositif expérimental

Dans ce paragraphe, nous allons décrire la base commune à toutes les expériences menées sur le césium. Nous laissons de côté la description du piège qui a déjà été faite longuement dans le chapitre 2 et décrivons l'appareillage utilisé pour l'excitation et la détection des niveaux vibrationnels excités des molécules de Cs_2 .

3.4.1 Les lasers

Nous avons utilisé dans nos expériences deux lasers différents dont un (laser Saphir:Titane IR) pour l'excitation des molécules de l'état fondamental de la molécule et l'autre (laser à Argon bleu) prélevé sur le laser de pompage du Saphir-Titane .

a) Le laser à Argon

Nous disposons d'un laser à Argon que nous utilisons pour pomper le laser Ti:Sa. Ce laser fonctionne avec une alimentation de 45 A et fournit un faisceau de sortie d'une puissance de 16W. Une partie de ce faisceau (de l'ordre du Watt) est utilisée pour la détection dans l'expérience de photoassociation. Le laser à Argon est utilisé pour deux fonctions distinctes : D'une part pour analyser comme décrit précédemment les variations du nombre d'atomes dans le piège (dans ce cas, il est atténué fortement pour éviter la destruction du piège et passe à travers un acousto-optique qui permet de réaliser des impulsions de 2 μs . L'autre utilisation est d'envoyer ce laser non atténué en même temps que le laser de photoassociation. L'acousto-optique permettant de réaliser une impulsion de la durée souhaitée. Dans ce cas, le laser traverse un prisme qui permet de séparer ses différentes longueurs d'onde. Nous obtenons essentiellement 2 faisceaux intenses, l'un à 488 nm et l'autre à 514 nm. La fréquence la plus bleue à 488 nm permet d'atteindre directement la zone d'énergie au delà de la limite de

dissociation de l'ion moléculaire. C'est à dire qu'il permet d'ioniser les atomes dans le niveau 6p. La longueur d'onde maximum pour atteindre la limite de dissociation moléculaire est 508 nm. La longueur d'onde verte à 514 nm ne permet pas a priori de former des ions atomiques.

b) Le laser Titane:Saphir

Le laser commercial Titane:Saphir (Ti:Sa) Coherent est la partie la plus importante du dispositif d'excitation de l'expérience car c'est lui qui réalise la photoassociation. C'est un laser solide à cavité en anneau accordable sur une très grande plage de fréquences (dizaines de nm) par séquences de 1 cm^{-1} . La contrepartie de cette grande accordabilité est que les balayages présentent souvent des sauts de mode, ce qui oblige à une grande attention lors des réglages. La puissance de sortie du faisceau est de 1.5W pour une puissance de pompe de 15W, ce qui constitue un rendement d'à peu près 10%. Pour déterminer la longueur d'onde du laser, nous utilisons une cellule diode chauffé à 800°C . Dans les plages de longueur d'onde qui nous intéressent, les raies sont faibles et n'ont pas été déterminées. Néanmoins, les spectres sont très reproductibles (voir Figure 3-9)

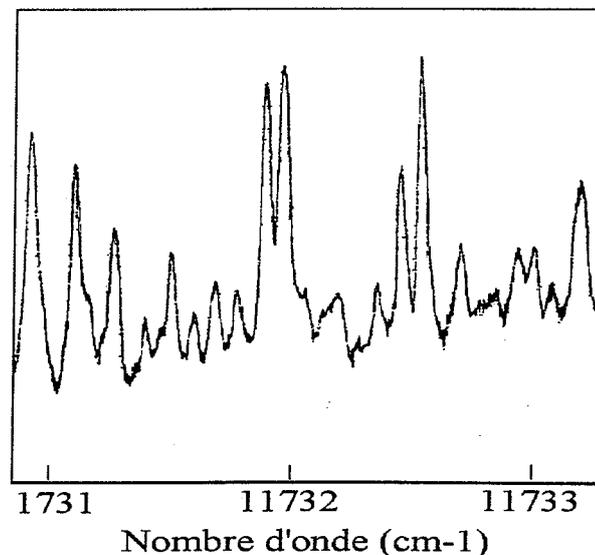


Figure 3-9 : Spectre de l'iode permettant de calibrer le laser Sa:Ti.

c) Les modulateurs acousto-optiques

Pour à peu près toutes les expériences que nous avons menées, un contrôle temporel était nécessaire, il a donc fallu installer des modulateurs acousto-optiques sur les faisceaux Argon et Ti:Sa contrôlés par des générateurs de pulse. Nous avons en fait utilisé les mêmes que ceux qui contrôlent la séquence temporelle des faisceaux formant le piège de façon à avoir une synchronisation parfaite entre les différents éléments de l'expérience. Un des inconvénients causés par les acousto-optiques est la perte de puissance (on n'utilise en effet que l'ordre 1 qui ne représente que 50 % de la puissance). Lorsque les modulateurs acousto-optiques sont déconnectés, il reste un peu de lumière mais dans des proportions tout à fait supportables (environ 1 OFF pour 1000 ON). Un schéma synthétique du dispositif des lasers est représenté sur la Figure 3-10.

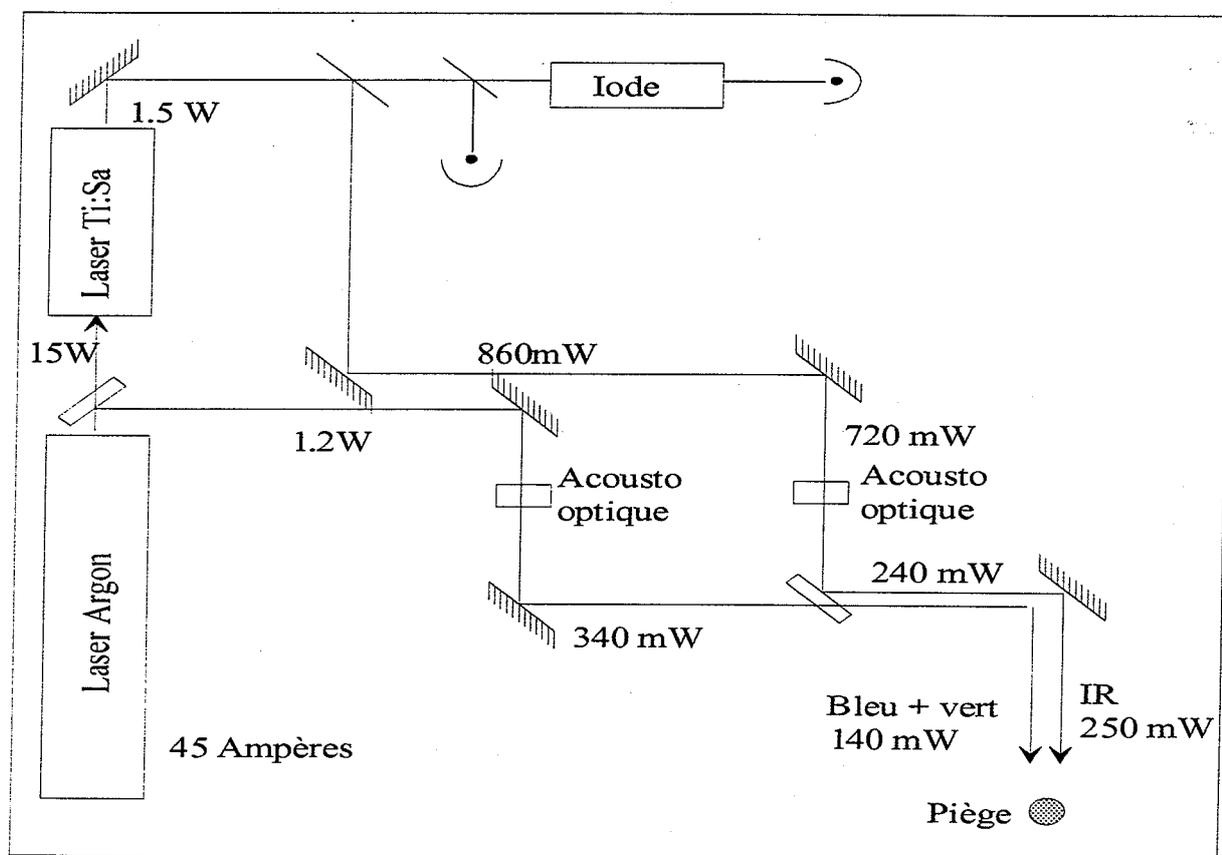


Figure 3-10 : Schéma de principe des principaux lasers. Sont représentées sur cette figure les puissances à différents endroits du parcours des faisceaux. On constate une grande déperdition, en particulier à cause des modulateurs acousto-optiques.

3.4.2 Méthodes de détection

a) Fluorescence

Les mesures de trap-loss ont été effectuées à l'aide la caméra CCD. Une carte d'acquisition reliée à celle-ci et un logiciel de traitement d'images permettent en effet de mesurer la fluorescence totale du piège sous réserve que le diaphragme ait été ouvert à une valeur acceptable pour qu'aucun phénomène de saturation n'intervienne. Ces mesures ont été doublées avec une photodiode montée avec une lentille dont le foyer est placé sur le piège. Un bon accord est observé entre les deux mesures.

b) La détection des ions

La détection des ions formés se fait en deux étapes. Il faut tout d'abord accélérer ces ions. Pour cela, à l'aide de deux grilles, on applique un champ électrique sur la zone du piège. Ces ions passent ensuite dans une zone libre de tout champ électrique qui constitue une zone de temps de vol permettant de discriminer les différents ions (Cs^+ et Cs_2^+). Ils sont finalement détectés par des galettes de micro-canaux .

i) Zone accélératrice

Deux grilles de cuivre sont tendues sur un support rigide. Nous avons réalisé sur ces grilles des trous de $6 \times 8 \text{mm}^2$ pour laisser passer les faisceaux lasers du piège afin d'éviter les effets de diffraction.

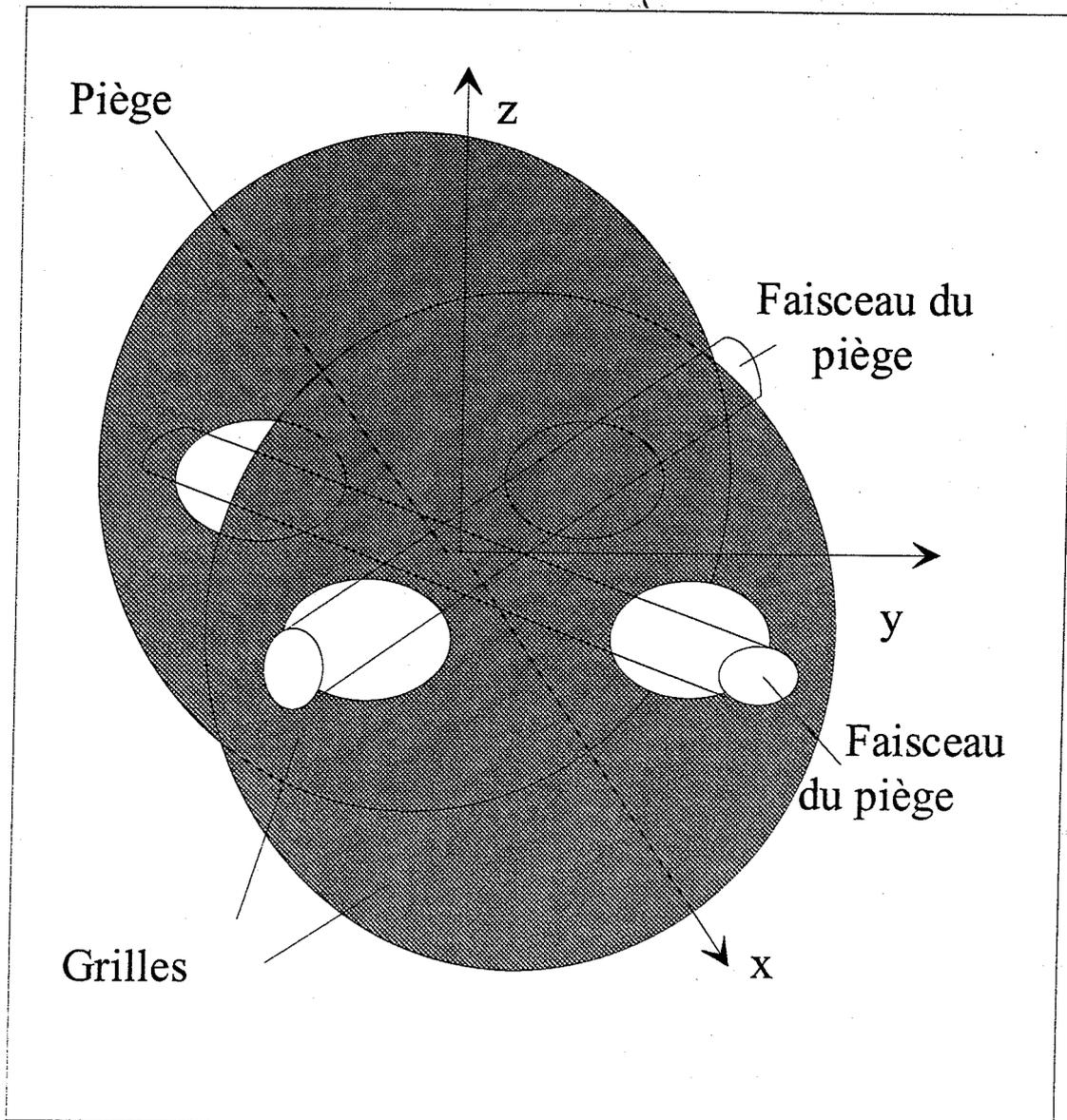


Figure 3-11 : Schéma en perspective des grilles accélératrices. Celles-ci sont trouées de façon à laisser passer les faisceaux du piège et ceci afin d'éviter les effets de diffraction. La distance entre les grilles est de 1.5 cm et la tension imposée de 300 V, soit un champ de 200V/cm.

ii) Les galettes de détection

La détection des ions est assurée par deux galettes de micro-canaux montées en série. Ces galettes sont placées à une distance de 6cm de la grille d'extraction des ions. Elles sont portées à une tension de 2.5 kV au moins et collectent les électrons créés par la collision des

ions sur la surface de la première galette. Pour cela, les électrons sont d'abord amplifiés comme dans un photomultiplicateur. Ceci permet de détecter les ions un par un.

iii) Temps de vol

La nature des ions est déterminée par un dispositif de temps de vol. Pour cela, on applique à la grille d'extraction une impulsion de tension créant un champ de 200 V/cm pendant 1 μ s. Le temps entre l'accélération de l'ion et sa détection est de 4 μ s pour un ion atomique Cs^+ et de 8 μ s pour un ion moléculaire Cs_2^+ si la tension entre les grilles est de 200 V/cm, ce qui permet de discriminer nettement les deux types.

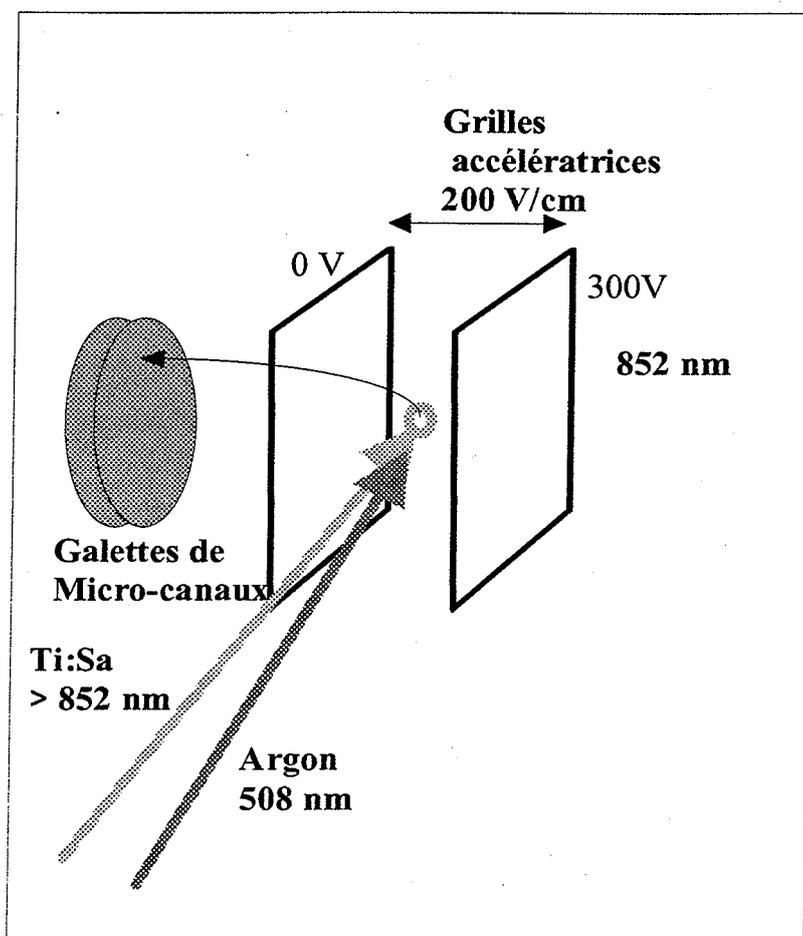


Figure 3-12 : Schéma du dispositif expérimental. Y sont représentés les lasers à Argon et Saphir:Titane qui excitent les molécules et les ionisent. Entre les grilles accélératrices est appliqué un champ électrique qui extrait les ions du piège et les accélère sur les galettes de micro-canaux où ils sont détectés.

3.5 Méthodes expérimentales

Ce paragraphe est consacré à la présentation des diverses méthodes expérimentales que l'on a mises en œuvre en vue d'obtenir la photoassociation et des résultats préliminaires obtenus. Nous avons essayé de développer plusieurs méthodes. La première est la plus simple. Elle consiste en une analyse de la fluorescence. La deuxième méthode est une méthode à deux couleurs consistant à photoioniser les éventuelles molécules créées. Les ions Cs_2^+ sont alors analysés par temps de vol. Parallèlement, nous avons aussi enregistré la totalité des ions Cs^+ et Cs_2^+ et regardé leur variation en fonction de la longueur d'onde. Finalement nous avons développé une méthode équivalente à l'analyse du trap-loss par fluorescence consistant à ioniser faiblement les atomes dans le piège magnéto-optique de manière à obtenir un signal proportionnel au nombre d'atomes. Nous présentons les résultats préliminaires obtenus.

3.5.1 Méthode par mesure de la fluorescence

Une des premières méthodes que nous avons mises en œuvre consiste à mesurer les variations de la fluorescence des atomes dans le piège magnéto-optique en fonction de la longueur d'onde du laser de photoassociation. C'est cette méthode qui a été utilisée par Hulet dans le cas de l'atome de lithium. Elle est a priori très simple puisque, dans le cas du lithium, les lasers de photoassociation et de refroidissement étaient appliqués en même temps. Des variations jusqu'à 40 % étaient observées pour une excitation résonnante de la molécule. Nous avons appliqué cette méthode à notre piège de césium dans des conditions expérimentales très similaires à celles de l'expérience sur le lithium. Les spectres que nous avons obtenus avec le césium ne montrent pas de variation de la fluorescence pouvant être interprétée comme une résonance. De légères modulations sont peut-être reproductibles.

Nous avons essayé d'améliorer ce résultat en appliquant le laser de photoassociation pendant des intervalles de temps finis en laissant le piège magnéto-optique se reconstituer entre deux impulsions. Nous avons pour cela utilisé un chopper mécanique pouvant travailler jusqu'à

2kHz, le laser Sa:Ti l'illuminant le piège que la moitié, le tiers ou le cinquième du temps. La caméra était déclenchée juste après la fin. Les acquisitions ainsi réalisées n'ont pas montré de différences significatives avec les spectres réalisés en continu. Nous avons réalisé des expériences au voisinage de la raie D_1 et de la raie D_2 du césium. Une expérience similaire a été réalisée par Stwalley sur le potassium [STW.95]. Ils n'ont pas observé de résonance due à la photoassociation en utilisant un piège magnéto-optique. Ils en ont cependant observé en réalisant un dark-spot. Nous discuterons ce point lorsque nous parlerons de l'avenir possible des expériences de photoassociation avec l'atome de césium.

Les résultats sur la raie D_1 du césium sont montrés sur la Figure 3-13.

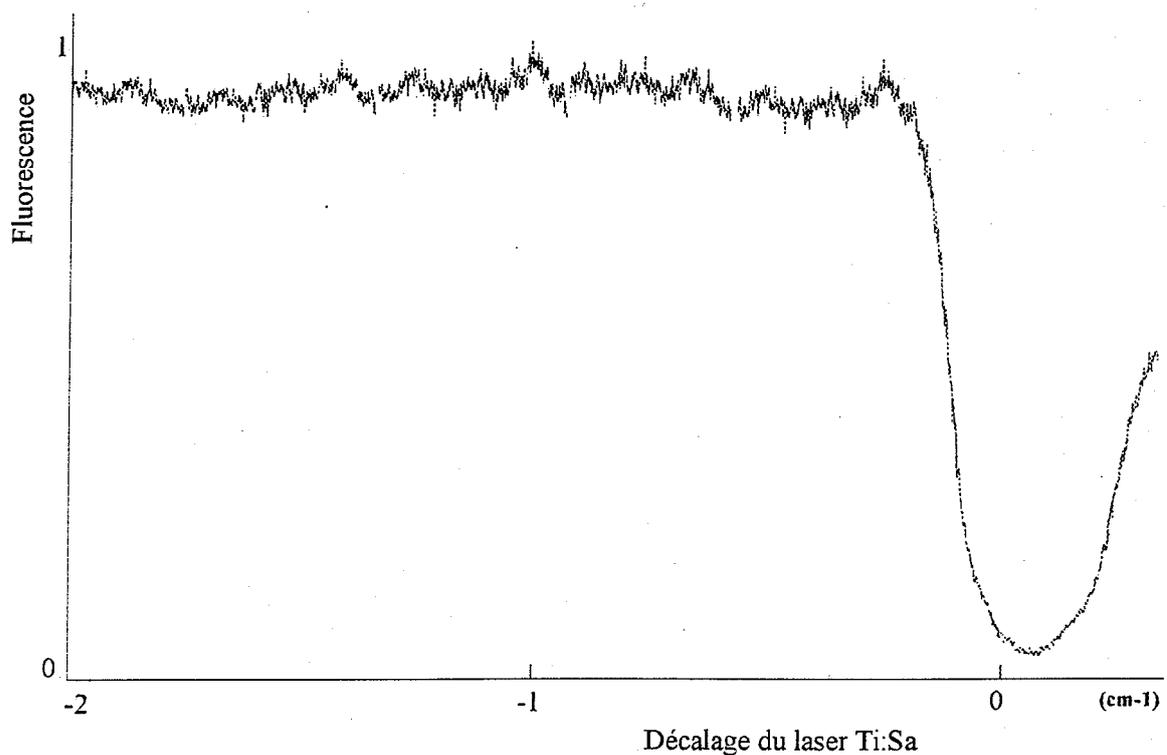


Figure 3-13 : Spectre de fluorescence de la raie D_1 du césium. On constate une simple décroissance de la fluorescence mais aucune structure n'apparaît même si on moyenne plusieurs spectres. La baisse de la fluorescence est due à la destruction du piège quand on se rapproche de la résonance.

La courbe sur la raie D_2 a exactement la même forme. La baisse de la fluorescence n'est due qu'à la destruction du piège quand on se rapproche de la résonance. La moyenne sur une dizaine de spectres n'a pas fait apparaître de structure. Nous avons effectué ces spectres sur

15cm^{-1} environ (450 GHz) et n'avons observé aucune structure. Les spectres correspondant ne sont bien sûr pas représentés ici.

3.5.2 Méthode de spectroscopie par temps de vol

Devant l'absence de résultat par l'analyse des pertes par fluorescence dues à la photoassociation, nous nous sommes tournés vers une méthode différente consistant à analyser directement la formation de molécules. Pour cela, on photoionise les molécules formées et on détecte les ions Cs_2^+ ainsi obtenus. Cette détection d'ions s'effectue grâce à un temps de vol. Pour réaliser la photoionisation, on utilise une partie du laser à argon sur la raie à 514nm. Les faisceaux du Sa:Ti et de l'argon sont envoyés simultanément sur le piège. En théorie, l'énergie des deux lasers est insuffisante pour produire des ions atomiques. Les impulsions sont obtenues grâce à des modulateurs acousto-optiques. Le piège peut être maintenu en permanence ou coupé durant la phase de photoassociation. Nous avons travaillé à des cadences de répétition variant de 10 Hz à 10 kHz, les lasers étant appliqués le cinquième ou le dixième du temps (voir séquence temporelle sur la Figure 3-14. Nous n'avons pas observé dans ces conditions d'ions moléculaires Cs_2^+ . Nous avons en revanche observé un faible signal d'ions Cs^+ . Nous avons réalisé ces expériences sur les raies D_1 et D_2 du césium.

Une méthode similaire a été développée sur le rubidium par Weiner et al. [WEI.95]. Dans le cas du rubidium, des ions Rb_2^+ ont pu être observés et un spectre de photoassociation moléculaire a pu être obtenu sur la raie D_2 . Il est intéressant de noter que dans l'expérience de Weiner, la somme des énergies des deux lasers est suffisante pour former des ions Rb^+ . Nous avons donc utilisé la même expérience en utilisant la raie à 492 nm. Dans ce cas, on observe un signal d'ions Cs^+ plus important lorsqu'on s'approche de la résonance, mais pas d'ions Cs_2^+ . La

Nous avons mené ces expériences dans des conditions de paramètres variées mais cette méthode ne nous a pas permis de détecter d'ions moléculaires même en moyennant plusieurs spectres. Voir à titre d'exemple la Figure 3-15 la courbe obtenue sur la raie D_2 pour un décalage assez faible.

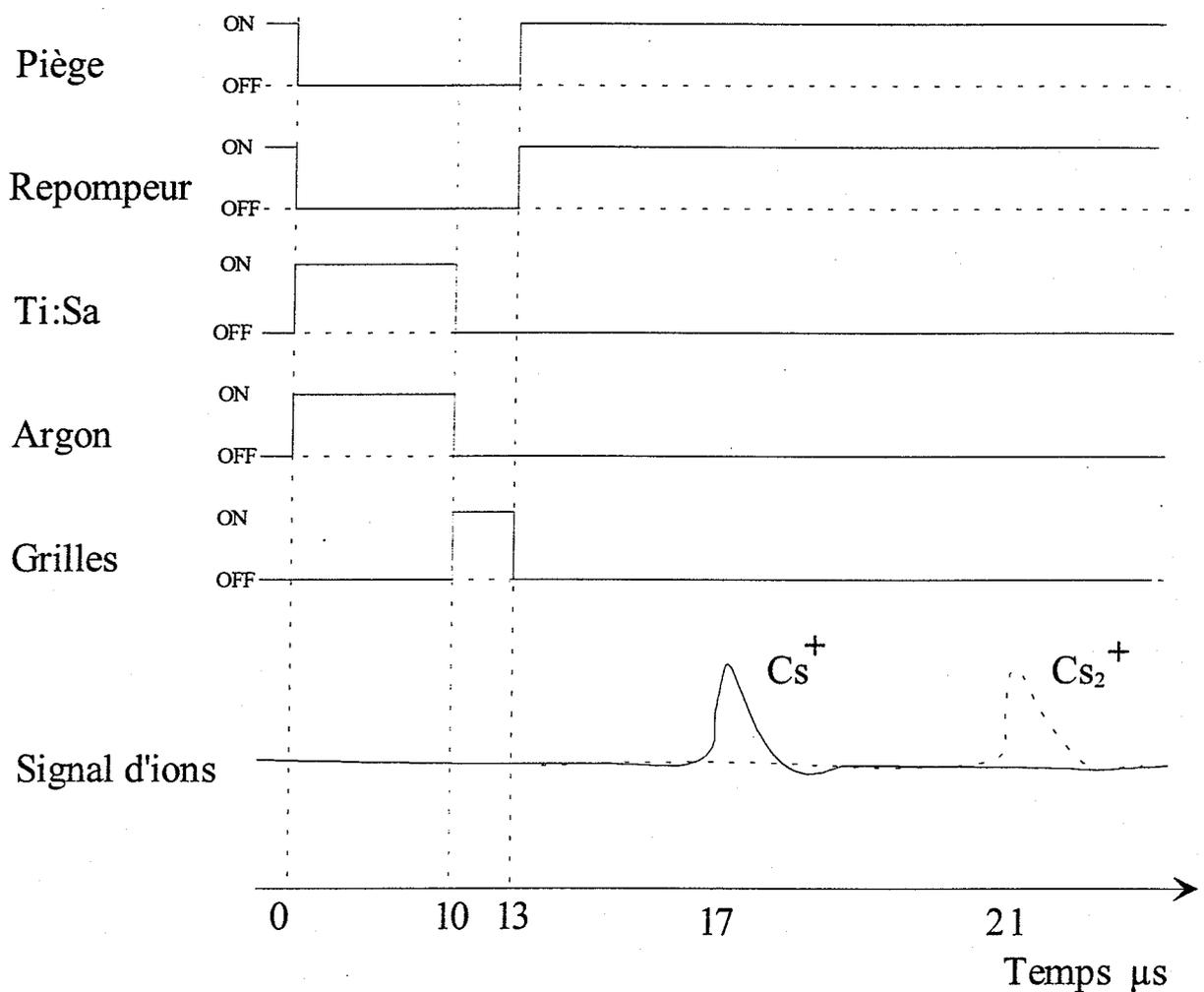


Figure 3-14 : Séquence temporelle des expériences avec temps de vol. Le piège est alterné avec les lasers de photoassociation. On évite ainsi la formation d'ions atomiques. Le laser Ti:Sa est allumé le premier pendant un temps variable. On allume ensuite le laser à Argon qui ionise les molécules. Les grilles accélératrices sont ensuite portées à une tension de 300 Volts, les ions atomiques sont détectés 4 μs après.

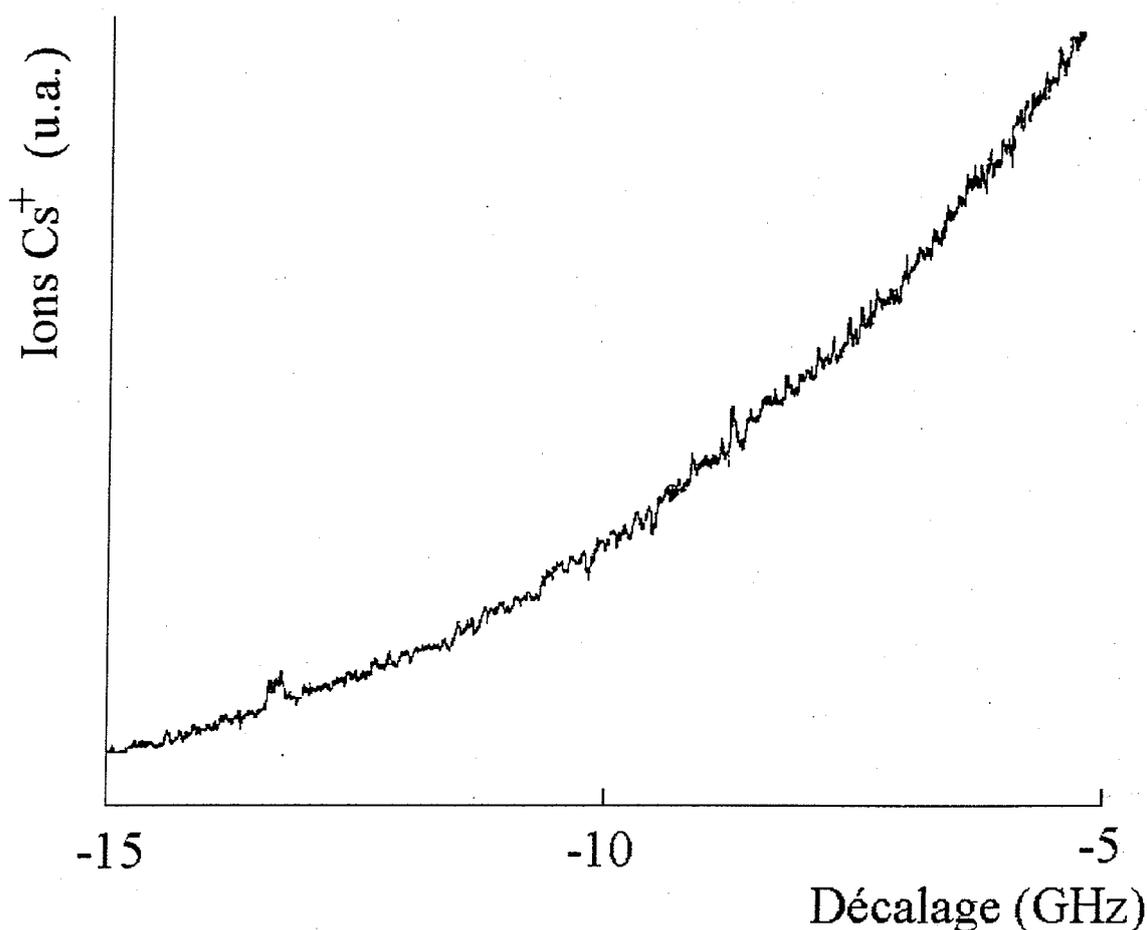


Figure 3-15 : Signal d'ions obtenu lors de mesures avec un dispositif de temps de vol. La plage de fréquence balayée est de 10 GHz. Le laser de photoassociation est alterné avec les lasers du piège à une fréquence de 20 kHz. Le spectre est obtenu par comptage des ions Cs⁺.

3.5.3 Méthodes par mesure totale des ions

Les méthodes par temps de vol n'ayant pas donné de résultats probants, nous avons testé une méthode qui consiste à compter le nombre total d'ions atomiques et déceler les éventuelles variations sur cette production. L'hypothèse dans ce cas est que molécules formées se cassent au moment de leur photoionisation. Le signal de production d'ions doit dépendre du

taux de photoassociation et donc de la fréquence du laser Ti:Sa. Nous avons donc essayé diverses méthodes. Un exemple est montré sur la Figure 3-16. L'expérience est réalisée à une cadence de 19200 Hz. On coupe le piège pendant $9 \mu\text{s}$. Le temps de réponse du générateur micro-onde étant à peu près de $4 \mu\text{s}$, nous appliquons le laser Saphir:Titane avec un retard comparable ($5 \mu\text{s}$). Avant cette coupure, on "branche" les lasers de photoassociation et d'ionisation pendant $4 \mu\text{s}$ (voir Figure 3-16). Un champ électrique est appliqué en permanence pour extraire les ions (200 V/cm). On balaye le laser assez rapidement sur une plage de quelques GHz pendant une période de 200 ms. Un oscilloscope numérique nous permet de faire des moyennes sur quelques milliers de passages.

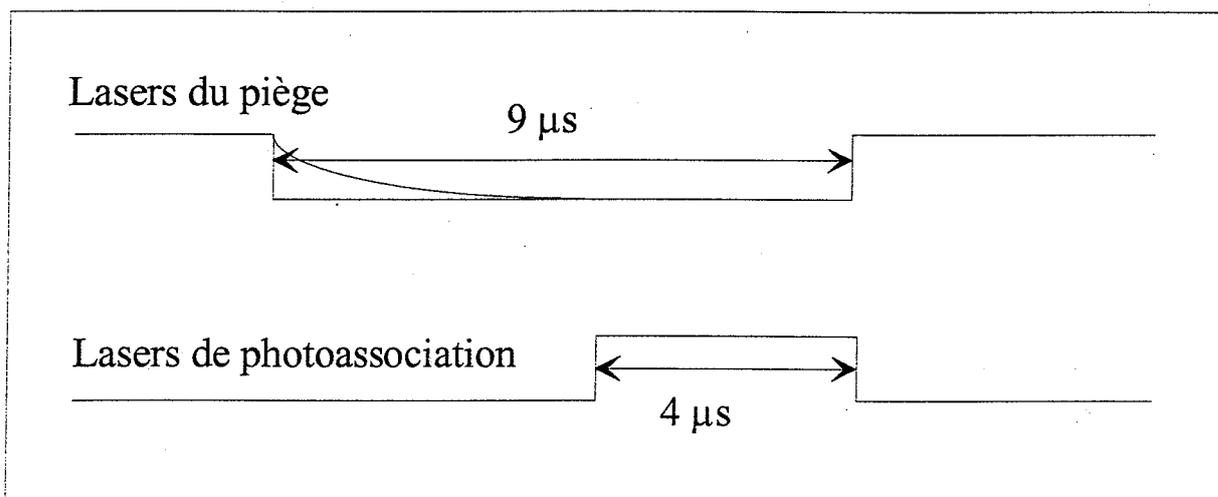


Figure 3-16 : Diagramme temporel d'une expérience avec mesure totale des ions. La cadence est de 19.2 kHz. Le piège est coupé pendant $9 \mu\text{s}$ et les lasers de photoassociation sont allumés pendant $4 \mu\text{s}$ (le temps de réponse du générateur micro-onde étant à peu près de $4 \mu\text{s}$). On balaye rapidement la fréquence du laser Ti:Sa sur une plage qui va de un dixième à 30 GHz. Les ions sont immédiatement détectés par les grilles qui sont allumées en permanence et on moyenne quelques milliers de passages à l'aide d'un oscilloscope numérique.

Un exemple de résultat obtenu est montré sur la Figure 3-17. On constate sur cette figure qu'aucune structure n'apparaît. Ceci ne change pas si on fait un zoom sur une quelconque partie de ce spectre en balayant une plage de fréquence plus petite et en augmentant la sensibilité de détection. Il faut noter que nous avons fait ces mesures pour d'autres valeurs que celles montrées dans la Figure 3-16. Nous avons par exemple fait varier dans de larges mesures les cadences (200 Hz, 2000 Hz) et par conséquent les temps d'excitation ($400 \mu\text{s}$, 4 ms). Cela n'a pas non plus permis d'obtenir de structure.

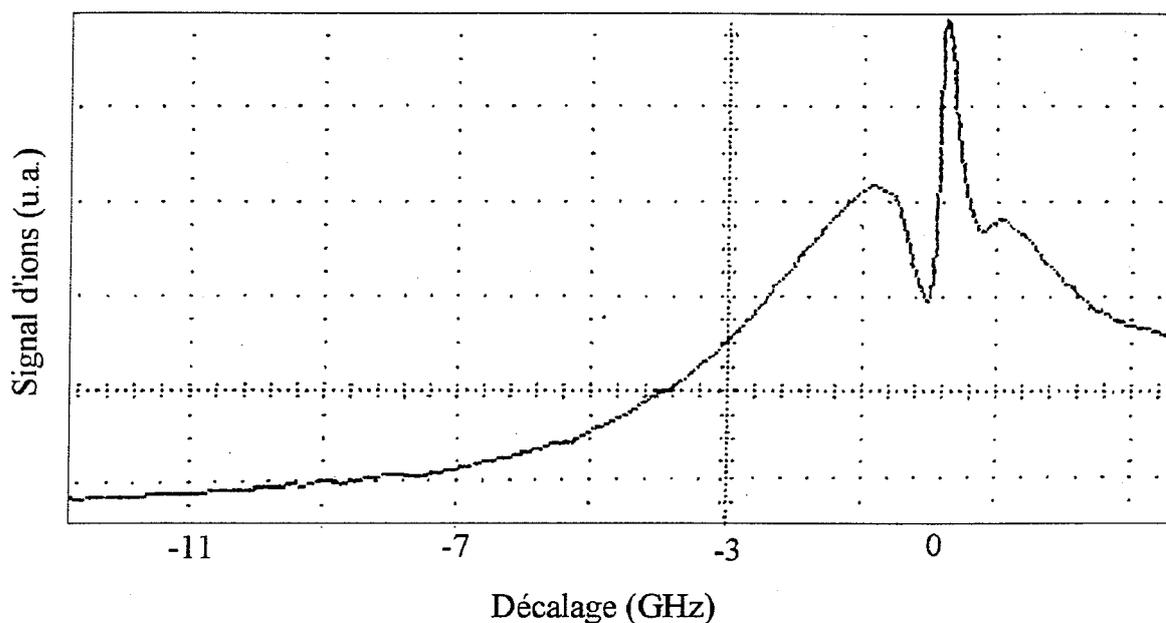


Figure 3-17 : Vue générale obtenue avec le dispositif temporel de la Figure 3-16. Ce spectre a été obtenu en moyennant 500 fois. La courbe obtenue est parfaitement lisse et ne laisse apparaître aucune structure, et ceci quel que soit le niveau de précision que l'on sonde. Nous avons mesuré des zones de quelques fractions de GHz seulement avec une résolution de signal d'ions bien plus importante qu'ici : la courbe devient parfaitement lisse après un temps de moyenne suffisant.

Une des expériences réalisées nous a permis de faire apparaître des structures pouvant faire penser à un spectre de photoassociation. Nous l'avons obtenu dans les conditions suivantes. Le laser à argon à 514 nm est appliqué en permanence. Le faisceau Sa:Ti est coupé régulièrement avec un chopper mécanique à 150 Hz, le piège a alors le temps de se reformer. Les ions sont accélérés par un champ électrique compris entre 1000 et 3000 V/cm. Le spectre obtenu est montré sur la Figure 3-18. Il ne s'agit pourtant pas d'un spectre de photoassociation car certaines raies observées se déplacent suivant le choix du champ électrique appliqué sur les grilles. De même, lorsque l'on se place en dessous d'un certain seuil de tension, ces pics disparaissent. Il s'agit de pics dus à des résonances atomiques avec des états de Rydberg soumis à l'effet Stark. Ces résonances correspondent à une excitation à deux photons à partir du fondamental de l'atome (un fourni par le laser Sa:Ti et un fourni par le laser à Argon à 518 nm). Pour étayer cette hypothèse, nous avons réalisé une expérience consistant à éclairer le

piège magnéto-optique avec le laser à argon seulement en présence d'un champ électrique variant de 0 à 2000 V/cm, expérience décrite dans le paragraphe suivant.

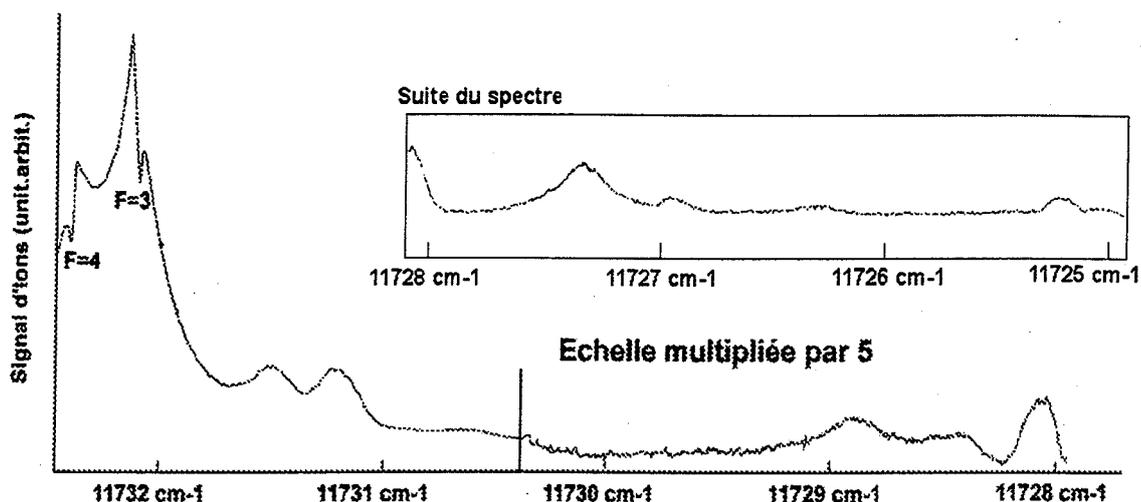


Figure 3-18 : Spectre obtenu avec les faisceaux du piège coupés à une cadence de 150 Hz par un chopper mécanique. Les ions sont accélérés par les grilles à une tension de 3kV.

3.5.4 Mesures préliminaires sur les atomes de Rydberg

Nous avons effectué une série de mesures sur les atomes de Rydberg permettant de vérifier la qualité de la détection d'ions et des champs électriques sur les grilles. La méthode est la suivante : Le faisceau vert (514 nm) du laser à Argon est envoyé sur le piège et le laser Ti:Sa est coupé. On fait varier le champ électrique des grilles de 0 à 2 kV. On mesure la quantité d'ions produite. Le résultat est montré sur la Figure 3-19. Ce spectre provient de la structure de l'atome en dessous de la limite d'ionisation. Le laser n'est en effet pas suffisamment énergétique pour ioniser directement l'atome. Il excite donc l'atome dans un état de Rydberg élevé, le niveau atteint dépendant du champ électrique car l'atome subit un effet Stark. On obtient une description correcte de ce spectre en calculant les niveaux Rydberg des atomes de césium dans un champ électrique. Ceci est fait par diagonalisation numérique dans la base des états de structure fine en introduisant un terme non diagonal d'interaction avec le champ électrique (effet Stark proportionnel au dipôle atomique). Le résultat est montré sur la Figure 3-20.

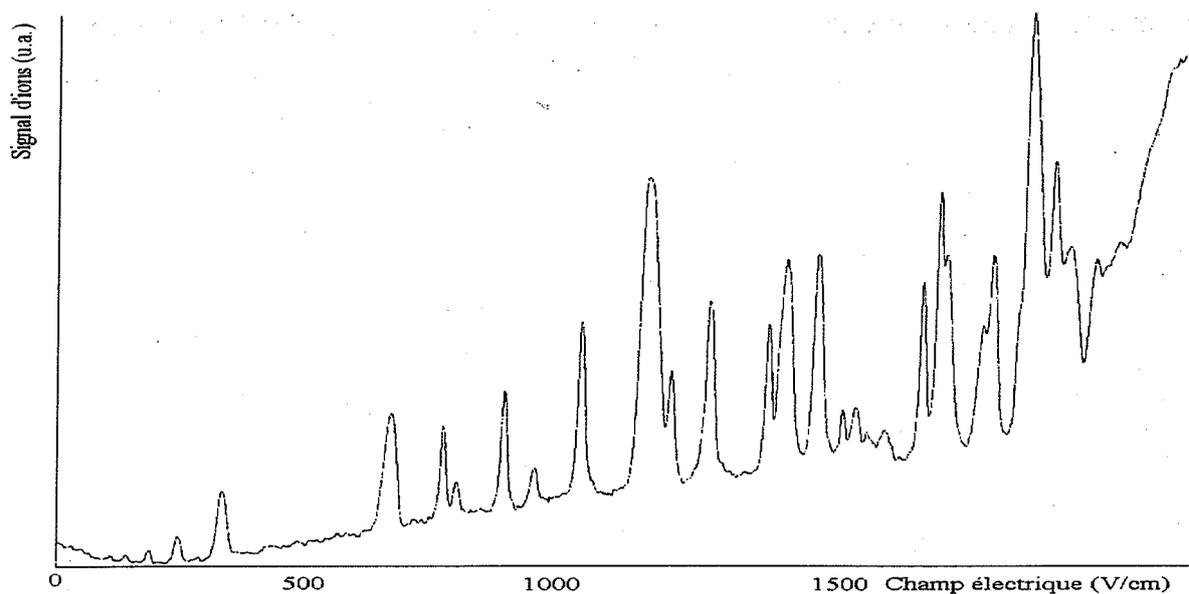


Figure 3-19 : Spectre d'ions obtenu en envoyant le laser Argon sur le piège et en faisant varier le champ électrique sur les grilles. Les pics correspondent à une ionisation par champ des atomes de Rydberg créés par le laser vert (Argon).

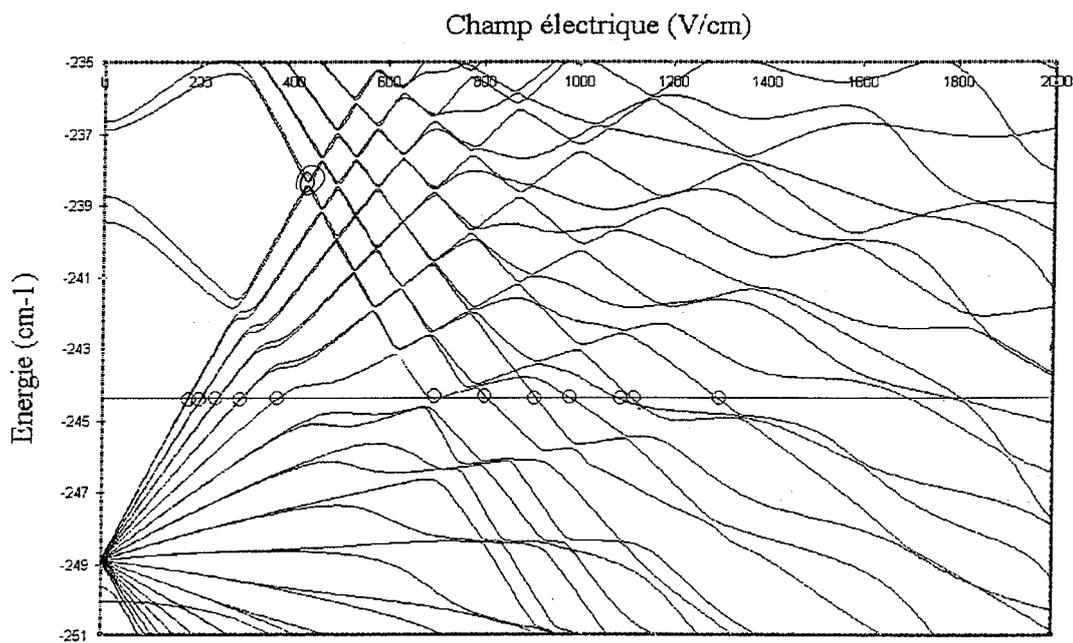


Figure 3-20 : Diagramme Stark des états de Rydberg de l'atome de césium. La ligne horizontale correspond à l'énergie après excitation par le laser à Argon. Les intersections entre cette droite et le diagramme Stark de fond sont à l'origine des pics observés sur la Figure 3-19.

Nous n'avons pas exploité ces spectres. Des expériences sur les atomes de Rydberg froids sont en cours actuellement pour comprendre l'observation des spectres obtenus. Il faut faire appel à des phénomènes d'ionisation en avalanche tel que ceux qui sont observés dans des jets d'atomes denses excités sur des transitions Rydberg [HAR.87].

3.5.5 Méthodes par comparaison des ions

A ce point des expériences, nous nous sommes tournés de nouveau vers l'étude des pertes dans un piège magnéto-optique. Nous avons essayé d'exploiter la relative facilité de la détection d'ions par rapport à une méthode par fluorescence. Comme il a été dit précédemment, nous envoyons sur le piège une impulsion laser de faible intensité et de durée de l'ordre de la microseconde. Un champ électrique de 200 V/cm est appliqué constamment dans la zone d'interaction. Les ions sont formés par photoionisation à partir des atomes excités dans le niveau $6p_{3/2}$. Les ions formés arrivent sous la forme d'une impulsion de l'ordre d'une microseconde sur les détecteurs. L'analyse du signal d'ions donne une bonne indication des variations du nombre d'atomes dans le piège. Dans un premier temps, nous avons appliqué en alternance le laser de photoassociation et le piège en coupant soit le laser repompeur, soit le laser refroidisseur, soit les deux. Nous avons travaillé à différentes cadences de répétition (entre 200 Hz et 20 kHz). Le laser Sa:Ti est appliqué pendant un quart à un dixième du temps. Pour s'affranchir en partie de certaines fluctuations lentes du piège, nous n'appliquons le laser Sa:Ti qu'un cycle sur deux. Nous avons étudié en fonction de la longueur d'onde la différence entre le signal d'ions obtenu sans application du laser Sa:Ti et le signal d'ions obtenu après application du laser Sa:Ti. Nous avons aussi tracé cette même différence normalisée par le signal d'ions obtenu sans application du laser Sa:Ti.

Nous appelons cette méthode la méthode par "comparaison des ions". Cette méthode simple dans le principe est un peu délicate à mettre en œuvre car elle nécessite une séquence temporelle très précise (voir par exemple la Figure 3-21). Le repompeur est coupé pendant 22 μ s alors que le laser piégeant n'est pas coupé. Le signal d'ions est dû aux atomes dans le niveau $F=4$ $6p_{3/2}$. La population d'atomes dans l'état $F=4$ décroît par dépompement mais dans une proportion très faible (la durée de dépompement est de 3ms). Si on branche le laser Ti:Sa, on provoque une décroissance supplémentaire beaucoup plus importante, en particulier au

voisinage de la raie D_1 ou D_2 . Les signaux sont moyennés sur 10 000 coups (une demi seconde) avant que la fréquence du laser Ti:Sa ne soit changée.

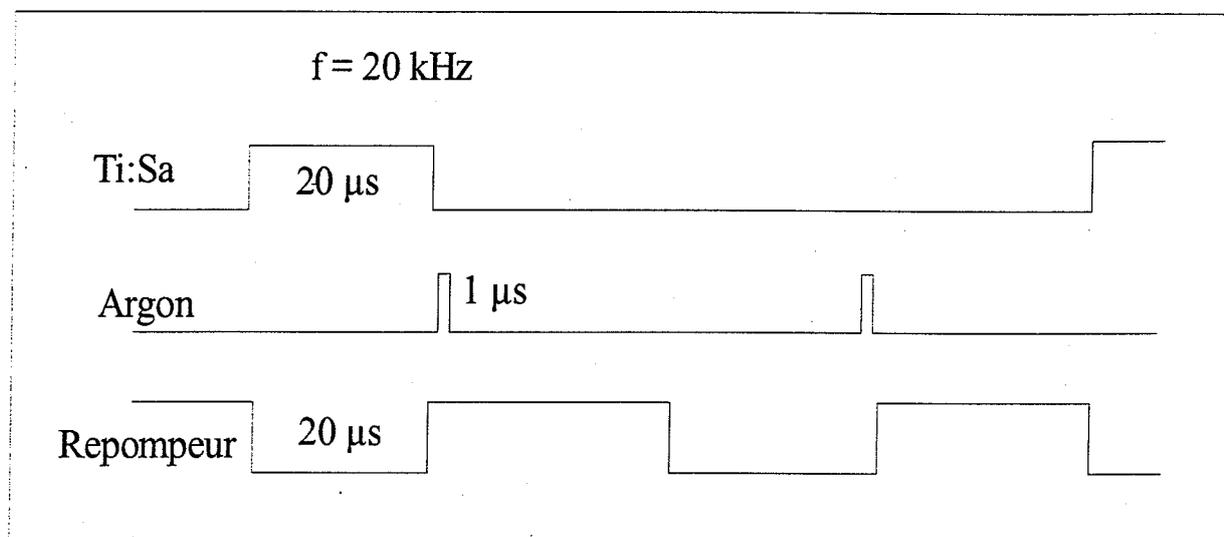


Figure 3-21 : Schéma temporel des expériences par comparaison des ions. Le repompeur est coupé pendant $32 \mu\text{s}$ alors que le laser piègeant n'est pas coupé. La population d'atomes dans l'état $F=4$ décroît alors (la durée de dépompage est de 3ms). Une fois sur deux, on branche le laser Ti:Sa provoquant ainsi une décroissance supplémentaire de la population $F=4$. On mesure cette population en envoyant le laser Argon avant que le repompeur ne soit rebranché, (on mesure des ions Cs^+). On fait la différence des ions grâce à un box-car.

Nous avons effectué cette expérience sur la raie D_1 et sur la raie D_2 du césium. Les résultats sont montrés sur les Figure 3-22Figure 3-23. Pour les expériences présentées sur ces figures, le laser Sa:Ti est atténué, ce qui permet de mettre en évidence la structure hyperfine des niveaux $6p_{3/2}$ et $6p_{1/2}$.

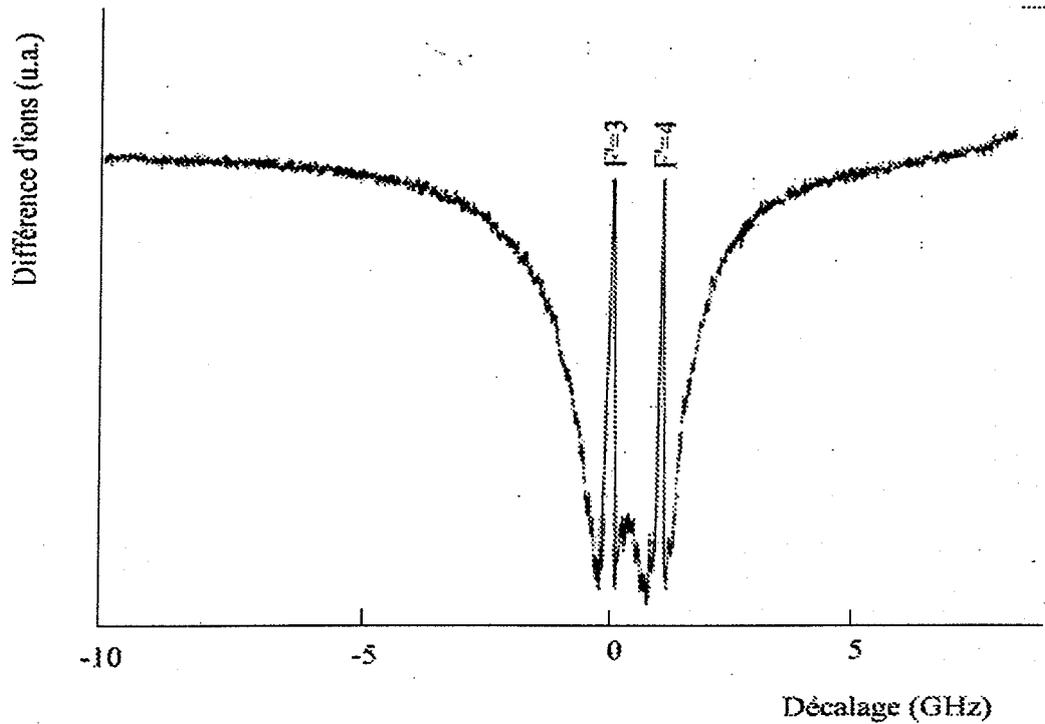


Figure 3-22 : Spectre obtenu sur la raie D_1 par la méthode de comparaison des ions. Les deux raies correspondent aux niveaux $F'=3$ et $F'=4$ du niveau excité. Les décalages sont mesurés à partir de la raie $F'=3$.

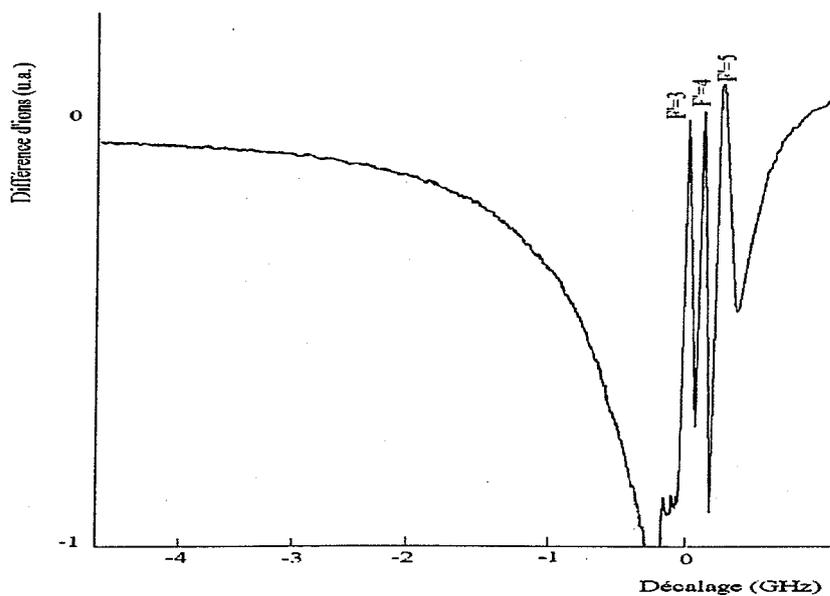


Figure 3-23 : Spectre obtenu sur la raie D_2 par la méthode de comparaison des ions. Les trois raies correspondent aux niveaux $F'=3$, $F'=4$ et $F'=5$ du niveau excité. Les décalages sont mesurés à partir de la raie $F'=3$.

Ces spectres ont une bonne résolution mais visiblement ne donnent rien d'autre que les raies de la structure hyperfine du césium. En augmentant l'intensité du laser, la structure hyperfine tend à se brouiller. Nous avons essayé plusieurs séquences suivant le même principe de l'expérience avec des résultats obtenus équivalents.

Nous avons également fait la moyenne de plusieurs spectres obtenus sans utiliser le moyennage du box-car mais en enregistrant les spectres sur ordinateur. Dans cette expérience, le laser de refroidissement est coupé. Un spectre ainsi obtenu est représenté sur la Figure 3-24. A résonance (0 GHz), on observe un minimum qui est dû au fait que le laser Sa:Ti passant dans le modulateur acousto-optique a toujours un résidu continu, faible mais qui, à résonance, est suffisant pour détruire le piège. C'est la partie du signal décroissant vers le rouge qui nous intéresse.

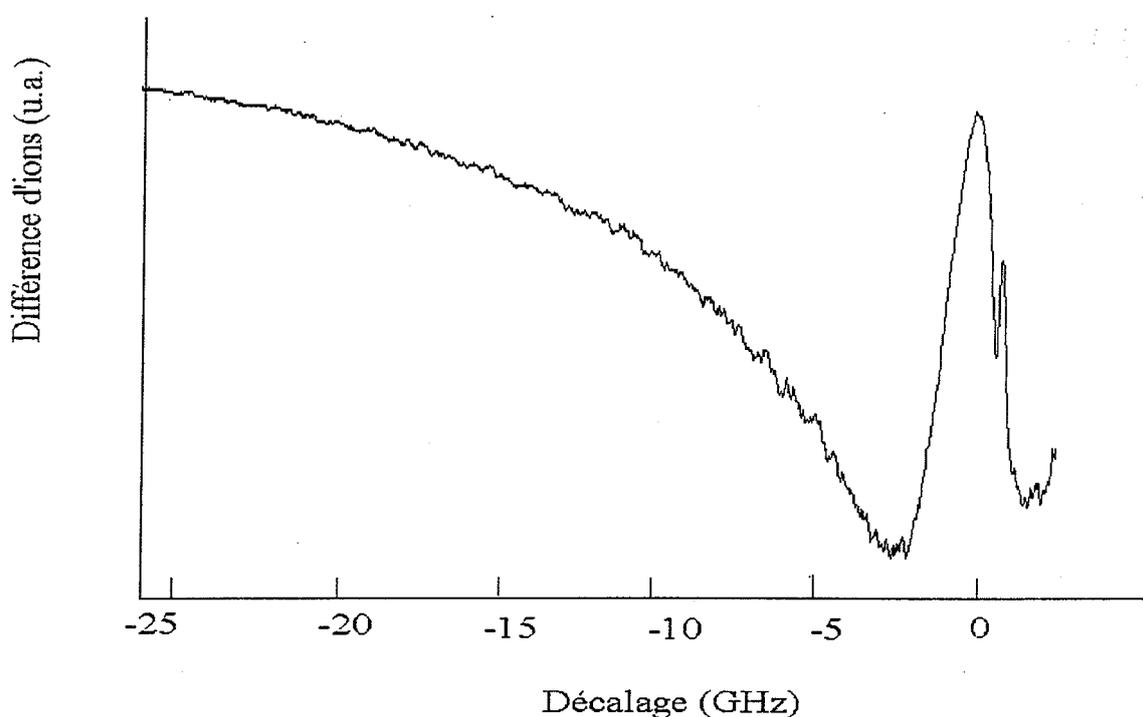


Figure 3-24 : Moyenne de 5 spectres obtenus par la méthode de comparaison des ions. Tous les ions du piège sont comptés dans cette manipulation car le repompeur est rebranché juste avant que l'on allume le laser à Argon.

Nous avons longtemps espéré avoir mis en évidence une structure sur la courbe décroissante vers les longueurs d'onde rouges, mais nous n'avons jamais pu augmenter la modulation des structures que l'on observe et qui semblent reproductibles. A ce point, on ne peut affirmer que l'on a observé un spectre de photoassociation.

3.5.6 Conclusion

Ces expériences préliminaires n'ont pas permis d'obtenir de résultats probants en ce qui concerne la formation de molécules de césium. Comparé aux autres expériences, ce résultat négatif n'est probablement pas surprenant. Nous reviendrons plus loin lorsque nous discuterons l'approche théorique de la photoassociation. Nous avons cependant mis en évidence un spectre au cours de nos expériences. Il s'agit d'un spectre où l'on observe une structure présentant les caractéristiques attendues pour une structure vibrationnelle mais vers le bleu par rapport à la résonance atomique, ce qui est un peu inattendu. Ce résultat va faire l'objet du paragraphe suivant.

3.6 Observation d'une série vibrationnelle

Nous allons maintenant décrire une expérience où l'on observe une structure présentant les caractères d'une série vibrationnelle. Nous utilisons la méthode décrite au paragraphe 3.5.5.. Nous travaillons à une fréquence de répétition de 19,3 kHz et le laser Sa:Ti est appliqué un cycle sur deux pendant une durée de 10 μ s. Pendant cette durée, le laser repompeur est coupé et n'est rallumé que quelques μ s plus tard ($\sim 2\mu$ s). Une impulsion de laser à argon est appliquée entre le moment où le laser Sa:Ti est éteint et celui où le repompeur est rallumé (voir Figure 3-26 pour la séquence temporelle). Le laser refroidisseur est appliqué en continu. En utilisant cette séquence temporelle, nous obtenons le spectre montré sur la Figure 3-26.

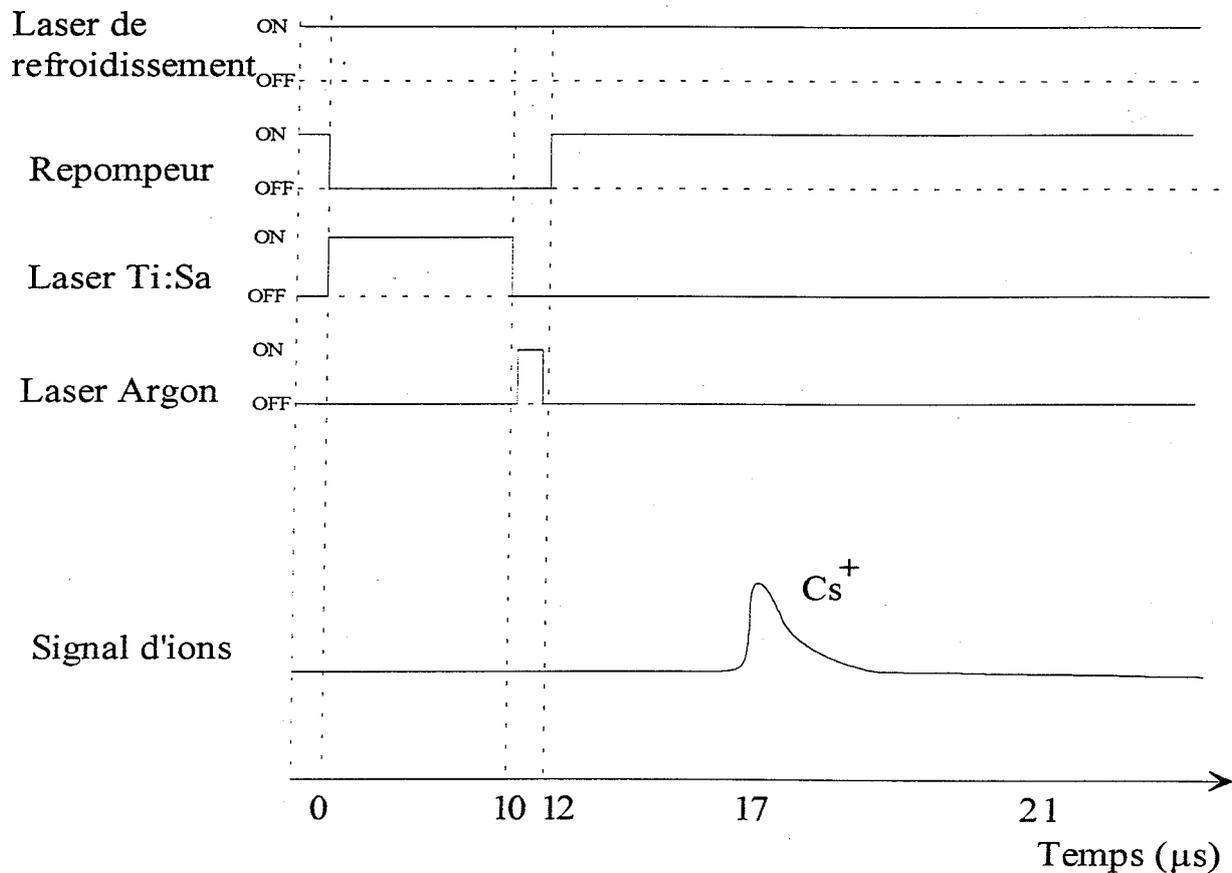


Figure 3-25 : Diagramme temporel du processus expérimental. La fréquence de chaque cycle est d'environ 20 kHz.

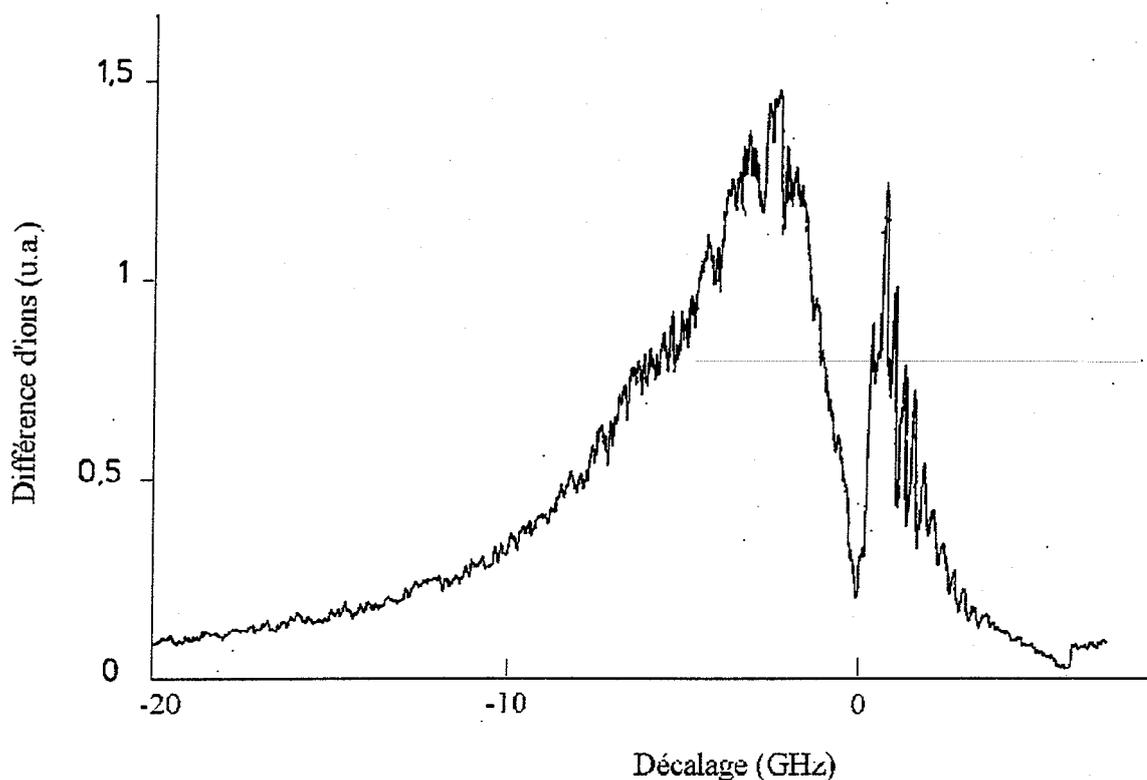


Figure 3-26 : Spectre obtenu sur la raie D_2 en mesurant la différence des ions produits par le laser à Argon après avoir rallumé le laser repompeur. On voit sur le bleu de la transition une série de raies dans une situation inhabituelle.

Ce spectre présente une structure très nette mais dans la région bleue par rapport à la résonance, ce qui est a priori inattendu. En effet, dans notre piège, tous les atomes sont dans le niveau $F=4$. Les phénomènes de photoassociation permettent a priori d'obtenir des molécules excitées sur des niveaux vibrationnels convergeant vers la limite de dissociation $6s_{1/2} (F=4)+6p_{3/2}$. On pourrait penser que cette série converge vers la limite de dissociation $6s_{1/2} (F=3)+6p_{3/2}$ excitée à partir de deux atomes dans le niveau $F=3$. Les atomes étant, par pompage optique du au Sa:Ti, transférés en partie vers ce niveau ont bien été observés dans le cas du sodium par exemple [LET.94]. Dans ce cas, 2 séries sont observées, celle correspondant au niveau atomique hyperfin initial étant beaucoup plus importante. Ce n'est pas le cas ici où l'on observe une seule structure (voir Figure 3-27).

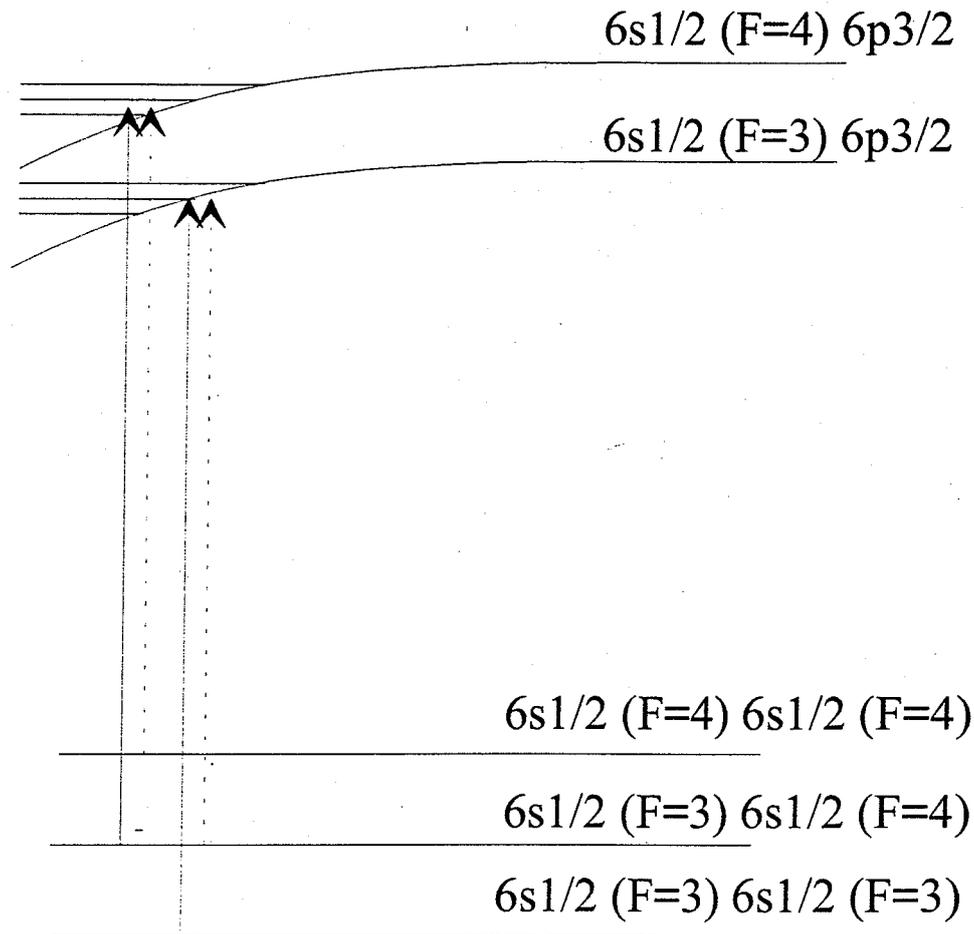


Figure 3-27 : Diagramme des niveaux impliqués dans les diverses transitions.

Comment expliquer cette série de raies vers le bleu ? Nous faisons l'hypothèse qu'il s'agit d'une série de raies vibrationnelles dont on connaît la position par rapport à leur limite de dissociation qui correspond sur le spectre à la position de la raie atomique hyperfine D_2 $6s_{1/2}$ $F=3 \rightarrow 6p_{3/2}$. Une analyse des raies permet d'obtenir le coefficient C_3 . Nous avons obtenu la valeur $C_3 = 40 \pm 20$ u.a.. Cette valeur de C_3 est un peu importante si l'on considère que l'on s'attend à des valeurs comprises entre 10 et 25 [DAL.95]. Néanmoins, on est ici dans une zone où la structure hyperfine joue un rôle extrêmement important et ce résultat n'est peut être pas aussi surprenant que ça. La discussion qui suit ne va pas être tant l'identification précise de cette série que la recherche d'un mécanisme pouvant permettre l'excitation et l'observation d'une telle série. En effet, si l'on admet que c'est un signal de photoassociation, il est extrêmement curieux de ne l'observer qu'à cet endroit. Revenons à l'expérience. Tout se passe dans un temps court de $10 \mu s$. A une telle échelle de temps, les atomes ne se déplacent que d'une distance de l'ordre de quelques microns. Imaginons qu'ils puissent être réchauffés par

émission spontanée, dans un temps de 10 μs , leur vitesse ne pourra pas excéder le mètre par seconde si on s'en tient à des cycles d'absorption-émission spontanée (300 processus d'émission spontanée et une vitesse de recul de 3 mm/s). Les atomes se déplaceront au maximum d'une dizaine de μm . A la fin de l'illumination du piège par le laser Sa:Ti, tous les atomes sont donc restés dans la zone d'interaction. Le laser à argon qui éclaire le piège avant que le repompeur ne soit rallumé donne un signal proportionnel au nombre d'atomes dans l'état fondamental $F=4$ et analyse donc le nombre d'atomes qui ont transité du niveau fondamental $F=4$ vers le niveau $F=3$. Les atomes dans le niveau $F=3$ ne sont pas excités par le laser de refroidissement.

Essayons maintenant de comprendre l'expérience et avancer une explication possible. L'explication la plus simple est que l'on a observé le processus de photoassociation, ce qui est peut être le cas. D'après la Figure 3-27, il s'agit, soit de collisions $F=4-F=3$, soit de collisions $F=3-F=3$. Cependant, nous pouvons faire plusieurs observations. La séquence temporelle de l'expérience n'est pas bien adaptée pour mesurer du trap-loss, on applique le laser Sa:Ti pendant un temps trop court. De plus, on observe en fait des transferts de population de la raie $F=4$ vers $F=3$. Dans ces conditions, il semble étonnant qu'on observe une structure dans une zone si petite. Nous allons faire une autre hypothèse que nous ne pourrions pas complètement étayer ici mais qui peut être une direction pour nous permettre de comprendre ce spectre. Nous supposons tout d'abord que le phénomène de photoassociation pure et simple, que l'on n'a pas observé jusque là, n'a pas lieu. Si on considère le système d'un point de vue atomique seulement, on a une assemblée d'atomes dans le niveau $F=4$. On branche le laser Sa:Ti. Par pompage optique, une partie des atomes est transférée vers le niveau $F=3$. Le signal d'ions diminue, on obtient un signal positif sur la différence d'ions normalisée (comme sur la Figure 3-26). Si maintenant on se place d'un point de vue moléculaire, on passe du continuum d'états sur la limite de dissociation $6s_{1/2}(F=4)-6s_{1/2}(F=4)$ au continuum d'états sur la limite de dissociation $6s_{1/2}(F=4)-6s_{1/2}(F=3)$ par pompage optique via le continuum d'états $6s_{1/2}(F=4)-6p_{3/2}$. De même, on peut atteindre les états du continuum $6s_{1/2}(F=3)-6s_{1/2}(F=3)$ à partir du continuum de $6s_{1/2}(F=4)-6s_{1/2}(F=3)$ via l'état $6s_{1/2}(F=3)-6p_{3/2}$. Dans ce dernier cas, dans les états du continuum au delà de la limite de dissociation $6s_{1/2}(F=3)-6p_{3/2}$ vont se trouver plongés des états vibrationnels liés correspondant à la limite $6s_{1/2}(F=4)-6p_{3/2}$. On peut imaginer que la structure hyperfine mélange très fortement ces états vibrationnels avec le continuum d'états considéré, provoquant une profonde modification du pompage optique. On aurait alors, via l'excitation du continuum, la mise en évidence d'un mélange de configurations très semblable à ce qu'on peut observer dans

des états autoionisants atomiques. Nous allons essayer d'étayer cette hypothèse de manière un peu plus quantitative.

3.6.1 Calcul de la proportion d'atomes dans chaque sous niveau du fondamental.

Plaçons nous d'un point de vue atomique. Calculons dans le cas de notre expérience la proportion d'atomes qui se trouve dans l'état $F=3$ au bout d'un temps $\Delta t=10\mu s$ avec une fréquence de Rabi pour le laser de photoassociation d'environ $\Omega_0=1.5GHz$.

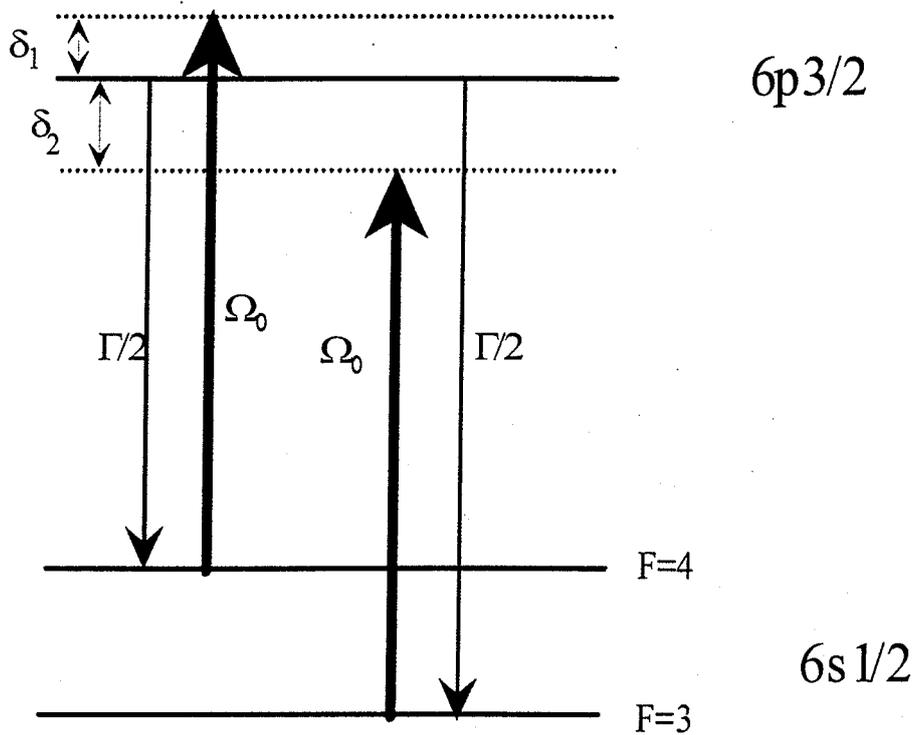


Figure 3-28 : Schéma du système à trois niveaux. Deux traits sont représentés qui symbolisent une seule impulsion laser de pulsation ω . La largeur naturelle du niveau excité est Γ , la largeur de chaque émission spontanée vers chacun des sous niveaux fondamentaux est donc $\Gamma/2$.

Il nous faut considérer un système à trois niveaux. On prend ainsi en compte le niveau $F=3$ que nous appellerons niveau 2 et le niveau $F=4$ qui sera appelé niveau 1. L'état $6p3/2$ sera appelé niveau e. La Figure 3-28 représente le schéma des différents niveaux.

Les deux décalages sont donnés par :

$$\begin{aligned}\delta_1 &= \omega - (\omega_e - \omega_1) \\ \delta_2 &= \omega - (\omega_e - \omega_2)\end{aligned}\tag{3-1}$$

Nous allons résoudre ce système en écrivant les équations de Bloch optiques [COH.88].

L'équation d'évolution de la matrice densité du système s'écrit :

$$i\hbar \dot{\sigma} = [H_A - \vec{d} \cdot \vec{E}_0 \cos \omega t, \sigma]\tag{3-2}$$

Explicitons cette équation dans la base $\{|1\rangle, |2\rangle, |e\rangle\}$ et ajoutons les termes d'amortissement décrivant l'effet de l'émission spontanée. Nous obtenons :

$$\begin{aligned}\dot{\sigma}_{11} &= -i\Omega_0 \cos \omega_1 t (\sigma_{e1} - \sigma_{1e}) + \frac{\Gamma}{2} \sigma_{ee} \\ \dot{\sigma}_{22} &= -i\Omega_0 \cos \omega_2 t (\sigma_{e2} - \sigma_{2e}) + \frac{\Gamma}{2} \sigma_{ee} \\ \dot{\sigma}_{ee} &= +i\Omega_0 \cos \omega_1 t (\sigma_{e1} - \sigma_{1e} + \sigma_{e2} - \sigma_{2e}) - \Gamma \sigma_{ee} \\ \dot{\sigma}_{12} &= i(\omega_2 - \omega_1) \sigma_{12} - i\Omega_0 \cos \omega_1 t (\sigma_{e2} - \sigma_{1e}) \\ \dot{\sigma}_{21} &= i(\omega_1 - \omega_2) \sigma_{21} - i\Omega_0 \cos \omega_1 t (\sigma_{e1} - \sigma_{2e}) \\ \dot{\sigma}_{1e} &= i(\omega_e - \omega_1) \sigma_{1e} - i\Omega_0 \cos \omega_1 t (\sigma_{ee} - \sigma_{11}) - \frac{\Gamma}{2} \sigma_{1e} + i\frac{\Omega_0}{2} \sigma_{21} \\ \dot{\sigma}_{e1} &= i(\omega_1 - \omega_e) \sigma_{e1} + i\Omega_0 \cos \omega_1 t (\sigma_{ee} - \sigma_{11}) - \frac{\Gamma}{2} \sigma_{e1} - i\frac{\Omega_0}{2} \sigma_{21} \\ \dot{\sigma}_{2e} &= i(\omega_e - \omega_2) \sigma_{2e} - i\Omega_0 \cos \omega_2 t (\sigma_{ee} - \sigma_{22}) - \frac{\Gamma}{2} \sigma_{2e} + i\frac{\Omega_0}{2} \sigma_{12} \\ \dot{\sigma}_{e2} &= i(\omega_2 - \omega_e) \sigma_{e2} + i\Omega_0 \cos \omega_2 t (\sigma_{ee} - \sigma_{22}) - \frac{\Gamma}{2} \sigma_{e2} - i\frac{\Omega_0}{2} \sigma_{12}\end{aligned}\tag{3-3}$$

Nous avons supposé que :

$$\hbar\Omega_0 = -\vec{d}_{ab} \cdot \vec{E}_0 \quad (3-4)$$

où $\vec{d}_{ab} = \langle a|\vec{d}|b\rangle = \langle b|\vec{d}|a\rangle$ est l'élément de matrice de \vec{d} supposé réel. Ω_0 est la fréquence de Rabi. Nous supposons que la fréquence de Rabi est bien inférieure à la fréquence des transitions atomiques (Ceci est nécessaire pour pouvoir affirmer que l'émission spontanée n'est pas modifiée par la présence du rayonnement extérieur).

Forme indépendante du temps des équations de Bloch optiques

Il est possible de faire disparaître toute dépendance temporelle dans les coefficients des équations au moyen du changement de variables :

$$\begin{aligned} \hat{\sigma}_{11} &= \sigma_{11} \\ \hat{\sigma}_{22} &= \sigma_{22} \\ \hat{\sigma}_{ee} &= \sigma_{ee} \\ \hat{\sigma}_{1e} &= \sigma_{1e} e^{-i\omega_1 t} \\ \hat{\sigma}_{2e} &= \sigma_{2e} e^{-i\omega_2 t} \\ \hat{\sigma}_{e1} &= \sigma_{e1} e^{i\omega_1 t} \\ \hat{\sigma}_{e2} &= \sigma_{e2} e^{i\omega_2 t} \\ \hat{\sigma}_{12} &= \sigma_{12} \\ \hat{\sigma}_{21} &= \sigma_{21} \end{aligned} \quad (3-5)$$

qui conduit aux équations suivantes, si on fait l'approximation du champ tournant (élimination des termes antirésonnants) :

$$\begin{aligned}
 \frac{d}{dt} \hat{\sigma}_{11} &= -i \frac{\Omega_0}{2} (\hat{\sigma}_{e1} - \hat{\sigma}_{1e}) + \frac{\Gamma}{2} \hat{\sigma}_{ee} \\
 \frac{d}{dt} \hat{\sigma}_{22} &= -i \frac{\Omega_0}{2} (\hat{\sigma}_{e2} - \hat{\sigma}_{2e}) + \frac{\Gamma}{2} \hat{\sigma}_{ee} \\
 \frac{d}{dt} \hat{\sigma}_{ee} &= +i \frac{\Omega_0}{2} (\hat{\sigma}_{e1} - \hat{\sigma}_{1e} + \hat{\sigma}_{e2} - \hat{\sigma}_{2e}) - \Gamma \hat{\sigma}_{ee} \\
 \frac{d}{dt} \hat{\sigma}_{12} &= i(\delta_2 - \delta_1) \hat{\sigma}_{12} - i \frac{\Omega_0}{2} (\hat{\sigma}_{e2} - \hat{\sigma}_{1e}) \\
 \frac{d}{dt} \hat{\sigma}_{21} &= i(\delta_1 - \delta_2) \hat{\sigma}_{21} - i \frac{\Omega_0}{2} (\hat{\sigma}_{e1} - \hat{\sigma}_{2e}) \\
 \frac{d}{dt} \hat{\sigma}_{1e} &= -i \delta_1 \hat{\sigma}_{1e} - i \frac{\Omega_0}{2} (\hat{\sigma}_{ee} - \hat{\sigma}_{11}) - \frac{\Gamma}{2} \hat{\sigma}_{1e} + i \frac{\Omega_0}{2} \sigma_{12} \\
 \frac{d}{dt} \hat{\sigma}_{e1} &= i \delta_1 \hat{\sigma}_{e1} + i \frac{\Omega_0}{2} (\hat{\sigma}_{ee} - \hat{\sigma}_{11}) - \frac{\Gamma}{2} \hat{\sigma}_{e1} - i \frac{\Omega_0}{2} \sigma_{21} \\
 \frac{d}{dt} \hat{\sigma}_{2e} &= -i \delta_2 \hat{\sigma}_{2e} - i \frac{\Omega_0}{2} (\hat{\sigma}_{ee} - \hat{\sigma}_{22}) - \frac{\Gamma}{2} \hat{\sigma}_{2e} + i \frac{\Omega_0}{2} \sigma_{21} \\
 \frac{d}{dt} \hat{\sigma}_{e2} &= i \delta_2 \hat{\sigma}_{e2} + i \frac{\Omega_0}{2} (\hat{\sigma}_{ee} - \hat{\sigma}_{22}) - \frac{\Gamma}{2} \hat{\sigma}_{e2} - i \frac{\Omega_0}{2} \sigma_{12}
 \end{aligned}$$

(3-6)

Introduisons enfin les variables suivantes :

$$\begin{aligned}
 u_1 &= \frac{1}{2} (\hat{\sigma}_{1e} + \hat{\sigma}_{e1}) & v_1 &= \frac{1}{2i} (\hat{\sigma}_{1e} - \hat{\sigma}_{e1}) & w_1 &= \frac{1}{2} (\hat{\sigma}_{ee} - \hat{\sigma}_{11}) \\
 u_2 &= \frac{1}{2} (\hat{\sigma}_{2e} + \hat{\sigma}_{e2}) & v_2 &= \frac{1}{2i} (\hat{\sigma}_{2e} - \hat{\sigma}_{e2}) & w_2 &= \frac{1}{2} (\hat{\sigma}_{ee} - \hat{\sigma}_{22}) \\
 u &= \frac{1}{2} (\hat{\sigma}_{12} + \hat{\sigma}_{21}) & v &= \frac{1}{2i} (\hat{\sigma}_{12} - \hat{\sigma}_{21}) & w &= \frac{1}{2} (\hat{\sigma}_{11} - \hat{\sigma}_{22})
 \end{aligned}$$

(3-7)

Nous obtenons alors le système d'équations différentielles

$$g_{ee} = \frac{2(w_1 + w_2) + 1}{3}$$

$$g_{ee} = \frac{1}{3} [$$

$$g_{22} = \frac{2w_1 - 4w_2 + 1}{3}$$

$$g_{11} = \frac{2w_2 - 4w_1 + 1}{3}$$

$$2(w_1 + w_2) + 1 = g_{ee}$$

$$= \frac{2}{3} g_{ee} - \frac{1}{3}$$

$$w_1 + w_2 = g_{ee} - \frac{1}{2}(g_{11} + g_{22})$$

```

                IF (L.GT.J) THEN
                  DO 14 K=J+1,L
                    G=G+A(K,J)*A(I,K)
14              CONTINUE
                ENDIF
                E(J)=G/H
                F=F+E(J)*A(I,J)
15              CONTINUE
                HH=F/(H+H)
                DO 17 J=1,L
                  F=A(I,J)
                  G=E(J)-HH*F
                  E(J)=G
                  DO 16 K=1,J
                    A(J,K)=A(J,K)-F*E(K)-G*A(I,K)
16              CONTINUE
17              CONTINUE
                ENDIF
                ELSE
                  E(I)=A(I,L)
                ENDIF
                D(I)=H
18              CONTINUE
            ENDIF
            E(1)=0.
            DO 23 I=1,N
              D(I)=A(I,I)
23            CONTINUE
            RETURN
            END

```

SUBROUTINE TQLI(D,E,N,NP)

```

DIMENSION D(NP),E(NP)
IF (N.GT.1) THEN
  DO 11 I=2,N
    E(I-1)=E(I)
11  CONTINUE
  E(N)=0.
  DO 15 L=1,N
    ITER=0
    DO 12 M=L,N-1
      DD=ABS(D(M))+ABS(D(M+1))
      IF (ABS(E(M))+DD.EQ.DD) GO TO 2
12    CONTINUE
    M=N
    IF (M.NE.L) THEN
      IF (ITER.EQ.30) PAUSE 'too many iterations'
      ITER=ITER+1
      write(*,*) ' ITER+',ITER
      G=(D(L+1)-D(L))/(2.*E(L))
      R=SQRT(G**2+1.)
      G=D(M)-D(L)+E(L)/(G+SIGN(R,G))
      S=1.
      C=1.
      P=0.
      DO 14 I=M-1,L,-1
        F=S*E(I)
        B=C*E(I)
        IF (ABS(F).GE.ABS(G)) THEN
          C=G/F
          R=SQRT(C**2+1.)
          E(I+1)=F*R
          S=1./R
          C=C*S

```

Chapitre 3 : La photoassociation

$$\begin{aligned}
 \dot{u}_1 &= \delta_1 v_1 - \frac{\Gamma}{2} u_1 - \frac{\Omega_0}{2} v \\
 \dot{v}_1 &= -\delta_1 u_1 - \Omega_0 w_1 - \frac{\Gamma}{2} v_1 + \frac{\Omega_0}{2} u \\
 \dot{w}_1 &= \Omega_0 v_1 + \frac{\Omega_0}{2} v_2 - \frac{1}{4} \Gamma - \frac{1}{2} \Gamma (w_1 + w_2) \\
 \dot{u}_2 &= \delta_2 v_2 - \frac{\Gamma}{2} u_2 + \frac{\Omega_0}{2} v \\
 \dot{v}_2 &= -\delta_2 u_2 - \Omega_0 w_2 - \frac{\Gamma}{2} v_2 + \frac{\Omega_0}{2} u \\
 \dot{w}_2 &= \Omega_0 v_2 + \frac{\Omega_0}{2} v_1 - \frac{1}{4} \Gamma - \frac{1}{2} \Gamma (w_1 + w_2) \\
 \dot{u} &= (\delta_1 - \delta_2) v - \frac{\Omega_0}{2} (v_1 + v_2) \\
 \dot{v} &= -(\delta_1 - \delta_2) u + \frac{\Omega_0}{2} (u_1 - u_2) \\
 \dot{w} &= \frac{\Omega_0}{2} (-v_1 + v_2)
 \end{aligned}$$

(3-8)

La résolution de ces équations, pour un état stationnaire dans lequel les dérivées sont nulles, est relativement simple et donne, après quelques manipulations sans difficulté de principe, les populations des différents états:

$$\begin{aligned}
 \sigma_{11} &= \frac{(16\delta_1^2 - 4\delta_2^2)(\delta_1 - \delta_2)^2 + 3(\delta_1 - \delta_2)^2 \Gamma^2 - 5(\delta_1^2 - \delta_2^2) \Omega_0^2 + 3\Omega_0^4}{6((\delta_1 - \delta_2)^4 + (\delta_1^2 - \delta_2^2)^2 + (\delta_1 - \delta_2)^2 (\Gamma^2 + \Omega_0^2) + \Omega_0^4)} \\
 \sigma_{22} &= \frac{(16\delta_2^2 - 4\delta_1^2)(\delta_1 - \delta_2)^2 + 3(\delta_1 - \delta_2)^2 \Gamma^2 - 5(\delta_2^2 - \delta_1^2) \Omega_0^2 + 3\Omega_0^4}{6((\delta_1 - \delta_2)^4 + (\delta_1^2 - \delta_2^2)^2 + (\delta_1 - \delta_2)^2 (\Gamma^2 + \Omega_0^2) + \Omega_0^4)} \\
 \sigma_{ee} &= \frac{4(\delta_1 - \delta_2)^2 \Omega_0^2}{6((\delta_1 - \delta_2)^4 + (\delta_1^2 - \delta_2^2)^2 + (\delta_1 - \delta_2)^2 (\Gamma^2 + \Omega_0^2) + \Omega_0^4)} = \frac{\Omega_0^2}{(\delta_1 - \delta_2)^2 + (\delta_1 + \delta_2)^2 + (\Gamma^2 + \Omega_0^2) + \frac{\Omega_0^2}{(\delta_1 - \delta_2)^2}}
 \end{aligned}$$

(3-9)

On vérifie aisément que la somme de ces trois termes donne bien l'unité, ce qui assure la normalisation des probabilités.

La Figure 3-29 donne une représentation graphique de ces populations dans le cas du césium ($F=4$ pour l'état 2 et $F=3$ pour l'état 1).

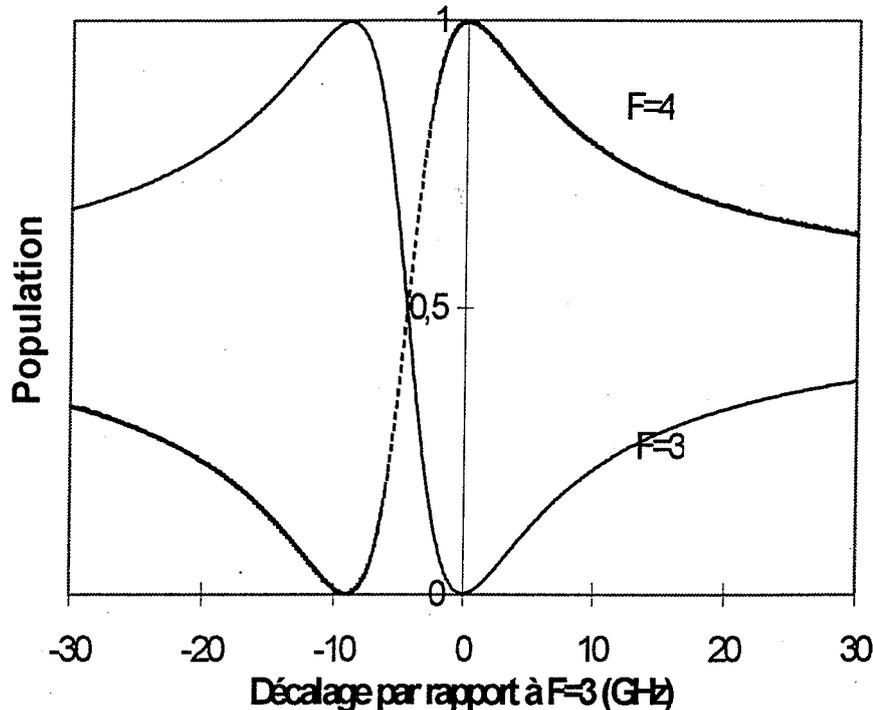


Figure 3-29 : Représentation des populations des niveaux $F=3$ et $F=4$ du césium à l'état stationnaire pour un laser de fréquence de Rabi $\Omega_0 = 1$ GHz en fonction du décalage du laser. La position de la raie de résonance $F=3$ est 0 et celle de la raie $F=4$ est -9 GHz. On vérifie que la somme est à peu près 1 car la population de l'état excité est quasiment nulle.

Contentons nous de ce traitement. Il est clair que pour les courbes situées de part et d'autre des résonances, l'équilibre n'est pas atteint dès que l'on s'éloigne d'une largeur correspondant à la fréquence de Rabi. Faisons que ce traitement est valable dans la zone entre les deux résonances. Pour un décalage vers le bleu par rapport à la résonance $6s_{1/2} F=4 \rightarrow 6p_{3/2}$ supérieur à la fréquence de Rabi, nous avons un mélange des atomes dans l'état $F=3$ et dans l'état $F=4$. La courbe expérimentale est censée donner un signal proportionnel au nombre d'atomes dans $F=3$. Elle décroît sur le bleu de la raie de résonance $6s_{1/2} F=4$ en présentant des pics. Ces pics peuvent correspondre à des niveaux vibrationnels. Essayons de voir comment ils peuvent apparaître dans notre expérience.

3.6.2 Couplage d'un l'état discret vibrationnel avec le continuum des états du piège

Pour une fréquence laser comprise entre les deux fréquences de résonance atomiques $6s_{1/2}(F=3) \rightarrow 6p_{3/2}$ et $6s_{1/2}(F=4) \rightarrow 6p_{3/2}$, il existe une proportion importante d'atomes transportés dans l'état $F=3$. De ce fait, des collisions pour des paires d'atomes $6s_{1/2}(F=3)$ - $6s_{1/2}(F=4)$ sont possibles. Plaçons nous d'un point de vue moléculaire. Nous avons un couplage entre les différents continuum présentés que la Figure 3-30, ce qui entraîne des transferts de populations d'un continuum à l'autre. Initialement, une bande d'énergie de l'ordre de $k_B T$ d'états du continuum $6s_{1/2}(F=4)+6s_{1/2}(F=4)$ est peuplée. Nous supposons que l'excitation d'un continuum à un autre se fait à énergie fixe. En fait, nous passons d'un état $6s_{1/2}F-6s_{1/2}F' \mathcal{E}, J$ à un état $6s_{1/2}(F \text{ ou } F')-6p_{3/2} E, J$ avec $\mathcal{E}=E$. L'émission spontanée peut introduire un certain réchauffement. Néanmoins, la bande d'énergie des états du continuum qui sont finalement peuplés reste petite, on peut estimer qu'elle reste inférieure au GHz. Nous avons jusque là considéré la présence de niveaux vibrationnels qui convergeraient vers les limites de dissociation $6s_{1/2}(F=3 \text{ ou } 4)-6p_{3/2}$. Nous supposons que ces niveaux ne sont pas excités à partir des niveaux des continuum fondamentaux. On peut oublier ceux de la série convergeant vers la limite de dissociation $6s_{1/2}(F=3)-6p_{3/2}$. En revanche, ceux convergeant vers le limite de dissociation $6s_{1/2}(F=4)-6p_{3/2}$ sont plongés dans le continuum $6s_{1/2}(F=3)-6p_{3/2}$. La question qui se pose est : peuvent-ils modifier le pompage optique et, en particulier, accroître le transfert de population atomique du niveau fondamental hyperfin $F=4$ vers le niveau $F=3$? Le modèle que nous allons présenter est très préliminaire. Nous ne nous poserons pas la question de l'origine précise du couplage considéré, nous supposerons simplement qu'il existe. Nous considérons simplement un niveau lié plongé dans un continuum d'états (voir Figure 3-31). Nous considérons en fait, dans la modélisation que nous utilisons, un continuum discrétisé. Cela est équivalent à un véritable continuum et simplifie les calculs.

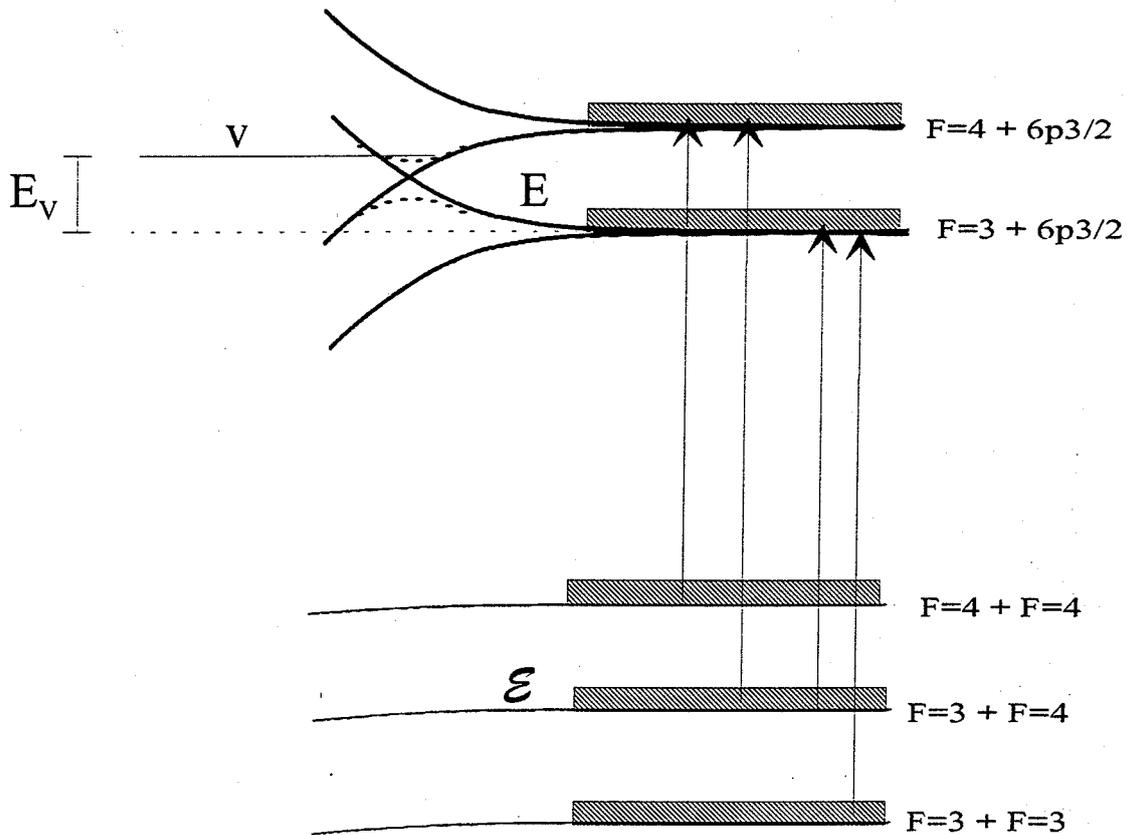


Figure 3-30 : Représentation schématique des niveaux mis en jeu lors d'une transition sur le bleu de la résonance. La transition se fait entre les continuum des états $F=3+F=4$ et $F=3+6p_{3/2}$. Le pompage optique est modifié par le couplage du continuum $F=3+6p_{3/2}$ avec le niveau moléculaire vibrationnel $F=4+6p_{3/2}$ (v,J).

Nous traitons le continuum en le discrétisant en niveaux rapprochés d'une quantité δ , numérotés par n et d'énergie $E = n\delta$ (voir Figure 3-31). La méthode est identique à celle utilisée par Fano [FAN.61] mais du fait de la discrétisation, présente des calculs plus simples. Les résultats obtenus sont les mêmes dans le cadre où nous nous plaçons.

Les hypothèses que nous formulons sont les suivantes :

- Le continuum $|\Psi_n\rangle = |6s_{1/2}(F=3)-6p_{3/2} E, J\rangle$ est excité à partir du continuum $|\chi_{n'}\rangle = |6s_{1/2}F=3-6s_{1/2}F=4 \varepsilon, J\rangle$ tel que $\langle \Psi_n | T | \chi_{n'} \rangle = \langle \Psi_n | T | \chi_{n'} \rangle \delta(n-n') = W \delta(n-n')$ où T est l'opérateur de transition du' à l'excitation par le champ laser.
- A partir du continuum de $|\chi_{n'}\rangle$, on n'excite pas le niveau vibrationnel discret $|\Psi\rangle$. On écrit ceci $\langle \Psi | T | \chi_{n'} \rangle = 0$.

Chapitre 3 : La photoassociation

- On suppose que l'énergie E du niveau vibrationnel prise à partir de $E=0$ pour le continuum excité est grande par rapport à la bande d'énergie des niveaux peuplés du continuum fondamental.
- Soit V le couplage entre $|\Psi\rangle$ et $|\Psi_n\rangle$. Ceci s'écrit : $\langle \Psi | V | \Psi_n \rangle = V$. Répétons que nous ne discutons pas de la nature de ce couplage.

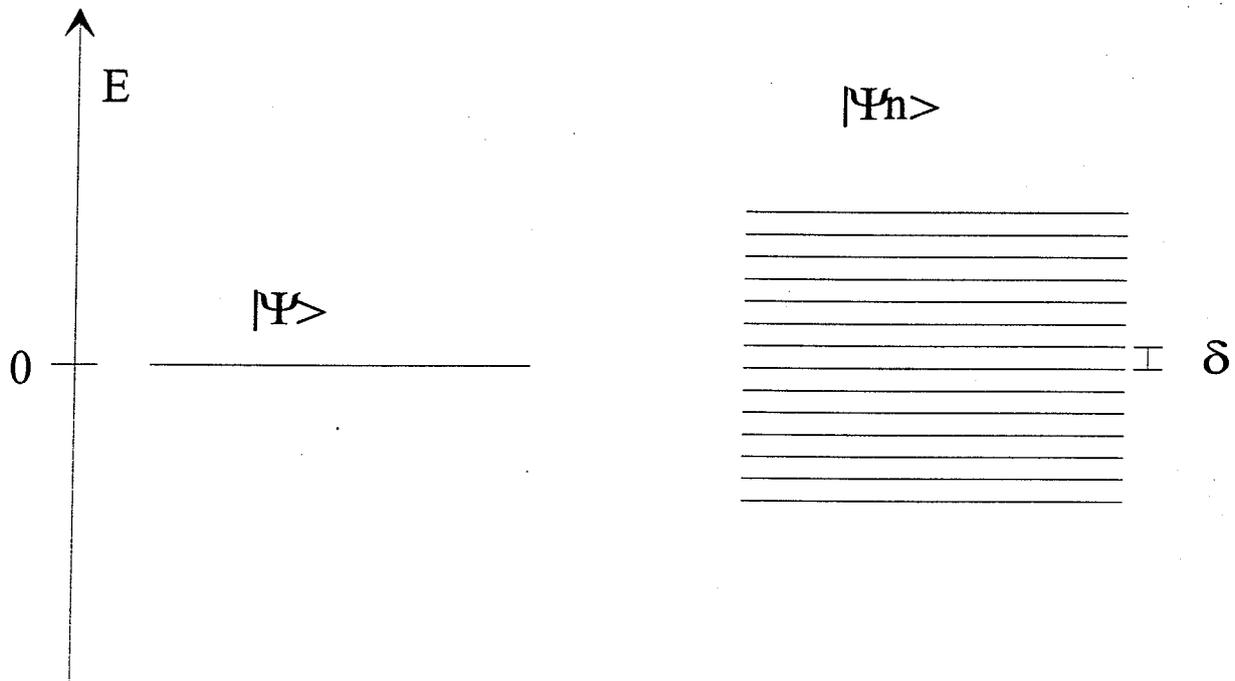


Figure 3-31 : Schéma du couplage d'un état discret à un continuum. Les états du continuum sont espacés d'une quantité δ .

Calculons les états propres de l'hamiltonien $H=H_0+V$ du système couplé. Ils seront de la forme :

$$|\phi_v\rangle = a_v |\psi\rangle + \sum_n b_n |\psi_n\rangle \quad (3-12)$$

La projection de l'équation de Schrödinger sur $|\psi\rangle$ donne :

$$E_v a_v = \sum_n b_n V. \quad (3-13)$$

Chapitre 3 : La photoassociation

et la projection sur $|\psi_n\rangle$ donne :

$$a_\nu V + b_m m \delta = E_\nu b_m \quad (3-14)$$

L'inversion de (3-14) donne¹ :

$$b_m = \frac{a_\nu V}{E_\nu - m \delta} \quad (3-15)$$

et en sommant sur m :

$$\sum_m b_m = \sum_m \frac{a_\nu V}{E_\nu - m \delta} \quad (3-16)$$

Or on sait que :

$$\sum_{p=-\infty}^{\infty} \frac{1}{a + bp} = \frac{\pi}{b} \frac{1}{\tan \frac{\pi a}{b}} \quad (3-17)$$

donc, on peut réécrire (3-16) en utilisant (3-17) et (3-13) comme :

$$E_\nu = \frac{\pi V^2}{\delta} \cot \frac{\pi E_\nu}{\delta} \quad (3-18)$$

Calculons maintenant la norme de $|\phi_\nu\rangle$, ce qui nous permettra de calculer le coefficient a_ν et donc $b_{m\nu}$.

On sait d'après (3-12) et (3-15) que :

$$|\phi_\nu\rangle = a_\nu |\psi\rangle + \sum_n \frac{a_\nu V}{E_\nu - n \delta} |\psi_n\rangle \quad (3-19)$$

¹ Le traitement donné ici n'est pas complètement rigoureux. Le formalisme développé par Fano [FAN.61] donnerait après inversion un second terme proportionnel à une fonction de Dirac $\delta(E_\nu - E)$ qui correspond au cas où on se trouve à résonance $6s_{1/2} F=3 \rightarrow 6p_{3/2}$. Ce terme ne modifie pas les calculs quand on se place autour de la résonance avec la raie vibrationnelle, nous n'en tiendrons donc pas compte ici pour des raisons de clarté.

La norme de $|\phi_\nu\rangle$ s'écrit donc :

$$\langle \phi_\nu | \phi_\nu \rangle = a_\nu^2 + a_\nu^2 \sum \frac{V^2}{(E_\nu - n\delta)^2} \quad (3-20)$$

On sait que :

$$\sum_{p=-\infty}^{\infty} \frac{1}{(a+bp)^2} = \frac{\pi^2}{b^2} \frac{1}{\sin^2 \frac{\pi a}{b}} \quad (3-21)$$

On peut donc écrire en combinant (3-20) et (3-21) que :

$$\langle \phi_\nu | \phi_\nu \rangle = a_\nu^2 + a_\nu^2 \frac{\pi^2}{\delta^2} V^2 \frac{1}{\sin^2 \frac{\pi E_\nu}{\delta}} \quad (3-22)$$

Cette norme doit être égale à 1, il s'ensuit que :

$$a_\nu = \frac{1}{\sqrt{1 + \frac{\pi^2}{\delta^2} V^2 \frac{1}{\sin^2 \frac{\pi E_\nu}{\delta}}}} \quad (3-23)$$

et après transformation en utilisant (3-18) :

$$a_\nu = \frac{1}{\sqrt{1 + \frac{\pi^2}{\delta^2} V^2 + \frac{E_\nu^2}{V^2}}} \quad (3-24)$$

Ce qui nous donne les états propres de l'hamiltonien du système :

$$|\phi_\nu\rangle = \frac{1}{\sqrt{1 + \frac{\pi^2 V^2}{\delta^2} + \frac{E_\nu^2}{V^2}}} \left(|\psi\rangle + \sum_n \frac{V}{E_\nu - n\delta} |\psi_n\rangle \right) \quad (3-25)$$

Calculons la probabilité de transition entre l'état initial $|\chi_{n'}\rangle$ et les états $|\psi_\nu\rangle$. L'amplitude de transition s'écrit :

Chapitre 3 : La photoassociation

$$\langle \chi_{n'} | T | \phi_v \rangle = \frac{W}{\sqrt{1 + \frac{\pi^2 V^2}{\delta^2} + \frac{E_v^2}{V^2}}} \frac{V}{E_v - n' \delta}$$

(3-26)

Donc la probabilité de transition donnée par le module au carré est :

$$p(\chi_{n'} \rightarrow \psi_v) = |\langle \chi_{n'} | W | \phi_v \rangle|^2 = \frac{W^2}{1 + \frac{\pi^2 V^2}{\delta^2} + \frac{E_v^2}{V^2}} \left(\frac{V}{E_v - n' \delta} \right)^2$$

(3-27)

On constate que la probabilité de transition est augmentée à cause du couplage avec l'état vibrationnel. Voir pour cela la représentation de la Figure 3-32.

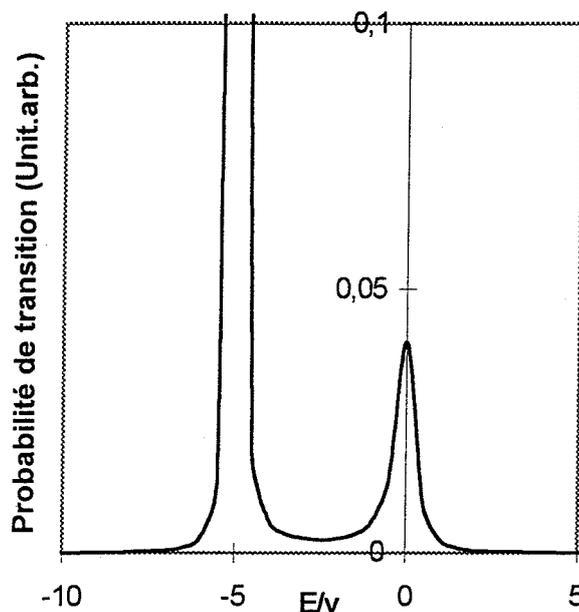


Figure 3-32 : Probabilité de transition d'un état discret du fondamental vers le continuum de l'état excité dont les états sont couplés à un des états vibrationnels (paramètres : $\pi v/\delta=0.1$, $n\delta/v=5$). Le pic autour de -5 correspond à la résonance entre les deux états du continuum. Le pic qui nous intéresse se trouve autour de 0 et correspond à la résonance avec un état vibrationnel.

Chaque état vibrationnel est donc à l'origine d'une augmentation de la probabilité, ce qui provoque un pic sur le spectre de formation d'ions. On peut ainsi comprendre la formation

Chapitre 3 : La photoassociation

du spectre sur le bleu de la résonance. On pourrait aller plus loin dans ce modèle. Ce ne sera pas l'objet de ce travail. Le problème est le traitement de la structure hyperfine dans la zone où l'on observe le spectre. Ce que nous avons donné ici est une des explications possibles pour l'apparition de résonances conduisant à une modification du pompage optique. Seul un traitement compliqué prenant en compte la structure hyperfine pourra nous donner une explication complète. Nous allons maintenant traiter le problème théorique de la photoassociation pour essayer de comprendre les différences entre les expériences réalisées avec les différents alcalins.

3.7 Aspects théoriques de la photoassociation

Nous allons dans ce chapitre procéder au calcul du taux de photoassociation en considérant plus particulièrement le cas d'atomes alcalins ultra-froids. Ce calcul sera fait suivant une approche perturbative. Nous donnerons en fin de traitement un tableau récapitulatif des taux de photoassociation des différents alcalins et discuterons du phénomène de réchauffement dû à la photoassociation qui est à l'origine des résultats du trap-loss (ou perte d'atomes dans le piège).

Considérons l'équation de photoassociation:

$$A(ns) + A(np) + \hbar \omega_L \rightarrow A_2 \left(\Omega_{g,u} \left(ns, np, {}^2 P_{1/2, 3/2} \right); \nu, J \right)$$

Nous avons à traiter la transition entre un continuum d'états (paires d'atomes au dessus du seuil de dissociation ns-ns de la molécule fondamentale) et un état lié (état rovibrationnel excité en dessous du seuil de dissociation ns-np). Nous traitons le problème de façon perturbative. Initialement, les atomes sont à l'équilibre thermique dans une boîte de volume V ou dans un piège décrit par un oscillateur harmonique de pulsation Ω .

3.7.1 Hamiltonien du système

Considérons une assemblée de N atomes interagissant entre eux par le biais d'interactions à deux corps seulement. L'hamiltonien du système est donnée dans le cadre de l'approximation de Born-Oppenheimer par :

$$H_0 = \sum_{i=1}^N \left(\frac{p_i^2}{2m} H_{e,i} + \sum_{j>i} V_e \left(\left| \vec{R}_i - \vec{R}_j \right| \right) \right) \quad (3-28)$$

$p_i^2/2m$ est l'énergie cinétique de l'atome i , $H_{e,i}$ est l'hamiltonien décrivant la partie électronique de l'atome i et V_e est le potentiel d'interaction entre les deux atomes. Considérons maintenant que ces N atomes sont irradiés par un champ électromagnétique laser. L'hamiltonien d'interaction est donnée, dans le cadre de l'approximation dipolaire, par :

$$W(t) = - \sum_{i=1}^N \left(\vec{E}(t) \cdot \vec{D}_i \right) \quad (3-29)$$

où E est le champ électrique et D_i le dipôle associé à l'atome i . Nous supposons que la distance interatomique est bien inférieure à la longueur d'onde du laser et que le champ laser est polarisé linéairement avec un vecteur unitaire ε :

$$W(t) = - \sum_{i=1}^N \left(\vec{\varepsilon} \cdot \vec{D}_i \right) E_0 \cos(\omega t - kZ_i) \quad (3-30)$$

3.7.2 Hamiltonien et équation d'évolution

Restreignons nous maintenant au cas d'une paire d'atomes dans le piège. L'expression de (3-28) et (3-29) devient :

$$H_0 = \frac{p_1^2}{2m} + \frac{p_2^2}{2m} + H_{e,1} + H_{e,2} + V_e \left(\left| \vec{R}_1 - \vec{R}_2 \right| \right) \quad (3-31)$$

$$W(t) = - \left(\vec{\varepsilon} \cdot \vec{D}_1 \right) E_0 \cos(\omega t - kZ_1) - \left(\vec{\varepsilon} \cdot \vec{D}_2 \right) E_0 \cos(\omega t - kZ_2) \quad (3-32)$$

L'équation (3-31) peut être réécrite en coordonnées barycentriques et relatives comme :

Chapitre 3 : La photoassociation

$$H_0 = \frac{P^2}{2M} + \frac{p^2}{2\mu} + H_{e,1} + H_{e,2} + V_e(r) = \frac{P^2}{2M} + H_M$$

(3-33)

avec $\mathbf{P}=\mathbf{p}_1+\mathbf{p}_2$, $\mathbf{p}=(\mathbf{p}_1-\mathbf{p}_2)/2$, $\mathbf{R}=(\mathbf{R}_1+\mathbf{R}_2)/2$ et $\mathbf{r}=\mathbf{R}_1-\mathbf{R}_2$. H_M est défini par :

$$H_M = \frac{p^2}{2\mu} + H_{e,1} + H_{e,2} + V_e(r)$$

Nous étendons l'approximation dipolaire en remplaçant dans l'équation (3-32) Z_1 et Z_2 par la coordonnée barycentrique Z . Cette approximation est valide si la coordonnée relative r est petite devant la longueur d'onde optique $\lambda_L=c/v$. Cette hypothèse est satisfaite car l'excitation des états vibrationnels est réalisée à une distance $r \sim 100$ unités atomiques, ce qui est bien inférieure à λ_L . L'équation (3-32) devient

$$W(t) = -(\vec{\varepsilon} \cdot (\vec{D}_1 + \vec{D}_2)) E_0 \cos(\omega t - kZ)$$

(3-34)

Dans le formalisme de la matrice densité, l'évolution du système est donnée par :

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \rho = [H, \rho]$$

(3-35)

ce qui peut s'écrire en représentation d'interaction de la façon suivante :

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \alpha(t) = [\tilde{W}(t), \alpha(t)]$$

(3-36)

avec : $\alpha(t) = e^{-iH_0 t/\hbar} \alpha(t) e^{+iH_0 t/\hbar}$ et $W(t) = e^{-iH_0 t/\hbar} \tilde{W}(t) e^{+iH_0 t/\hbar}$.

L'équation (3-36) peut s'écrire comme :

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \alpha(t) = [\tilde{W}(t), \alpha(0)] + \frac{1}{i\hbar} \left[\tilde{W}(t), \int_0^t [\tilde{W}(\tau), \alpha(\tau)] d\tau \right] \quad (3-37)$$

qui est l'expression que nous utiliserons pour l'équation d'évolution.

3.7.3 Etats moléculaires et matrice densité initiale

Les états propres de l'hamiltonien moléculaire H_M utilisés comme base de notre problème sont notés $|s,s,E,J,m\rangle$ et $|s,p,v,J,m\rangle$. Les états initiaux du continuum sont les états moléculaires $|s,s,E,J,m\rangle$ du continuum au dessus de la limite de dissociation ss , avec une énergie $E > 0$ par rapport à cette limite, et les états finals sont les états rovibrationnels $|s,p,v,J,m\rangle$ convergeant vers la limite de dissociation sp , avec une énergie $E < 0$ par rapport à cette limite. Pour des raisons de simplicité, nous négligeons les effets de structure fine et hyperfine de l'atome et la molécule. Dans le même ordre d'idée, nous ne considérons qu'un seul niveau rovibrationnel $|s,p,v,J,m\rangle$.

Finalement, les hamiltoniens peuvent s'écrire :

$$H_M = \hbar \omega \left| s, p, v, J, m \right\rangle \left\langle s, p, v, J, m \right| + \sum_{E', J', m'} E' \left| s, s, E', J', m' \right\rangle \left\langle s, s, E', J', m' \right| \quad (3-38)$$

$$W(t) = \sum_{E', J', m'} 2K(E') \cos(\omega t - kZ) \left[\left| s, s, E', J', m' \right\rangle \left\langle s, p, v, J, m \right| + \left| s, p, v, J, m \right\rangle \left\langle s, s, E', J', m' \right| \right]$$

$$\text{avec } 2K(E') = -\left\langle s, s \left| \left(\vec{\varepsilon} \cdot (\bar{D}_1 + \bar{D}_2) \right) \right| s, p \right\rangle E_0 \left\langle v, J, m \left| E', J', m' \right\rangle \quad (3-39)$$

On note $2K$ la fréquence de Rabi avec : $2K(E') = 2K^2 \langle v, J, m | E', J', m' \rangle$. Notons que nous négligeons ici tout couplage entre moment angulaire nucléaire et électronique. Il devrait apparaître dans l'équation (3-39) un facteur de Höhn-London qui est réduit ici au produit de 2 symboles de Kronecker $\delta_{n,n'}$ et $\delta_{J,J'}$ et ne dépend pas de Λ , Ω et $\vec{\varepsilon}$. Ce facteur compliquerait un peu les calculs et est en général proche de l'unité pourvu que la transition soit permise : la nature du résultat ne s'en trouve donc pas changée.

Chapitre 3 : La photoassociation

L'état initial du système atomique est donné par l'équilibre thermodynamique :

$$\rho(0) = \alpha(0) = \frac{Z}{\text{Tr}(Z)}$$

avec

$$Z = e^{-\beta H_M} \text{ et } \beta = k_B T$$

(3-40)

On peut considérer le cas où les atomes sont dans une boîte de rayon R_0 ou le cas où les atomes sont dans un potentiel harmonique à 3 dimensions avec une pulsation Ω . C'est ce que nous ferons ici. Dans ce cas, appelons $|n, J, m\rangle$ les états propres de l'oscillateur harmonique d'énergie $(n+3/2)\hbar\Omega$. Nous avons donc :

$$\rho(0) = \sum_{n, J, m} \frac{e^{-\beta(n+3/2)\hbar\Omega}}{\text{Tr}(Z)} |n, J, m\rangle\langle n, J, m|$$

(3-41)

avec

$$\text{Tr}(Z) = e^{-(3/2)\beta\hbar\Omega} (1 - e^{-\beta\hbar\Omega})^{-3} \sim (\beta\hbar\Omega)^{-3} \text{ si } \hbar\Omega \ll \beta$$

(3-42)

3.7.4 Traitement perturbatif

Une approche perturbative nous amène à remplacer dans l'équation (3-37) $\sigma(\tau)$ par $\sigma(0)$. Ce qui nous conduit à :

$$\alpha(t) = \alpha(0) + \frac{1}{i\hbar} \int_0^t [\tilde{W}(t'), \alpha(0)] dt' - \frac{1}{\hbar^2} \int_0^t [\tilde{W}(t'), \int_0^{\tau} [\tilde{W}(\tau), \alpha(0)] d\tau] dt'$$

(3-43)

La probabilité pour les deux atomes de donner une molécule par photoassociation est donnée par

$$\langle s, p, v, J, m | \alpha(t) | s, p, v, J, m \rangle = \langle s, p, v, J, m | \left[-\frac{1}{\hbar^2} \int_0^t \left[\tilde{W}(t'), \int_0^{t'} [\tilde{W}(\tau), \alpha(0)] d\tau \right] dt' \right] | s, p, v, J, m \rangle \quad (3-44)$$

L'approximation du champ tournant permet d'écrire :

$$\begin{aligned} \langle s, p, v, J, m | \alpha(t) | s, p, v, J, m \rangle &= K^2 \sum_{n, J', m'} |\langle v, J, m | n, J', m' \rangle|^2 \\ &\cdot \langle s, s, n, J', m' | \alpha(0) | s, s, n, J', m' \rangle \int_0^t 2 \frac{\sin(\omega - (\omega_1 - \omega_n))t'}{\omega - (\omega_1 - \omega_n)} dt' \end{aligned} \quad (3-45)$$

Nous obtenons :

$$\begin{aligned} \langle s, p, v, J, m | \alpha(t) | s, p, v, J, m \rangle &= K^2 \sum_{n, J', m'} |\langle v, J, m | n, J', m' \rangle|^2 \\ &\cdot \langle s, s, n, J', m' | \alpha(0) | s, s, n, J', m' \rangle \frac{1 - \cos(\omega - (\omega_1 - \omega_n))t}{(\omega - (\omega_1 - \omega_n))^2} \end{aligned} \quad (3-46)$$

ce qui donne :

$$\begin{aligned} \langle s, p, v, J, m | \alpha(t) | s, p, v, J, m \rangle &= 2 \pi K^2 t \sum_{n, J', m'} |\langle v, J, m | n, J', m' \rangle|^2 \\ &\cdot \langle s, s, n, J', m' | \alpha(0) | s, s, n, J', m' \rangle \mathcal{A}(\omega - (\omega_1 - \omega_n)) \end{aligned} \quad (3-47)$$

car $\frac{1 - \cos(\omega - (\omega_1 - \omega_n))t}{(\omega - (\omega_1 - \omega_n))^2}$ tend vers $2 \pi \mathcal{A}(\omega - (\omega_1 - \omega_n))$ quand t tend vers l'infini.

Nous obtenons finalement :

$$\langle s, p, v, J, m | \alpha(t) | s, p, v, J, m \rangle = 2 \pi K^2 t \sum_{n, J', m'} |\langle v, J, m | n, J', m' \rangle|^2 \frac{e^{-\beta \hbar (n+3/2)\Omega}}{\text{Tr}(Z)} \frac{1}{\Omega} \delta \left(n + \frac{3}{2} - \frac{(\omega_1 - \omega)}{\Omega} \right) \quad (3-48)$$

$$\langle s, p, v, J, m | \alpha(t) | s, p, v, J, m \rangle = 2 \pi K^2 t \left| \langle v, J, m | n = (\omega_1 - \omega) / \Omega, J', m' \rangle \right|^2 \frac{e^{-\beta \hbar (\omega_1 - \omega)}}{\text{Tr}(Z)} \frac{1}{\Omega} \quad (3-49)$$

où $\hbar (\omega_1 - \omega) \gg (3/2) \hbar \Omega$, ce qui signifie que $\omega_1 > \omega$.

3.7.5 Matrice de couplage : approximation longue distance

Pour calculer l'intégrale de recouvrement $\langle v, J, m | n, J, m \rangle$, nous considérons les fonctions d'onde à grande distance des différents états considérés. Pour les états du continuum, nous ferons l'approximation d'une paire d'atomes libres dans l'oscillateur harmonique. Pour r petit, nous pouvons prendre :

$$\Psi_{n, J, m}(\vec{r}) = \sqrt{\frac{2\hbar\Omega}{\pi} \left(\frac{2\mu}{\hbar^2}\right)^{3/4}} E_n^{1/4} j_J \left(\frac{\sqrt{2\mu E_n}}{\hbar} r \right) Y_J^m(\theta, \phi) \quad (3-50)$$

Il nous faut maintenant calculer :

$$\langle v, J, m | n, J, m \rangle = C \int_0^\infty \phi_{J, m}(r) j_J \left(\frac{\sqrt{2\mu E_n}}{\hbar} r \right) r dr$$

avec $C = \sqrt{\frac{2\hbar\Omega}{\pi} \left(\frac{2\mu}{\hbar^2}\right)^{3/4}} E_n^{1/4}$ (3-51)

où $\phi_{J, m}(r)$ est la fonction d'onde moléculaire solution de l'équation de Schrödinger (voir équation 1.13) :

$$\left(-\frac{\hbar^2}{2\mu} \frac{d^2}{dr^2} + \frac{J(J+1)\hbar^2}{2\mu r^2} + V_e(r) \right) \phi_{v,J}(r) = E_{v,J} \phi_{v,J}(r) \quad (3-52)$$

Nous allons considérer pour calculer $\phi_{v,J}(r)$ la partie de la fonction au point tournant du niveau rovibrationnel. Cette démarche s'apparente à celle de l'approximation "delta" ou réfléctive. Cette approximation consiste à remplacer dans l'équation (3-52) $V_e(r)$ par son développement limité au voisinage du point tournant r_0 de la fonction d'onde rovibrationnelle:

$$V_e(r) = E_{v,J} + \frac{3C_3}{r_0^4} (r-r_0) + \dots = E_{v,J} + \frac{3|E_{v,J}|^{4/3}}{C^{1/3}} (r-r_0) + \dots$$

avec $r_0 = C^{1/3} |E_{v,J}|^{-1/3}$

(3-53)

Pour fixer les idées, considérons le cas où $J=0$. Nous avons :

$$\langle v,0,0 | n,0,0 \rangle = B \int_0^\infty \phi_{v,0}(r) \sin\left(\frac{\sqrt{2\mu E_n}}{\hbar} r\right) r dr = \frac{B\sqrt{\hbar}}{2i} \left(\phi_0^{\text{TF}}(p = \sqrt{2\mu E_n}) - \phi_0^{\text{TF}}(p = -\sqrt{2\mu E_n}) \right)$$

avec $B = \frac{\hbar C}{\sqrt{2\mu E_n}} = \sqrt{\frac{2\hbar\Omega}{\pi}} \left(\frac{2\mu}{E_n}\right)^{1/4}$

(3-54)

où $\phi^{\text{TF}}(p)$ est la transformée de Fourier de $\phi(r)$ (c'est une fonction d'Airy). En utilisant l'expression (3-53) pour le potentiel moléculaire, nous obtenons pour (3-54) :

$$\langle v,0,0 | n,0,0 \rangle \approx BDh^{1/2} \sin\left(\frac{pr_0}{\hbar} + \frac{p^3}{6\mu\hbar}\right)$$

avec $p = \sqrt{2\mu E_n}$ et $a = 3|E_{v,0}|^{4/3} C^{-1/3}$

(3-55)

Chapitre 3 : La photoassociation

D est une constante de normalisation. En considérant la fonction comme une approximation de $\phi_{v,0}(r)$, nous obtenons :

$$D = \frac{1}{2} \left(\frac{2}{3\mu|E_{v,0}|} \right)^{1/4} \quad (3-56)$$

Une bonne approximation pour (3-55) est de prendre :

$$\langle v,0,0|n,0,0 \rangle \approx BDh^{1/2} \sin\left(\frac{pr_0}{\hbar}\right) \quad (3-57)$$

Le résultat donné par l'équation (3-57) correspond au fait que majeure partie du recouvrement entre les fonctions de l'intégrale (3-54) se trouve au voisinage de $r=r_0$. Nous pouvons généraliser le résultat (3-57) à n'importe quelle valeur de J. Nous obtenons alors :

$$\langle v,J,m|n,J,m \rangle = BDh^{1/2} \frac{pr_0}{\hbar} j_J\left(\frac{pr_0}{\hbar}\right) \quad (3-58)$$

La Figure 3-33 montre la comparaison entre les fonctions d'onde utilisées dans cette approximation (pointillés) et celles calculées exactement pour une courbe de potentiel donnée (trait plein). Nous voyons pour les fonctions du continuum que nous avons un problème de phase et que le comportement en dessous de $R < 50$ u.a. n'est pas pris en compte. Pour l'état rovibrationnel lié, le comportement à grande distance est correctement pris en compte. La Figure 3-34 montre la comparaison entre les intégrales de recouvrement calculées dans notre approximation longue distance et celle calculée numériquement. En résumé, cette approximation donne un résultat que l'on peut considérer comme en assez bon accord avec le calcul numérique plus exact. On comprend bien pourquoi sur la Figure 3-33 . On fait l'intégrale de zéro à l'infini entre une fonction oscillante lentement et une fonction qui oscille rapidement et dont sur le dernier lobe va jouer dans le résultat. Ce deuxième lobe se comporte un peu comme un pic de Dirac d'où le terme d'approximation delta.

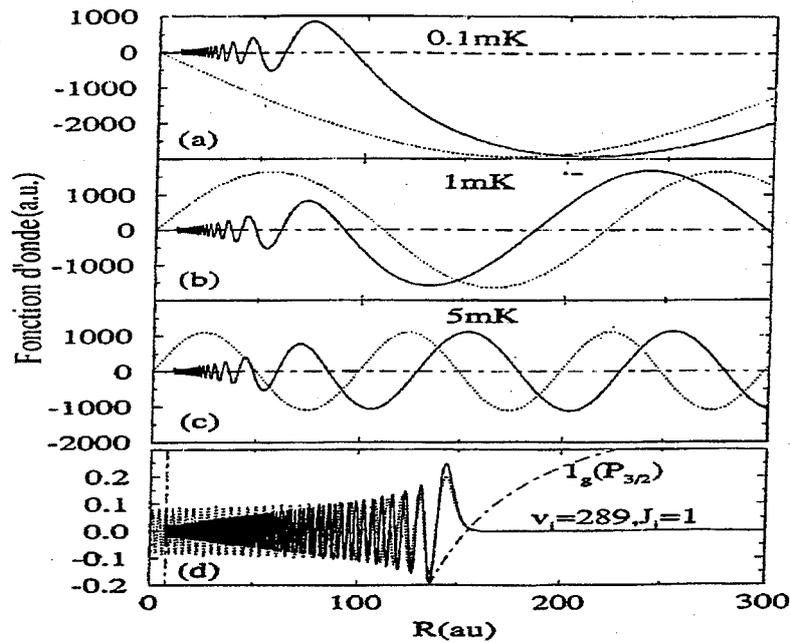


Figure 3-33 : Comparaison entre les fonctions d'onde du césium utilisées dans notre approximation (traits pointillés) et celles calculées exactement pour une courbe de potentiel donnée (traits pleins). Les trois premières courbes sont celles du fondamental à trois températures différentes et la quatrième courbe celle de l'état excité.

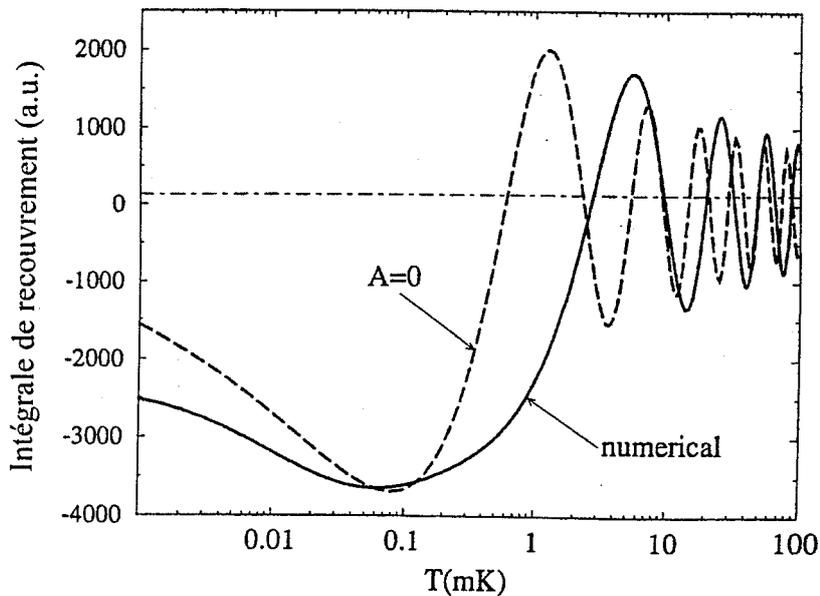


Figure 3-34 : Comparaison entre les intégrales de recouvrement calculées dans notre approximation longue distance (trait pointillé) et celle calculées numériquement (trait plein).

3.7.6 Taux de photoassociation

Nous pouvons maintenant calculer l'expression (3-49) représentant le nombre de molécules formées par photoassociation.

$$\langle s, p, v, J, m | \alpha(t) | s, p, v, J, m \rangle = 2 \pi K^2 t \left| BD \hbar^{1/2} \frac{(2 \mu E_n)^{1/2} r_0}{\hbar} j_J \left(\frac{(2 \mu E_n)^{1/2} r_0}{\hbar} \right) \right|^2 \frac{e^{-\beta E_n}}{\text{Tr}(Z)} \frac{1}{\Omega} \quad (3-59)$$

$$\langle s, p, v, J, m | \alpha(t) | s, p, v, J, m \rangle = \frac{2 \pi K^2 t}{\sqrt{3 E_n E_{vJ}}} (\beta \hbar \Omega)^3 e^{-\beta E_n} \left| \frac{(2 \mu E_n)^{1/2} r_0}{\hbar} j_J \left(\frac{(2 \mu E_n)^{1/2} r_0}{\hbar} \right) \right|^2 \quad (3-60)$$

$E_n = \hbar (\omega_1 - \omega)$. Nous devons maintenant choisir la pulsation Ω de l'oscillateur harmonique. Nous avons :

$$\langle p^2 \rangle = \mu E_n \approx \frac{3}{2\beta} ; \quad \langle r^2 \rangle = \frac{E_n}{\mu \Omega^2} ; \quad (\beta \hbar \Omega)^3 \approx \left(\frac{3\beta}{\mu} \right)^{3/2} \frac{\hbar^3}{V} \quad (3-61)$$

$$\langle s, p, v, J, m | \alpha(t) | s, p, v, J, m \rangle = \frac{36 \pi K^2 t}{\sqrt{3 E_n E_{vJ}}} \left(\frac{\beta}{\mu} \right)^{3/2} \frac{\hbar^4}{V} e^{-\beta E_n} \left| \frac{(2 \mu E_n)^{1/2} r_0}{\hbar} j_J \left(\frac{(2 \mu E_n)^{1/2} r_0}{\hbar} \right) \right|^2 \quad (3-62)$$

$$\langle s, p, v, J | \alpha(t) | s, p, v, J \rangle = (2J+1) \frac{36 \pi K^2 t}{\sqrt{3 E_n E_{vJ}}} \left(\frac{\beta}{\mu} \right)^{3/2} \frac{\hbar^4}{V} e^{-\beta E_n} \left| \frac{(2 \mu E_n)^{1/2} r_0}{\hbar} j_J \left(\frac{(2 \mu E_n)^{1/2} r_0}{\hbar} \right) \right|^2 \quad (3-63)$$

Les équations (3-62) et (3-63) donnent la probabilité pour deux atomes à l'équilibre thermique dans un oscillateur harmonique à 3 dimensions de donner une molécule par photoassociation. Le nombre de molécules obtenues à un temps t sera, s'il reste petit de l'ordre de:

$$n = \frac{N(N-1)}{2} \frac{t}{\tau} \approx \frac{N^2}{2} \frac{t}{\tau} \approx N \gamma_i t \quad (3-64)$$

où τ est donné par :

$$\tau^{-1} = (2J+1) \frac{36 \pi K^2 t}{\sqrt{3E_n E_{vJ}}} \left(\frac{\beta}{\mu} \right)^{3/2} \frac{\hbar^4}{V} e^{-\beta E_n} \left| \frac{(2 \mu E_n)^{1/2} r_0}{\hbar} j_J \left(\frac{(2 \mu E_n)^{1/2} r_0}{\hbar} \right) \right|^2 \quad (3-65)$$

et $\gamma_i = \frac{N}{2\tau}$.

Le traitement sera valide tant que $n \ll N$.

3.7.7 Rôle de l'émission spontanée

1) Nombre de molécules formées

L'émission spontanée n'a pour l'instant pas été considérée dans ce traitement. Il est clair que son rôle est important. Tout d'abord, dans la mesure où, comme nous le verrons, $\tau_{sp} \gg \gamma_i$, le système va atteindre un état quasi stationnaire en un temps de l'ordre de τ_{sp} ($\tau_{sp} = 1/2\pi\Gamma$, où Γ est la largeur naturelle de la transition considérée). Le nombre de molécules formées dans l'échantillon est donné par $n = \tau^{-1} \tau_{sp}$.

Pour calculer les ordres de grandeur, nous prenons les paramètres suivants : pour la fréquence de Rabi

$$K^2 = K_0^2 \frac{I}{I_0} \quad (3-66)$$

où I est l'intensité du laser, $(2K_0)$ est la fréquence de Rabi pour l'intensité laser de saturation $I_0 = \pi \hbar c \Gamma / 3\lambda^3$.

Chapitre 3 : La photoassociation

$$K_0^2 = \frac{(2\pi\Gamma)^2}{8}$$

(3-67)

La température du gaz atomique est la température Doppler :

$$k_B T = \beta^{-1} \approx \frac{h\Gamma}{2}$$

(3-68)

Nous calculons le paramètre r_0 donné par l'équation (3-53) en considérant un paramètre moléculaire $C_3=15$ unités atomiques correspondant aux valeurs mesurées ou calculées pour les différents alcalins. La table donne les taux de photoassociation pour $E_{v,J}=1\text{cm}^{-1}$ et $J=0$. La Figure 3-35 montre la forme des raies calculées numériquement (traits pleins) et analytiquement dans le cadre de l'approximation longue portée (traits pointillés). On voit un bon accord entre les deux courbes. Le calcul du nombre de molécules doit considérer l'aire de ces courbes, compte tenu de la largeur de raie du laser ($\sim 1\text{Mz}$) et de la largeur naturelle du niveau (5 MHz).

Les résultats sont montrés sur le tableau ci-dessous. Ils ont été obtenus pour $N=10^7$ atomes, une densité de 10^{11} atomes / cm^3 et une puissance laser de 10^7 Watts / cm^2 . On voit qu'il n'y a pas de très fortes différences entre les différents alcalins même si le nombre de molécule chute environ d'un facteur 4 entre le lithium et le césium. Ce facteur correspond plus ou moins à un facteur $\mu^{-1/2}$ qui intervient dans le nombre de molécules formées.

On peut faire apparaître les variations du taux de photoassociation en remplaçant dans l'intégrale de recouvrement le sinus par son argument (ce qui devient une assez bonne approximation au fur et à mesure que l'on s'éloigne de la résonance). On obtient :

$$\bar{\tau}^{-1} \approx C^{te} \frac{N}{V} K^2 \frac{\beta^{3/2} C_3^{2/3} \sqrt{E} e^{-\beta E}}{\sqrt{\mu E_{v,J}^{7/6}}}$$

(3-69)

On voit apparaître les différents paramètres intervenant dans l'expérience. Le facteur $\mu^{-1/2}$ déjà mentionné et un facteur en $E_{v,J}^{-7/6}$ qui indique qu'il est plus difficile d'obtenir la photoassociation au fur et à mesure que l'on s'éloigne de la résonance.

Chapitre 3 : La photoassociation

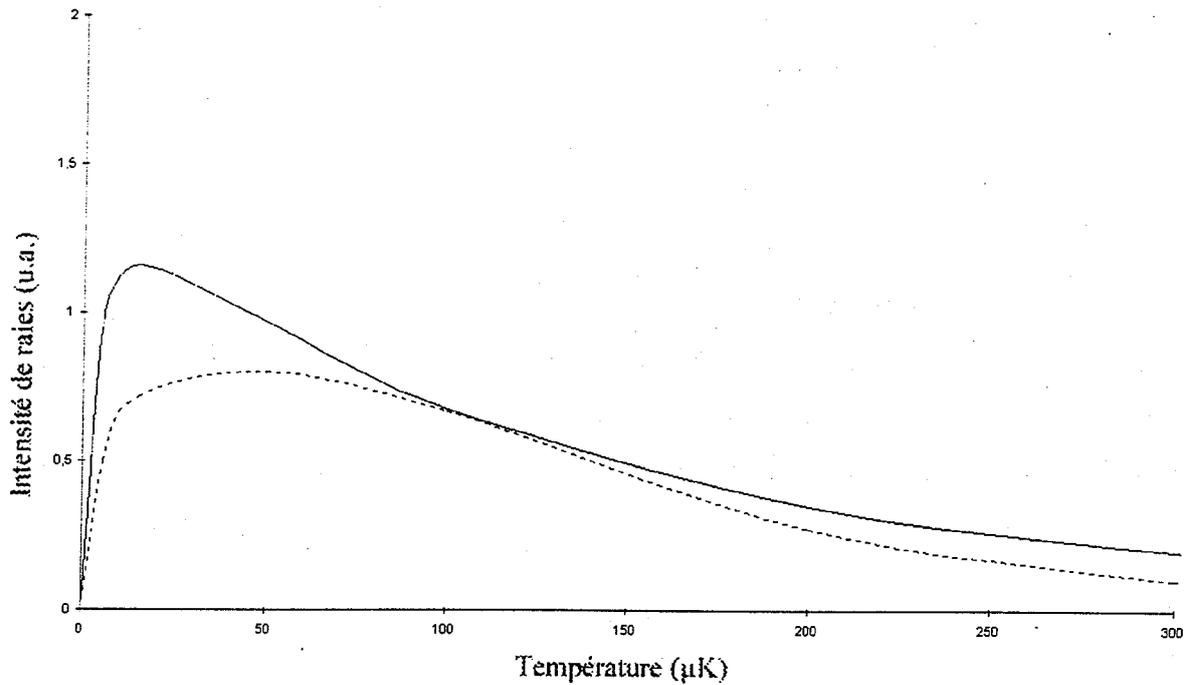


Figure 3-35 : Intégrales de recouvrement multipliées par la fonction expérimentale e^{-BE} . On voit un bon accord entre le calcul numérique (traits pleins) et l'approximation de longue portée (traits pointillés).

Élément	Li	Na	K	Rb	Cs
Masse (u.m.a.)	7	23	39	85	133
$\Gamma_{p \rightarrow s}$ ($10^7 s^{-1}$)	3.6	6.2	3.6	3.7	3.3
I_0 (mW/cm ²)	2.5	6.3	1.7	1.6	1.1
C_3 (Unit.atom.)	11.1	10.5	13.5	14.4	16.2
R_0 (Unit.atom.) pour $\delta=1 \text{ cm}^{-1}$	135	132	145	147	153
T_D (μK)	140	233	134	139	123
$2K$ ($10^{10} s^{-1}$) pour 10^7 W/cm^2	1.6	1.7	2.0	2.0	2.2
λD_2 (nm)	671	589	766	780	852
n/N (%) pour $N=10^7$ atomes	0.5	0.13	0.26	0.14	0.12

On constate sur ce tableau un taux de formation de molécules pour le césium de 1,2 ‰ alors qu'il est de 0,5% pour le lithium.

2) Réchauffement

Après l'obtention d'une molécule excitée, la désexcitation par émission spontanée va conduire à un réchauffement de l'échantillon d'atomes. En effet, l'émission spontanée va se produire essentiellement vers le continuum d'états au dessus de la limite de dissociation ns-ns avec une probabilité qui est donnée par le carré de l'intégrale de recouvrement précédemment considérée. L'énergie cinétique moyenne ainsi acquise par une paire d'atomes sera :

$$\bar{E} = \frac{\int d\alpha E R_f(\alpha)^2}{\int d\alpha R_f(\alpha)^2}$$

où

$$R_f(\alpha) = \langle v00 | n00 \rangle$$

La Figure 3-36 montre le résultat obtenu.

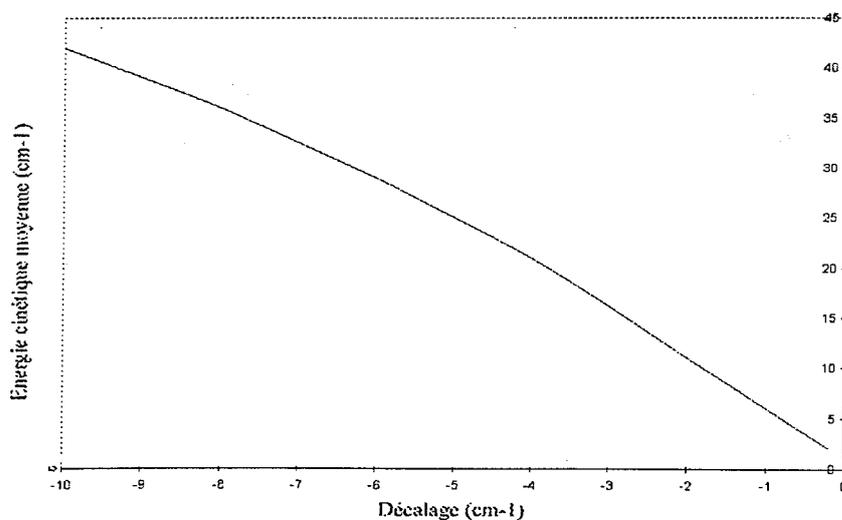


Figure 3-36 : Résultat du calcul numérique donnant l'énergie cinétique moyenne en fonction du décalage par rapport à la résonance.

On voit qu'approximativement, l'énergie cinétique acquise en moyenne par les atomes après la photoassociation puis l'émission spontanée est de l'ordre de $5 E_{v,J}$. On peut définir un chauffage de l'échantillon par unité de temps qui correspond $N\gamma_t E_{moyenne}$.

Revenons au cas d'une paire d'atomes. Le réchauffement correspond à une énergie cinétique moyenne

$$\frac{3}{2} \mu v_f^2 \approx 5 E_{v,J}$$

soit une vitesse moyenne après réchauffement

$$v_f \approx \sqrt{\frac{10 E_{v,J}}{3 \mu}}$$

Dans le cas du lithium, pour un décalage de 1 cm^{-1} , on a $v_f \sim 75 \text{ m/s}$ et dans le cas du césium, on a $v_f \sim 17 \text{ m/s}$. Si on compare cette vitesse à la vitesse de capture d'un piège magnéto-optique qui est de l'ordre de quelques $\Gamma \lambda$ soit quelques fois 4 m/s , on comprend que le cas du lithium est beaucoup plus favorable à une expérience dans un piège magnéto-optique.

3.7.8 Conclusion

Le traitement que nous avons proposé est relativement simple dans la mesure où il ne demande pas de connaissance très précise a priori des courbes de potentiel. On a un bon accord lorsqu'on compare le résultat à un calcul numérique plus précis tenant compte des courbes de potentiel. Ce point n'a pas été discuté ici, mais nous n'améliorons pas les résultats en introduisant par exemple un facteur de phase aux fonctions d'onde d'une paire d'atomes dans l'état fondamental (cf. annexe). La conclusion de cette approche est que le fait d'utiliser des atomes lourds n'est pas un obstacle à la photoassociation même si le taux de molécule varie en $m^{-1/2}$. Cependant, suivant l'atome considéré, l'expérience doit être définie complètement différemment. Il semble bien que les expériences réalisées en piège magnéto-optique simple ne puissent être réalisées efficacement que dans le cas du lithium. Avec le potassium, aucun résultat n'a pu être obtenu et il a été nécessaire de réaliser un dark-spot présentant une plus forte densité (\sim un ordre de grandeur) pour obtenir un résultat [STW.95]. Dans le cas du rubidium ou du césium, il est beaucoup plus difficile de réaliser un dark-spot à cause des moments cinétiques importants pour les transitions considérées. Il est nécessaire pour cela d'utiliser un laser dépompeur pour obtenir une augmentation de la densité d'atomes. Nous avons depuis réalisé une telle expérience mais avec une augmentation de la densité n'excédant

Chapitre 3 : La photoassociation

pas un facteur 2,5. Globalement, il n'y a pas de réelle amélioration dans le cas du césium par rapport aux 10^{12} atomes/cm³ du piège magnéto-optique. Il semble plus intéressant et favorable de réaliser un piège dipolaire ou FORT (Far Off Resonance Trap) si l'on veut mener une expérience de photoassociation. Les expériences sur le rubidium [HEI.94] donnent des résultats sur une large plage de décalage en fréquence. En effet, dans le cas d'un piège dipolaire, la plage de capture spatiale est très petite. Un faible réchauffement permet aux atomes de s'échapper facilement.

Une autre voie reste encore à explorer, il s'agit des expériences à 2 couleurs (ou 2 étapes). Ces expériences permettent d'obtenir des ions produits par la photoassociation. Le cas du sodium est intéressant car le même laser (2 couleurs identiques) peut être utilisé pour la photoassociation puis l'ionisation directe ou l'ionisation via un état moléculaire doublement excité autoionisant [LET.93]. Pour les autres alcalins, il faut deux longueurs différentes pour atteindre des états de l'ion moléculaire ou des états doublement excités autoionisants.

L'expérience avec le rubidium de J.Weiner [WEI.95] utilise un laser à argon qui permet, à partir d'un état moléculaire excité d'atteindre la limite de dissociation Rb-Rb⁺ de l'ion moléculaire à une distance de quelques 10 cm⁻¹. L'obtention d'ions Rb₂⁺ leur permet de conclure à la photoassociation. Les expériences que nous avons réalisées avec une longueur d'onde permettant d'atteindre une zone d'énergie en dessous (1000 cm⁻¹) ou en dessus (150 cm⁻¹) de la limite de dissociation Cs⁺-Cs n'a pas permis d'obtenir d'ions Cs₂⁺. Dans les deux cas, par rapport au rubidium, on se situe plus loin de la limite de dissociation Cs⁺-Cs. L'expérience avec le rubidium est très particulière, il semble plus intéressant dans l'avenir de réaliser des expériences où l'on exciterait des états moléculaires doublement excités autoionisants.

3.8 Bibliographie

- [BAG.93] V.Bagnato, L. Marcossa, C. Tsao, Y. Wang, J. Weiner, Phys. Rev. Lett. **70**, 3225, (1993)
- [DAL.95] M. Marinescu, A. Dalgarno, Phys. Rev. A, **52**, N°1, 311, (1995)
- [FAN.61] U. Fano, Phys. Rev. **124**, N°6, 1866, (1961)
- [GAL.89] A. Gallagher et D.E. Pritchard, Phys. Rev. Lett., **63**, 957 (1989)
- [HEI.93] J.K. Miller, R. A. Cline et D. J. Heinzen, Phys. Rev. Lett., **71**, 2204 (1993)
- [HEI.94]¹ R. A. Cline, J.K. Miller, et D. J. Heinzen, Phys. Rev. Lett., **73**, 632 (1994)
- [HEI.94]² J.R. Gardner, R. A. Cline, J.K. Miller, D. J. Heinzen, H.M.J.M. Boesten et B.J.Verhaar, Phys. Rev. Lett., **74**, 3674 (1994)
- [HUL.95]¹ E. R. I. Abraham, W. I. McAlexander, C.A. Sackett, et Randall G. Hulet, Phys. Rev. Lett. **74**, 8 , 1315 (1995)
- [HUL.95]² W. I. McAlexander, E. R. I. Abraham, N.W.M. Ritchie, C.J. Williams, H. T. C. Stoof, et Randall G. Hulet , Phys. Rev. A, **51**, R871, (1995)
- [HUL.95]³ R. Cote, A. Dalgarno, Y. Sun et R. G. Hulet, Phys. Rev. Lett., **74**, 3581 (1995)
- [HUL.96] E. R. I. Abraham, W. I. McAlexander, H. T. C. Stoof, et Randall G. Hulet
- [LEO.95] D. Leonhardt, Thèse de doctorat, Université du Maryland (1995)
- [LER.69] R.J. LeRoy et R.B. Bernstein, J. Chem. Phys., **52**, 3869 (1969)

Chapitre 3 : La photoassociation

[LET.93] P.D. Lett, K.Helmerson, W.D.Phillips, L.P.Ratcliff, S.L.Rolston et M.E. Wagshul, Phys. Rev. Lett., **71**, 2200 (1993)

[LET.94] L.P.Ratliff, M.E. Wagshul, P.D. Lett, S.L.Rolston et W.D.Phillips J.Chem. Phys. **101**, 2638 (1994)

[MOL.96] Photoassociative reactions of laser-cooled sodium, Thèse Université d'Utrecht, P.A. Molenaar

[STW.70] WC. Stwalley, Y. H. Uang et G. Pichler, Phys. Rev. Lett. **41**, 1164 (1978)

[STW.95] Photoassociative spectroscopy of Ultracold Katoms in a dark spot Vapor Cell Magneto-Optical Trap Phys. Rev. A.

[THO.87] H.R. Thorsheim, J. Weiner et P. S. Julienne, Phys. Rev. Lett., **58**, 2420 (1987)

[WEI.95] J.Weiner, Advances in Atomic , Molecular and Optical physics, **35**, 45 (1995)



Bibliographie générale

- [AMA.83] G. Amat, Cours de physique moléculaire, Maîtrise de physique, Université Pierre et Marie Curie (1983)
- [BAG.93] V. Bagnato, L. Marcossa, C. Tsao, Y. Wang, J. Weiner, Phys. Rev. Lett. **70**, 3225, (1993)
- [BUS.84] B. Bussery, M. Aubert-Frécon, J. Chem. Phys. **82**, (7) 3324 (1985)
- [CHU.85] S. Chu, L. Hollberg, J. Bjorkholm, A. Cable and A. Ashkin, Phys. Rev. Lett. **55**, 48 (1985)
- [CHU.86] S. Chu, L. Holberg, A. Ashkin, A. Cable, Phys. Rev. Lett. **57** n°3, 314 (1986)
- [CHU.89] S. Chu, Y. Shevy, D. Weiss, P. Unger, in Atomic Physics 11 (1989)
- [COH.89] J. Dalibard, C. Cohen Tanoudji, J.O.S.A. B6, 2023 (1989)
- [CRE.84] C. Crépin, Thèse de doctorat, Université Paris 6, Spectroscopie des molécules Cs₂ et CsH. (1984)
- [DAL.84] J. Dalibard, S. Reynaud, C. Cohen-Tannoudji, J. Phys. B : At. Mol. Phys **17**, (1984) 4577
- [DAL.89] J. Dalibard, C. Salomon, A. Aspect, E. Arimondo, R. Kaiser, N. Vansteenkiste, C. Cohen. Tanoudji, in Atomic Physics 11 (1989)
- [DAL.95] M. Marinescu, A. Dalgarno, Phys. Rev. A, **52**, N°1, 311, (1995)
- [DJE.95] Jouda Djemaa, Thèse de doctorat, Université Paris-Sud, Orsay (1995)

- [FAN.61] U. Fano, Phys. Rev. **124**, N°6, 1866, (1961)
- [GAL.89] A. Gallagher et D.E. Pritchard, Phys. Rev. Lett., **63**, 957 (1989)
- [GRI. 92] D. Grison, thèse de doctorat, Université Pierre et Marie Curie, Paris (1992)
- [HAN.75] T. Hansch, A. Schawlow, Opt. Comm. **13** 68 (1975)
- [HEI.93] J.K. Miller, R. A. Cline et D. J. Heinzen, Phys. Rev. Lett., **71**, 2204 (1993)
- [HEI.94]¹ R. A. Cline, J.K. Miller, et D. J. Heinzen, Phys. Rev. Lett., **73**, 632 (1994)
- [HEI.94]² J.R. Gardner, R. A. Cline, J.K. Miller, D. J. Heinzen, H.M.J.M. Boesten et B.J.Verhaar, Phys. Rev. Lett., **74**, 3674 (1994)
- [HER.50] G. Herzberg, "Spectra of diatomic molecules", ed. Van Nostrand Reinhold Co, New York, 1945, (1950)
- [HUL.95]¹ E. R. I. Abraham, W. I. McAlexander, C.A. Sackett, et Randall G. Hulet, Phys. Rev. Lett. **74**, 8 , 1315 (1995)
- [HUL.95]² W. I. McAlexander, E. R. I. Abraham, N.W.M. Ritchie, C.J. Williams, H. T. C. Stoof, et Randall G. Hulet , Phys. Rev. A, **51**, R871, (1995)
- [HUL.95]³ R. Cote, A. Dalgarno, Y. Sun et R. G. Hulet, Phys. Rev. Lett., **74**, 3581 (1995)
- [HUL.96] E. R. I. Abraham, W. I. McAlexander, H. T. C. Stoof, et Randall G. Hulet
- [JUL.94] C.J. Williams, P.S. Julienne, J. Chem. Phys.,**101**,(3), (1994)
- [LEO.95] D. Leonhardt, Thèse de doctorat, Université du Maryland (1995)

- [LER.69] R.J. LeRoy et R.B. Bernstein, *J. Chem. Phys.*, **52**, 3869 (1969)
- [LET.88] P. Lett, R. Watts, C. Westbrook, W. Phillips, P. Gould, H. Metcalf, *Phys. Rev. Lett.* **65** 1571 (1990)
- [LET.93] P.D. Lett, K.Helmerson, W.D.Phillips, L.P.Ratcliff, S.L.Rolston et M.E. Wagshul, *Phys. Rev. Lett.*, **71**, 2200 (1993)
- [LET.94] L.P.Ratliff, M.E. Wagshul, P.D. Lett, S.L.Rolston et W.D.Phillips *J.Chem. Phys.* **101**, 2638 (1994)
- [MAR.95] M.Marinescu, A.Dalgarno, *Phys. Rev. A* **52**, 311 (1995)
- [MOL.96] Photoassociative reactions of laser-cooled sodium, Thèse Université d'Utrecht, P.A. Molenaar
- [MON.90] Very Cold Trapped Atoms in a Vapor Cell., C. Monroe, W. Swann, H. Robinson and C. Wieman, *Phys. Rev. Lett.* **65**, 1571 (1990)
- [NEL.90] J. Nellesen, J. Werner, W. Ertmer, *Opt. Comm.* Vol 78, n°3,4, (1990)300
- [RAA.87] Trapping of Neutral Sodium Atoms with Radiation Pressure., A.L. Raab, M. Prentiss, A. Cable, S. Chu and D.E. Pritchard, *Phys. Rev. Lett.* **59**, 2631 (1987)
- [RII.90] E. Riis, D. Weiss, K. Moler, S. Chu, *Phys. Rev. Lett.* **64** 1658(1990)
- [SES.89] D. Sesko, T. Walker, C. Monroe, A. Gallagher, C. Wieman, *Phys. Rev. Lett.* **63** n°9, 961(1989)
- [SHE.90] B. Sheevy, S.Q. Shang, P. Van der Stran, S. Hatamian, H.Metcalf, *Phys. Rev. Lett* **64**, 1118, (1990)

- [STE.91] A. Steane, C. Foot, Europhysics. Lett. **14** 231 (1991)
- [STW.70] WC. Stwalley, Y. H. Uang et G. Pichler, Phys. Rev. Lett. **41**, 1164 (1978)
- [STW.78] W. Stwalley, Y.H. Uang et G. Pichler, Phys. Rev. Lett., **41**, 17, 1164, (1978)
- [STW.95] Photoassociative spectroscopy of Ultracold Katoms in a dark spot Vapor Cell
Magneto-Optical Trap Phys. Rev. A.
- [THO.87] H.R. Thorsheim, J. Weiner et P. S. Julienne, Phys. Rev. Lett., **58**, 2420 (1987)
- [UNG.89] P.J. Ungar, D.S. Weiss, E. Riis, S. Chu, J.O.S.A. B6, 2058 (1989)
- [WEI.95] J.Weiner, Advances in Atomic , Molecular and Optical physics, **35**, 45 (1995)
- [WIN.75] D. Wineland, H. Dehmelt, Bull. Am. Phys. Soc. **20**, 637, (1975)
- [WIN.78] D. Wineland, R.Drullinger, F. Walls, Phys. Rev. Lett. **40**, 1639 (1978)
- [WIN.79] Dd. Wineland, W. Itano, Phys. Rev. A **20**, n°4, 1521 (1979)

Photoassociation in a gas of cold alkali atoms:

I. Perturbative quantum approach

P. Pillet, A. Crubellier, A. Bleton, O. Dulieu, P. Nosbaum,

I. Mourachko and F. Masnou-Seeuws

Laboratoire Aimé Cotton, C.N.R.S. II, Bât. 505, Campus d'Orsay,

F 91405 Orsay cedex, France

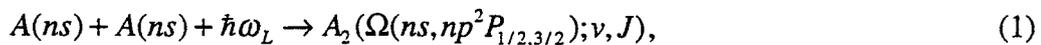
Abstract : We develop a quantum-mechanical approach of the photoassociation phenomenon in a sample of cold atoms initially at thermal equilibrium with temperature T . We calculate the rate of formation of molecules in the weak field regime using a perturbative approach. Analytical expressions are obtained for the overlap between the initial and final molecular wavefunctions, and shown to agree with numerical calculations. The photoassociation rate is found to decrease with increasing atomic mass m , from Li to Cs; its actual m -dependence results from partial compensation of the $m^{-3/2}$ factor coming from the initial velocity distribution by the coupling matrix element. Also considered is the heating of the atomic sample through spontaneous photodissociation.

PACS classification numbers: 3410, 3280P

1. Introduction

The availability of laser cooled atomic samples allows many new experimental developments. One of the most promising directions is certainly the investigation of the photoassociation reaction, proposed by Thorsheim et al (1987), and first studied in a sodium cold sample (Lett et al 1993, Bagnato et al 1993), then in rubidium (Miller et al 1993, Leonhardt and Weiner 1995), lithium (Abraham et al 1995a), and potassium (Wang et al 1996). Indeed, many accurate data for long range molecular spectroscopy can be extracted from such studies (see the above references together with Ratliff et al 1994, Cline et al 1994, Jones et al 1996). One important application is the possibility of spectroscopic determination of the scattering length (Abraham et al 1995b, Gardner et al 1995, Tiesinga et al 1996). Indeed, the sign of the scattering length plays a key role for the achievement of Bose-Einstein condensation in an atomic gas (Stoof 1994 Kagan et al 1996): moreover, the possibility of using the photoassociation reaction to change this sign, and therefore to control the formation of a condensate has been considered recently (Shlyapnikov 1996)

In a photoassociation reaction, a pair of ground state atoms, for example two identical alkali atoms A with mass m , is absorbing a photon at a frequency ω_L red-detuned from the frequency ω_A of the resonance line:



$$\text{with } \omega_L = \omega_A - \Delta_L, \text{ where } \Delta_L > 0. \quad (2)$$

In the initial state, we call E_g the internal energy of each atom, and E the kinetic energy of their relative motion so that the total energy of the initial state is $2E_g + E$. At resonance, reaction (1) is populating a ro-vibrational level (ν, J) of an excited electronic state Ω of the dimer molecule dissociating into $A(ns) + A(np^2P_{1/2,3/2})$. We call $E_b(\nu, J)$ the binding energy of this level relative to the asymptotic energy $E_g + E_e$, so that in the final state the internal energy is:

$$E_f(v, J) = E_g + E_e - E_b(v, J) = 2E_g + \hbar\omega_A - E_b(v, J). \quad (3)$$

The possibility to reach very high resolution in photoassociation spectroscopy with cold atoms clearly appears when considering the energy and momentum balance in reaction (1). Let us call \vec{v}_1 and \vec{v}_2 the velocities of the two atoms in the initial state, \vec{k}_L the wavevector of the photon with energy $\hbar\omega_L$ and \vec{v}_3 the velocity of the final dimer molecule. Energy and momentum conservation laws are:

$$\begin{aligned} \frac{1}{2}(mv_1^2 + mv_2^2) + 2E_g + \hbar\omega_L &= mv_3^2 + E_f(v, J) \\ m\vec{v}_1 + m\vec{v}_2 + \hbar\vec{k}_L &= (2m)\vec{v}_3 \end{aligned} \quad (4)$$

Setting :

$$E = \frac{1}{4}m(\vec{v}_1 - \vec{v}_2)^2; E_{Doppler} = \frac{1}{2}(\vec{v}_1 + \vec{v}_2) \cdot \hbar\vec{k}; E_{recoil} = \frac{(\hbar\vec{k})^2}{4m}, \quad (5)$$

where $E_{Doppler}$ is the energy associated to first order non relativistic Doppler effect and E_{recoil} the recoil energy of the center of mass, the resonance condition can be written in the form:

$$(E_f(v, J) - 2E_g) - \hbar\omega_L = E - E_{Doppler} - E_{recoil} \quad (6)$$

or, using (2),

$$\hbar\Delta_L - E_b(v, J) = E - E_{Doppler} - E_{recoil}. \quad (7)$$

The energy balance is illustrated in Fig.1. Hereafter, the energy $2E_g$ will be taken as the energy origin. One may notice that the relative kinetic energy of the atom pair has been converted into internal energy of the bound molecular state. The resolution of photoassociation spectroscopy is limited by the width of the statistical distribution of E , which is the dominating term in the equation (7) except at ultra-low collision energies. For a gas of atoms in thermal equilibrium at temperature T , this width is of the order of $k_B T$ (k_B is the Boltzmann constant) and corresponds to $\sim 200\text{cm}^{-1}$ at room temperature (300K), but only to $\sim 1\text{MHz}$ at a temperature of $100\mu\text{K}$. This very small value shows the interest of the method.

The high resolution of this spectroscopy technique has already been demonstrated in the various

experimental papers quoted above. Besides, several theoretical studies of cold atomic collisions in the presence of a laser field, including the case of free-bound transitions, have been proposed (Band and Julienne 1992, Julienne et al 1995, Julienne 1996), mainly for sodium samples. Nevertheless, it seems worthwhile to develop a simple but complete picture of photoassociation of cold alkalis, in order to be able to predict the order of magnitude of the expected experimental signals. The aim of the present paper is to answer the following questions :

1) what is the number of molecules formed per unit time for given experimental conditions (atom A varying from lithium to cesium, temperature, laser detuning, laser intensity), and therefore how can the experimental conditions be optimized?

2) what happens to these molecules : in particular, as the molecules suffer photodissociation through spontaneous radiative decay, which proportion is contributing to the trap loss signal and which proportion yields atoms that are recaptured and contribute to heating of the sample?

We shall address these issues in the framework of a simple model in which only two electronic states of the molecule, correlated respectively to $A(ns) + A(ns)$ and to $A(ns) + A(np)$ are considered. The degeneracy of the electronic states, leading to hyperfine structure manifolds, is therefore neglected. The atoms are assumed to be initially at thermal equilibrium and first order quantal perturbation treatment is developed. The paper is organized as follows : in section 2 we define the Hamiltonian and give the evolution equation of the density matrix. The unperturbed molecular states (one continuum and one discrete state) that are considered are next discussed in section 3, together with the initial density matrix. Section 4 concerns the evaluation of the coupling term, due to the electromagnetic field, between those molecular states: in the spirit of the so-called δ -approximation, an analytic estimation is proposed together with a numerical evaluation. The photoassociation rate is then computed in section 5 for the various alkalis as a function of experimental conditions. Finally, section 6 deals with radiative deexcitation and trap loss.

2. Hamiltonian and evolution equation

We consider an atomic gas sample initially at thermal equilibrium, which is an assembly of N atoms interacting by two-body interaction. The Hamiltonian of the system in the Born-Oppenheimer approximation is given by :

$$H_N = \sum_{a=1,N} \left(\frac{P_a^2}{2m} + H_a^{el} \right) + \sum_{a,b=1,N(a \neq b)} V(R_{ab}); \quad (8)$$

$P_a^2/2m$ is the atomic kinetic energy, H_a^{el} is the atomic electronic Hamiltonian and $V(R_{ab})$, with $R_{ab} = |\vec{r}_a - \vec{r}_b|$ is the interatomic potential. In order to study the interaction of the atoms in the presence of the electromagnetic field, we will hereafter restrict the model to a given pair of atoms. Pair operators are traces over all other atoms and the pair Hamiltonian is thus

$$H_0 = \frac{P_1^2}{2m} + \frac{P_2^2}{2m} + H_1^{el} + H_2^{el} + V(R_{12}) + \sum_{a=1,N(a \neq 1)} V(R_{1a}) + \sum_{a=1,N(a \neq 2)} V(R_{2a}). \quad (9)$$

The last two terms represent the overall interaction of the atoms on a given pair and may be ignored at low densities, as long as the influence of N-body collisions ($N \geq 3$) remains negligible. Using barycentric and relative coordinates,

$$\begin{aligned} \vec{\mathcal{R}} &= (\vec{r}_1 + \vec{r}_2)/2; & \vec{R} &= (\vec{r}_1 - \vec{r}_2) \\ \vec{\mathcal{P}} &= (\vec{p}_1 + \vec{p}_2)/2; & \vec{P} &= (\vec{p}_1 - \vec{p}_2) \end{aligned} \quad (10)$$

it becomes

$$H_0 = \frac{\mathcal{P}^2}{2M} + H_M; \quad H_M = \frac{P^2}{2\mu} + H_1^{el} + H_2^{el} + V(R), \quad (11)$$

$\mu = m/2$ being the reduced mass. The atoms are irradiated by a laser electromagnetic field. The atom-field interaction Hamiltonian in the dipolar approximation is, for the given atom pair :

$$W(t) = - \sum_{a=1,2} \left(\vec{E}(\vec{z}_a, t) \cdot \vec{D}_a \right). \quad (12)$$

It is assumed that the laser field is monochromatic (pulsation ω_L , wavevector \vec{k}_L parallel to the z axis) and linearly polarized (unitary vector \vec{e}_L):

$$\vec{E}(\vec{z}, t) = \vec{e}_L E_0 \cos(\omega_L t - k_L z). \quad (13)$$

We extend the dipole approximation by replacing, in (13), z_1 and z_2 by the barycentric coordinate \mathcal{Z} . This approximation is valid here since the values of the internuclear distance R involved in the process are relatively small (much less than 1000 au in the present work) as compared to the optical

wavelength λ_L (typically 10^4 au). The atom-field interaction Hamiltonian becomes:

$$W(t) = -(\vec{\epsilon}_L \cdot (\vec{D}_1 + \vec{D}_2)) E_0 \cos(\omega_L t - k_L \mathcal{Z}). \quad (14)$$

The evolution of the density matrix of the system, $\rho(t)$, is given by :

$$i\hbar \frac{d}{dt} \rho(t) = [H_0 + W(t), \rho(t)], \quad (15)$$

which can be written in the interaction representation as :

$$i\hbar \frac{d}{dt} \sigma(t) = [\tilde{W}(t), \sigma(t)], \quad (16)$$

with

$$\rho(t) = e^{-iH_0 t/\hbar} \sigma(t) e^{iH_0 t/\hbar}; \quad W(t) = e^{-iH_0 t/\hbar} \tilde{W}(t) e^{iH_0 t/\hbar}. \quad (17)$$

The evolution equation of the atomic pair is thus ruled by the general equation:

$$i\hbar \frac{d}{dt} \sigma(t) = [\tilde{W}(t), \sigma(0)] + \frac{1}{i\hbar} \left[\tilde{W}(t), \int_0^t d\tau [\tilde{W}(\tau), \sigma(\tau)] \right]. \quad (18)$$

3 Molecular states and initial density matrix

The eigenstates of the molecular Hamiltonian H_M , used as the basis set of our problem, are labelled $|\alpha\rangle$ and $|i\rangle$. The initial continuum states $|\alpha\rangle$ consist of two ground state atoms colliding with relative energy E and total angular momentum J of projection M (on a laboratory fixed axis). For simplicity, we neglect the hyperfine structure in this initial state, so that the interaction energy $V(R)$ of the atom pair is represented either by the ground state $X^1\Sigma_g^+$ or by the lowest $a^3\Sigma_u^+$ potential curves. We write:

$$|\alpha\rangle \equiv |ns, ns, {}^{2S+1}\Lambda_{u,g}, E, J, M\rangle. \quad (19)$$

For the wavefunction associated to the nuclear relative motion, we have considered either usual collision wavefunctions (assuming infinite dimension for the trap) with radial part labelled $F_\alpha(R)$, or (in the Appendix) harmonic oscillator wavefunctions. Both descriptions are found essentially equivalent.

The final discrete state $|i\rangle$, with energy

$$E_i = \hbar\omega_i = \hbar\omega_A - E_b(v_i, J_i) = \hbar(\omega_A - \Delta_i), \quad (20)$$

is one among the bound rovibrational levels (v_i, J_i) of an excited molecular curve, for which we also neglect the hyperfine structure. The interaction potential is then described in Hund's case c by a $\Omega_{g,u}$ potential curve (Ω is the projection of the total electronic momentum on the molecular axis), which is assumed to be attractive at large distances. The excited molecular wavefunction is thus written as :

$$|i\rangle = |ns, np, {}^2P_{j_A}, \Omega_{g,u}, v_i, J_i, M_i\rangle, \quad j_A = 1/2, 3/2, \quad (21)$$

where M_i is the projection of the total angular momentum \vec{J}_i on a laboratory fixed axis. For simplicity sake, we limitate the treatment to loosely bound vibrational states. The part of the radial wavefunction $F_i(R)$ associated to nuclear motion which is located in the asymptotic region of the excited potential plays then an essential role in the problem. On the other hand, Δ_i must be large enough so that hyperfine structure effects may safely be neglected (see Williams and Julienne 1994).

The numerical application (see section 5) has be performed in the case of cesium atom with the initial states $|\alpha_0\rangle \equiv |ns, ns, {}^3\Sigma_u^+, E, 0, 0\rangle$ and the final state $|i_0\rangle = |ns, np, {}^2P_{3/2}, 1_g, v_i, 1, 1\rangle$.

The atoms are initially in the ground state and they do not interact with the electromagnetic field. For thermal equilibrium at temperature T, the initial density matrix is:

$$\rho_N(0) = \frac{Z_N}{\text{tr}(Z_N)}; \quad Z_N = e^{-\beta H_N}, \quad (22)$$

where

$$\beta = 1/k_B T. \quad (23)$$

For the given pair under consideration, we will again neglect the influence of the other atoms and we write, since the barycentric motion does not play any role in photoassociation,

$$\rho(0) = \frac{Z}{\text{tr}(Z)}; \quad Z = e^{-\beta H_M}. \quad (24)$$

The trace is taken over the $|\alpha\rangle$ states and can be written

$$\text{tr}(Z) = \int dE e^{-\beta E} s(E). \quad (25)$$

where $s(E)$ is the density of states of the continuum, which, for atoms confined in a volume \mathcal{V} , is:

$$s(E) = \frac{4\pi\mathcal{V}\mu^{3/2}}{h^3} \sqrt{2E}, \quad (26)$$

so that

$$\text{tr}(Z) = \left(\frac{2\pi\mu}{\beta}\right)^{3/2} \frac{\mathcal{V}}{h^3}. \quad (27)$$

The initial state of the pair is finally:

$$\rho(0) = \frac{h^3}{\mathcal{V}} \left(\frac{\beta}{2\pi\mu}\right)^{3/2} e^{-\beta H_M}. \quad (28)$$

It is important for the following discussion to note the $\mu^{-3/2}$ dependence of $\rho(0)$, which is the μ -dependence of the velocity distribution.

4. Coupling matrix elements; δ -approximation

The characteristic features of the photoassociation process are essentially determined by the strength and shape of the coupling matrix element function $v_i(\alpha)$ defined by:

$$\langle i|W(t)|\alpha\rangle = v_i(\alpha) \cos(\omega_L t - k_L \mathcal{Z}). \quad (29)$$

$v_i(\alpha)$ contains the matrix element of the molecular transition moment :

$$\langle i|d_q^{\Lambda,\Omega}(R)|\alpha\rangle = \mathcal{L} \int_0^\infty F_i(R) d_q^{\Lambda,\Omega}(R) F_\alpha(R) dR \quad (30)$$

where \mathcal{L} is an angular factor and $d_q^{\Lambda,\Omega}(R)$, with $q = 0, \pm 1$, one component of the electric dipole moment between the initial and final electronic molecular states. For the very loosely bound vibrational states $|i\rangle$ considered here, the radial integral is determined by the asymptotic region and we may safely neglect the R variation of the electric dipole moment. Factoring out the corresponding component of the atomic dipole moment, we write :

$$v_i(\alpha) = 2\hbar K \mathcal{L}(\Lambda, \Omega, J_i, M_i, J, M, \bar{\epsilon}_L) \mathcal{S}_i(\alpha), \quad (31)$$

where $2K = E_0 D_A / \hbar$ is the atomic Rabi frequency, E_0 is the amplitude of the electromagnetic field, $\mathcal{L}(\Lambda, \Omega, J_i, M_i, J, M, \bar{E}_L)$ is the Höhn-London factor, and $\mathcal{S}_i(\alpha)$ is the overlap integral between initial and final radial wavefunctions

$$\mathcal{S}_i(\alpha) = \int_0^{\infty} F_i(R) F_\alpha(R) dR. \quad (32)$$

In order to further simplify the expression of the coupling matrix elements, we will now neglect the coupling between electronic and nuclear angular momenta. The total molecular wavefunctions of the initial and final states are then products of two single-electron wavefunctions (identical to atomic wavefunctions) by nuclear wavefunctions with radial part $F_\alpha(R)$ and $F_i(R)$, respectively. As the coupling with the electromagnetic field concerns electrons only, the Höhn-London factor reduces to the product of two Kronecker symbols $\delta_{J,J_i} \delta_{M,M_i}$ and does not depend on Λ , Ω and \bar{E}_L . Equation (31) becomes thus:

$$v_i(\alpha) = \delta_{J,J_i} \delta_{M,M_i} 2\hbar K \mathcal{S}_i(\alpha) \quad (33)$$

Exact values of $\mathcal{S}_i(\alpha)$ can be obtained from numerical solution of the radial differential equations corresponding to both ground and excited molecular potentials. Approximate expressions for $\mathcal{S}_i(\alpha)$ can also be obtained by using simple approximations for $F_i(R)$ and $F_\alpha(R)$ and generalizing in the present case the so-called "δ-approximation" (Bayliss 1937, Herzberg 1950, Tellinghuisen 1973, Julienne 1996). These expressions are very convenient to understand the physics of the phenomenon and to estimate the order of magnitude of the photoassociation rate.

We show in Fig.2 the behaviour of the exact wavefunctions for the cesium atom in the states $|\alpha_0\rangle$ and $|i_0\rangle$ previously mentioned. Calculations are using Hund's case (c) potential curves deduced from the Hund's case (a) curves of Foucrault et al (1992) for $R < 20$ a.u., connected to the asymptotic calculations of Marinescu and Dalgarno (1995). The change from case (a) to case (c) is performed by diagonalizing an effective spin-orbit Hamiltonian where the fine structure constant of the 6p atomic level is considered for finite internuclear distances. The Schrödinger equation for the radial nuclear motion is then solved numerically using a standard Numerov procedure. The main contribution to the overlap integral is provided by the region close to the outer classical turning point R_0^i of the excited state (see Fig.2). It is then possible to compute the integral by considering approximate expressions

for $F_i(R)$ and $F_\alpha(R)$ valid in this region. Due to the strong difference in the long range variation of the ground state potential ($-1/R^6$) and of the excited state potential ($-1/R^3$), the ground state potential can be neglected at $R \approx R_0^i$, for large enough R_0^i . The energy-normalized radial part of the $|\alpha\rangle$ continuum states can therefore be written, for $R \approx R_0^i$:

$$\begin{aligned} F_\alpha(R) &\approx \left(\frac{2\mu}{\pi^2 \hbar^2 E} \right)^{1/4} \sin(k(R - A(k))) \text{ for } J = 0 \\ F_\alpha(R) &\approx \left(\frac{2\mu}{\pi^2 \hbar^2 E} \right)^{1/4} kR j_J(kR) \text{ for } J \neq 0 \end{aligned} \quad (34)$$

where j_J is a spherical Bessel function, $k = \sqrt{2\mu E} / \hbar$ is the modulus of the wavevector associated to the relative motion of the two atoms and where we have expressed the s-wave phaseshift as $kA(k)$. We thus define an effective scattering length $A(k)$, which, according to effective range theory (O'Malley et al, 1961) verifies :

$$A(k) \xrightarrow{k \rightarrow 0} L + O(k) \quad (35)$$

at low k values, L being the usual scattering length for the ground triplet or singlet molecular state.

We have compared the numerical wavefunctions computed in the region located below 1000 au with the asymptotic expression (35) evaluated assuming $A(k) = 0$ (free wave scattering). The wavefunctions are drawn in Fig.2a-c for $0 < R < 300$ au for three energies (0.1 mK, 1mK, 5 mK). A typical $F_i(R)$ wavefunction corresponding to a detuning $\Delta_i = 1.107 \text{ cm}^{-1}$, $R_0^i = 150$ au is drawn in Fig.2d. At large distances, the numerical wavefunction appears phaseshifted from the free wave, showing that the asymptotic behaviour is indeed reached at 150 a.u.. This result is in agreement with Julienne's discussion (Julienne 1996) concerning the convergence of the phase for elastic scattering by a C_6 / R^6 potential: he shows that the asymptotic behaviour is reached for distances R such that $\eta = \mu C_6 / (10 \hbar^2 R^4) \ll 1$. In the present numerical application, taking $C_6 = 6331$ au (Marinescu et al 1994), we find $\eta \approx 0.07$ for $R=200$ au and $\eta = 0.15$ for $R=150$ au. We have determined the quantity $A(k)$ from the shift between the two curves. The variation of A as a function of $E = \hbar^2 k^2 / 2\mu$ is shown in Fig.3, where it is manifested that the limit value L in (35) is reached only at ultracold temperatures ($T \leq 1 \mu\text{K}$). We find a negative scattering length $L = -250$ au (see the inset in Fig.3), whereas for larger energies the quantity $A(k)$ goes through 0 and becomes positive, reaching a

plateau with $A \approx 80a.u.$ for $T > 1mK$. We therefore predict a Ramsauer effect in the s-wave scattering at $T \approx 100\mu K$. Also indicated in Fig.2 is the position of the outer turning point for a larger detuning ($\Delta = 10cm^{-1}$, $R_0^i \approx 50au$). In the latter case, expressions (34) are a crude approximation for $F_\alpha(R)$ (η taking a value close 100), generally overestimating the amplitude of the scattered wavefunction.

The wavefunction $F_i(R)$ for the radial nuclear motion in the excited state $|i\rangle$ is solution of the differential equation

$$\left(\frac{\hbar^2}{2\mu} \frac{d^2}{dR^2} + \frac{\hbar^2 J_i(J_i+1)}{2\mu R^2} + V(R) \right) F_i(R) = -\hbar\Delta_i F_i(R). \quad (36)$$

From the numerical solution drawn in Fig. 2, it is clear that one may neglect the contribution to the overlap integral of the inner turning point where both $F_i(R)$ and $F_\alpha(R)$ display very small amplitudes. As in the work of Jablonski (1945), an approximate solution for eq(36) can be found in the framework of the quasi-classical approximation. In the vicinity of R_0^i , the asymptotic molecular potential $-C_3/R^3$ may be linearized according to:

$$V(R) = -\hbar\Delta_i + \frac{3C_3}{(R_0^i)^4} (R - R_0^i); \quad R_0^i = \left(\frac{C_3}{\hbar\Delta_i} \right)^{1/3}. \quad (37)$$

For $J_i=0$, for example, the vibrational radial wavefunction is then an Airy function (Abramovitz and Stegun 1965), which can be normalized through classical correspondance:

$$F_i(R) = \frac{\sqrt{\pi}}{(aR_{0i})^{1/4}} \text{Airy} \left(\frac{R - R_0^i}{a} \right); \quad a = \left(\frac{\hbar R_0^i}{6\mu\Delta_i} \right)^{1/3}. \quad (38)$$

In contrast with the usual derivation of the reflection approximation (Jablonski 1945, Julienne 1996), it is clear that $F_i(R)$ is oscillating much more rapidly than $F_\alpha(R)$ so that it is not possible to separate the product of the two functions into the sum of a high frequency and a low frequency term. Nevertheless, an analytical form can be found for the overlap $\mathcal{S}_i(\alpha)$, from properties of the Airy function. For $J=J_i=0$, $\mathcal{S}_i(\alpha)$ is found approximately equal to:

$$\begin{aligned} \mathcal{S}_i(\alpha) &= \frac{1}{(3E\hbar\Delta_i)^{1/4}} \sin(k(R_0^i - A(k)) - k^3 a^3 / 3) \\ &= \frac{1}{(3\hbar\omega_m \hbar\Delta_i)^{1/4}} \frac{\sin(k(R_0^i - A(k)) - k^3 a^3 / 3)}{\sqrt{k(R_0^i - A(k))}} \end{aligned} \quad (39)$$

$$\text{with } \hbar\omega_m = \frac{\hbar^2}{2\mu(R_0^i - A(k))^2}. \quad (40)$$

Notice that the maximum value of $\mathcal{S}_i(\alpha)$ varies like $\mu^{1/4}$.

At the scale of the large local de Broglie wavelength in the ground state wavefunction at $R \approx R_0^i$, the last arch of the Airy function is behaving as a δ function, so that the overlap is proportional to $F_\alpha(R_0^i)$, in agreement with the usual δ -approximation. The coupling function $\mathcal{S}_i(\alpha)$ goes to 0 whenever the ground state wavefunction has a node at the distance R_0^i , and therefore is highly sensitive to the value of the effective scattering length. Fig.4 shows, in the case $J=J_i=0$, the comparison between numerical and various analytical overlap functions computed through formula (39) assuming a constant effective length $A(k) = A$. The influence of the choice of A is clearly manifested; the value $A=80$ a.u. yields a good approximation for the numerical curve at $T > 10mK$, while $A=0$ seems to be the best approximation at $T \approx 100\mu K$.

For other low J and J_i values, as expected to be involved in the cold atom problem, the centrifugal energy $J(J+1)/2\mu R^2$ contributes only for a few MHz in the region $R \approx R_0^i$ and can be neglected as compared to the $\hbar\Delta_i$ range considered here. One can thus still use eq(38) for the $|i\rangle$ wavefunction. In addition, for small enough k values, the function $F_i(R)$ can further be approximated, in the overlap integral, by a delta function $\delta(R - R_0^i)$, so that the general expression for $\mathcal{S}_i(\alpha)$ with $J \neq 0$ is roughly:

$$\mathcal{S}_i(\alpha) = \frac{kR_0^i}{(3E\hbar\Delta_i)^{1/4}} j_J(kR_0^i) = (3\hbar\omega'_m \hbar\Delta_i)^{-1/4} J_{J+1/2}(kR_0^i), \quad (41)$$

where J_ν is a Bessel function while we have introduced the quantity

$$\hbar\omega'_m = \frac{\hbar^2}{2\mu(R_0^i)^2}. \quad (42)$$

The maximum value of $\mathcal{S}_i(\alpha)$ in this case varies like $\mu^{1/4}$, $\Delta_i^{-2/3}$ and $C_3^{2/3}$. For small k , one recognizes the Wigner law threshold behaviour in $k^{J+1/2}$. It is shown in the Appendix that similar

equations are obtained when harmonic oscillator wavefunctions are used to describe the initial molecular continuum state.

5. Perturbative treatment and photoassociation rate

The first step of the perturbative approach consists in replacing, in the right-hand member of eq(18), $\sigma(\tau)$ by $\sigma(0)$. Time-integration gives then

$$\sigma(t) = \sigma(0) + \frac{1}{i\hbar} \int_0^t dt' [\tilde{W}(t'), \sigma(0)] - \frac{1}{\hbar^2} \int_0^t dt' [\tilde{W}(t'), \int_0^{t'} d\tau [\tilde{W}(\tau), \sigma(0)]] \quad (43)$$

The probability for the atom pair to be in the discrete molecular state at time t is $\langle i|\sigma(t)|i\rangle$. We then use the closure relation inside the space of states $|\alpha\rangle$:

$$\int d\alpha |\alpha\rangle\langle\alpha| = 1 \quad (44)$$

and deduce $\sigma(0)$ from eqs (17) and (28), which gives:

$$\langle\alpha|\sigma(0)|\alpha'\rangle = \frac{e^{-\beta E}}{\text{tr}(Z)} \delta(\alpha - \alpha'). \quad (45)$$

The population of the bound state $|i\rangle$ becomes, using the rotating wave approximation and performing all time integrations:

$$\langle i|\sigma(t)|i\rangle = \frac{1}{2\hbar^2} \int d\alpha |v_i(\alpha)|^2 \frac{e^{-\beta E}}{\text{tr}(Z)} \frac{1 - \cos((\omega_i - \omega - \omega_L)t)}{(\omega_i - \omega - \omega_L)^2}, \quad (46)$$

where the collision energy $E = \hbar\omega$ is the energy of the state $|\alpha\rangle$. For large t values (as compared to the inverse of the energy scale of the variation of $v_i(\alpha)$), a $\delta(\omega_i - \omega - \omega_L)$ factor appears, which expresses the resonance condition, and we write

$$\langle i|\sigma(t)|i\rangle = G_i(\alpha_r) t \frac{e^{-\beta E}}{\text{Tr}(Z)}; \quad G_i(\alpha) = \frac{\pi}{2\hbar} |v_i(\alpha)|^2, \quad (47)$$

the only concerned continuum states $|\alpha_r\rangle$ being the resonant ones, with energy

$$E_r = \hbar(\omega_i - \omega_L). \quad (48)$$

As long as the proportion of free atoms remains close to 1, the number of molecules formed in state $|i\rangle$ is

$$\mathcal{N}_i^p(t) = \frac{N(N-1)}{2} \langle i | \sigma(t) | i \rangle. \quad (49)$$

In the perturbative regime, ie for $\mathcal{N}_i^p(t) \ll N$, this number is proportional to the irradiation time t , and the photoassociation rate γ_i (number of molecules formed per time unit divided by the total number of atoms) is equal to

$$\gamma_i(E_r) = \frac{N}{\mathcal{V}^p} \frac{h^3}{2} \left(\frac{\beta}{2\pi\mu} \right)^{3/2} e^{-\beta E_r} G_i(\alpha_r). \quad (50)$$

Using expressions (47) and (33) for $G_i(\alpha)$, the rate of formation of molecules in the considered state is:

$$\gamma_i(E_r) = \left(\frac{3}{2\pi} \right)^{3/2} \frac{h}{2} \frac{N}{\mathcal{V}^p} \lambda_{th}^3 e^{-\beta E_r} K^2 \sum_{J,M} \delta_{J,J_i} \delta_{M,M_i} \mathcal{S}_i^2(\alpha_r), \quad (51)$$

where $\lambda_{th} = h \sqrt{\frac{\beta}{3\mu}}$ is the thermic de Broglie wavelength and where the sum over J and M reduces to a $2J_i + 1$ factor. For example, using the above approximations, the formation rate of molecules in a $J_i = 0$ level is:

$$\gamma_i(E_r) = \left(\frac{3}{2\pi} \right)^{3/2} \frac{h}{2} \frac{N}{\mathcal{V}^p} \lambda_{th}^3 e^{-\beta E_r} K^2 \frac{\sin^2(k_r(R_0^i - A(k_r)))}{(3E_r \hbar \Delta_i)^{1/2}}; \quad (52)$$

for other $J_i \neq 0$ transitions, one has:

$$\gamma_i(E_r) = (2J_i + 1) \left(\frac{3}{2\pi} \right)^{3/2} \frac{h}{2} \frac{N}{\mathcal{V}^p} \lambda_{th}^3 e^{-\beta E_r} K^2 \frac{J_{J_i+1/2}^2(k_r R_0^i)}{(3\hbar \omega'_m \hbar \Delta_i)^{1/2}}. \quad (53)$$

The variation of γ_i with $E_r = \hbar(\omega_i - \omega_L)$, i.e. its variation with the laser frequency, gives the "lineshape" $f(E_r)$ of the photoassociation process (when ignoring laser width and spontaneous emission):

$$f(E_r) = \exp(-\beta E_r) \mathcal{S}_i^2(\alpha_r). \quad (54)$$

The position and height of its maximum depends on the relative values of $k_B T$ (which rules the decreasing exponential) and $\hbar \omega_m$ or $\hbar \omega'_m$ (which fixes the period of the oscillations of the coupling

function $G_i(\alpha)$). In the limit case where $k_B T \ll \hbar \omega'_m$ (i.e. for small temperatures or large Δ_i), the maximum value is reached for $E_r = (J_i + 1/2)k_B T$ and one has:

$$\gamma_i((J_i + 1/2)k_B T) \propto \frac{N}{V} K^2 \mu^{J_i - 1/2} T^{J_i - 1} C_3^{(2J_i + 2)/3} \Delta_i^{-(4J_i + 7)/3}. \quad (55)$$

Table 1 gives the order of magnitude of the the photoassociation rate towards a $J_i = 0$ level, for all alkalis in comparable conditions. The atomic density is $N/V = 10^{11} \text{cm}^{-3}$ and the discrete state corresponds to $\Delta_i = 1 \text{cm}^{-1}$. For all elements, the temperature is assumed to be the ‘‘Doppler temperature’’, given by $k_B T = \hbar \Gamma / 2$, where Γ is the atomic spontaneous emission rate coefficient (this is roughly the value that one expects in the experiments with alkali atoms in MOT; the temperature in the photoassociation experiments is even larger). The Rabi frequency for a laser intensity I is $2K$ with

$$K^2 = K_0^2 \frac{I}{I_0} \quad \text{with} \quad K_0^2 = \frac{(2\pi\Gamma)^2}{8} \quad \text{and} \quad I_0 = \pi \hbar c \Gamma / 3 \lambda_L^3, \quad (56)$$

where $2K_0$ is the Rabi frequency at the saturation intensity, I_0 . The light intensity I is 10^7W/m^2 (roughly 500mW for a beam waist of 300 μm). The energy of the resonant initial state is chosen as to maximize γ_i (eq(52)): the corresponding E_r values are indicated in the table. If $k_B T \ll \hbar \omega_m$, the maximum occurs at $E_r = k_B T / 2$ and is of the order of $\sqrt{k_B T} / (\hbar \omega_m \sqrt{6\hbar \Delta_i})$. If, conversely, $k_B T \gg \hbar \omega_m$, the maximum occurs at $E_r = \hbar \omega_m \pi^2 / 4$ and is of the order of $2 / (\pi \sqrt{3\hbar \omega_m \hbar \Delta_i})$. The values of γ_i are not calculated at the maximum value; we have preferred to use an average value which is obtained by dividing the integral of $f(E_r)$ by an arbitrary resolution width of the order of the natural linewidth, say 5MHz.

The calculations of the table have been performed with $A(k)=0$. The influence of the phaseshift has been estimated by comparing, in the case of cesium, the different lineshapes of the photoassociation rate obtained with different (constant) values A of $A(k)$ (see Fig.5). It is clear that the widths and heights are very different; however, as shown in the inset of the same figure, the average values are much closer one to the other. The value $A=80$ a.u., which corresponds to the phaseshift at higher energies ($>1\text{mK}$) gives worse agreement than the two other values, which, as shown in Fig.3, correspond to the phaseshift at energies either of the order of $k_B T$ or smaller.

To illustrate our results for $J_i \neq 0$, we present in Fig.6 the lineshapes of the photoassociation rate corresponding to different J_i values for Li and Rb and for $\Delta_i = 1 \text{cm}^{-1}$. The temperatures (1mK for Li and 700 μK for Rb) are taken from experiments (Abraham et al 1995a for Li and Miller et al for Rb).

It is recalled that the J values considered here are not the total molecular angular momenta, but only their nuclear components. Partial waves with $J \neq 0$ values may only give a contribution if the distance of closest approach (where the centrifugal barrier energy is of the order of $k_B T$) is either smaller than or of the order of R_0^i . The number of J levels that can be populated thus increases with m and T and decreases with Δ_i . Notice that the expected linewidths are larger than the experimental resolution (5 to 10 MHz, with $1 \text{ mHz} \approx 50 \mu\text{K}$). To our knowledge, the secondary peak which appears for $J=0$ has never been observed.

6. Spontaneous emission and trap loss

Spontaneous emission is essential to understand the behavior of a cold atomic sample illuminated by a photoassociation laser beam. For molecules in loosely bound vibrational states such as considered here, the excited molecules decay exclusively towards the continuum states corresponding to the fundamental dissociative limit, with a rate approximately equal to Γ , where Γ is the atomic spontaneous emission rate coefficient. A stationary regime will be reached, where molecules creation and destruction are equilibrated and, if $\Gamma \gg \gamma_i$, the number of molecules in the trap will stabilize at $\mathcal{N} = N\gamma_i/\Gamma$, in a time of the order of Γ^{-1} . However, the population of the ground molecular states $|\alpha\rangle$ does not remain constant. Very slowly, in a time of the order of γ_i^{-1} , the population of the resonant state $|\alpha_r\rangle$ is redistributed among all $|\alpha\rangle$ states, with a linear increase proportional to $G_i(\alpha)$. The average energy of the $|\alpha\rangle$ states populated by photodissociation is thus:

$$\bar{E} = \frac{\int d\alpha E G_i(\alpha)}{\int d\alpha G_i(\alpha)}. \quad (57)$$

The variation of \bar{E} with Δ_i is shown in Fig.7, for the states $|\alpha_i\rangle$ and $|\alpha_0\rangle$ previously mentioned. Even if restricting to $J=J_i=0$, the simplified formulas for $G_i(\alpha)$ do not allow us to estimate \bar{E} : moreover, the integrals of eq(57) diverge for large E . This point shows that the approximation is no valid for large E . Nevertheless, to obtain a rough estimation of \bar{E} , it is possible to suppress these divergences by multiplying the analytic expression of $G_i(\alpha)$ by a factor $\exp(-E/E_x)$. The value of E_x , $E_x = 12\hbar\Delta_i/\pi$, is obtained from the equation

$$\int d\alpha |\mathcal{S}_i(\alpha)|^2 = 1, \quad (58)$$

which expresses the normalization of the discrete radial wavefunction. One finds in this way

$$\bar{E} = E_x / 2 = 6\hbar\Delta_i / \pi. \quad (59)$$

Qualitative agreement with numerically calculated values is obtained (see Fig.4). As E_r is much smaller than \bar{E} , photodissociation is thus producing a slow heating of the atomic sample, with a net energy increase per time unit of the order of $\mathcal{N}\Gamma\bar{E} = N\gamma_i\bar{E}$. From eq(59), it appears that this heating of the atomic sample essentially depends on the energy of the excited state. For a given Δ_i , the velocities of the atoms produced by spontaneous photodissociation are thus expected to be larger for light atoms than for heavy ones, with a factor varying as $\mu^{-1/2}$. This point becomes important in the experiments when one measures the atom loss of a magneto-optical trap during photoassociative process. The velocity limit for trap capture is about the same for all elements and is of the order of a few $\frac{\Gamma\lambda}{2\pi}$: for a given Δ_i value, trap loss through photodissociation is thus expected to be larger for

light alkalis than for heavy ones. To give an estimation of this effect, we mention that, for all alkali atoms, $\frac{\Gamma\lambda}{2\pi}$ is of the order of 5 m/s, whereas the average velocity \bar{v} due to the heating process is

given by:

$$\frac{3}{2}\mu\bar{v}^2 = \bar{E} \approx 5\hbar\Delta_i; \quad (60)$$

for $\Delta_i = 1\text{cm}^{-1}$, for example, \bar{v} decreases from Li (about 75 m/s) to Cs (about 15 m/s).

7. Conclusion

We have presented a simple treatment of photoassociation of cold alkali atoms, in the perturbative limit. This treatment fully accounts for the initial (thermal) velocity distribution of the atoms and allows one to evaluate the rate of formation of molecules in given experimental conditions. Numerical calculations have been performed in the case of cesium and simple analytical formulas have been obtained in the general case, using asymptotic phase-shifted wavefunctions for the initial molecular continuum and $\delta(R_0^i)$ function located at the outer Condon point R_0^i for the final discrete vibrational wavefunction. These formulas are found generally sufficient to evaluate the order of magnitude of the photoassociation rate. In the case of cesium, we have studied in detail the continuum wavefunctions. We have introduced an "effective scattering length" which, for the potentials considered in the present work, varies quickly in the relevant energy region, reaching its negative limit value only at about $1\mu\text{K}$. Nevertheless, when taking into account the experimental resolution, we find that the photoassociation rate does not depend much on this effective scattering length. The use of the asymptotic treatment for the ground state limitates the validity of the analytical formulas to large values of R_0^i thus providing a lower bound for the energy of the discrete level.

The analytical formulas are crucial to discuss the influence of the physical parameters: the nature of the atom (actually the atomic mass m , as the spontaneous emission rate Γ and the long-range coefficient C_3 are very similar for all alkalis), the binding energy $\hbar\Delta_i$ of the molecular vibrational level, the laser intensity I , the initial density and initial temperature T of the atomic sample. It is found that the photoassociation rate increases of course linearly with density and laser intensity. Its variation with laser frequency, its "lineshape", depends in a rather complicated way on the different parameters. Its maximum value generally decreases with increasing m and T and increases with increasing Δ_i . The atomic mass m , for instance, plays a role both in the atom-field coupling function, whose energy scale is proportional to m^{-1} and in the initial continuum density state, which gives a $m^{-3/2}$ factor. Finally, despite the latter factor, the photoassociation rate is found to generally depend rather little on m , whereas the number of J values that are populated increases with m and decreases with Δ_i . The present perturbative treatment is no longer valid at very small Δ_i values, even for

reasonable laser power. A more general, non-perturbative, treatment is presently in progress.

Photoassociation cannot be treated apart from spontaneous photodissociation. In a time of the order of Γ^{-1} after switching on the photoassociation laser, a steady-state regime with a number of molecules equal to $\mathcal{N}^{\circ} = N\gamma_i/\Gamma$ is reached. At the same time, photodissociation produces a slow heating of the atomic sample which depends on the energy of the molecular level, but not on the atomic mass. The resulting atomic velocities are thus much larger for light atoms than for heavy ones, with a factor varying as $m^{-1/2}$. As the velocity limit for trap capture in a MOT is about the same for all alkalis, atom loss due to photoassociation in a MOT is smaller for heavy alkalis and cannot then be conveniently used as a detection tool. It has been shown that this could be improved by using either a dark spot MOT (Wang et al 1996), allowing higher atomic density, or a FORT (Miller et al. 1993), where the atom capture range is much shorter. One other solution for improving the detection is to perform either two-color experiments (Lett 1996) or photoionisation experiments (Leonhardt and Weiner 1995). Finally, the present analysis will be helpful in finding, for each particular experimental situation and for each alkali atom, the best solution for photassociation spectroscopy experiments.

Appendix: Use of Isotropic Harmonic Oscillator wavefunctions as ground continuum molecular states

Discrete states can be used instead of continuous ones in the description of the initial state. The motion of non-interacting atoms in a MOT can indeed be approximated by Isotropic Harmonic Oscillator (IHO) motion. For a given atom pair, if one ignores their mutual interaction, barycentric and relative motion are both ruled by IHO equations with same frequency Ω . This frequency is related to the MOT characteristics but it is often convenient, especially for comparing the formulas obtained in this way with other ones, to use the relationship between Ω and the volume \mathcal{V} occupied by the atoms in the trap. For deriving this relation, we simply deduce the order of magnitude of the linear dimension of the atomic cloud from the average value of a squared atomic coordinate, x for example.

From equipartition of the energy, the energy associated with one-dimensional motion is

$$m\Omega^2 \langle x^2 \rangle = \frac{1}{2} k_B T. \quad (\text{A1})$$

We then write

$$\mathcal{V} = \langle x^2 \rangle^{3/2} \quad (\text{A2})$$

and we obtain the desired relation:

$$\Omega = 2(\beta\mu)^{-1/2} \mathcal{V}^{-1/3}. \quad (\text{A3})$$

The ground molecular states are written as IHO eigenstates

$$|\alpha\rangle \equiv |n, J, M\rangle$$

of energy $E_n = (n + 3/2)\hbar\Omega$.

The initial density matrix of the pair is still given by expression (24), with

$$\text{tr}(Z) = e^{-3/2\beta\hbar\Omega} (1 - e^{-\beta\hbar\Omega})^{-3} \approx (\beta\hbar\Omega)^{-3} \text{ if } \beta\hbar\Omega \ll 1, \quad (\text{A4})$$

or, using (A3),

$$\text{tr}(Z) = \left(\frac{\pi}{h}\right)^3 \left(\frac{\mu}{\beta}\right)^{3/2} \mathcal{V}, \quad (\text{A5})$$

which is similar to Eq(27).

To evaluate the coupling matrix elements $v_{i\alpha}$ (we use different notation to emphasize that the dimension of $v_{i\alpha}$ (energy) is different from the one of $v_i(\alpha)$ (square root of energy)), we use the same approximate discrete wavefunction as in sect. 4 and we approximate the IHO radial wavefunction by a

spherical Bessel function; this is valid as long as the considered R values are much smaller than the trap dimensions. We write

$$F_\alpha(R) = (2\hbar\Omega)^{1/2} \left(\frac{2\mu}{\pi^2\hbar^2 E_n}\right)^{1/4} k_n R j_J(k_n R), \quad (\text{A6})$$

where $k_n = \sqrt{2E_n}/\hbar$. The overlap $S_{i\alpha}$ between initial and final nuclear radial wavefunctions and the coupling functions $v_{i\alpha}$ and $G_{i\alpha} = \frac{\pi}{2\hbar} |v_{i\alpha}|^2$ are calculated as in section 4; the only difference is an additional multiplying $\sqrt{2\hbar\Omega}$ factor and the lack of the phaseshift (that one could introduce, for $J=0$, simply by replacing R_0^i by $R_0^i - L$); one has

$$S_{i\alpha} = (2\hbar\Omega)^{1/2} (3E_n\hbar\Delta_i)^{-1/4} k_n R_0^i j_J(k_n R_0^i). \quad (\text{A7})$$

In the perturbative approach, the population of state $|i\rangle$ is now (cf eq (46)):

$$\langle i|\sigma(t)|i\rangle = \frac{1}{2\hbar^2} \sum_{\alpha=n,J,M} |v_{i\alpha}|^2 \frac{e^{-\beta E}}{\text{Tr}(Z)} \frac{1 - \cos((\omega_i - \omega_n - \omega_L)t)}{(\omega_i - \omega_n - \omega_L)^2}. \quad (\text{A8})$$

For an usual MOT, $\hbar\Omega$ is much smaller than $k_B T$ and the relevant quantum numbers n are very large; $\omega_n = n\Omega$ can be considered as a continuous variable and for large t values a delta function $\delta(\omega_i - \omega_n - \omega_L)$ appears, that we can also write as a Kronecker symbol

$$\delta(\omega_i - \omega_n - \omega_L) = \Omega^{-1} \delta_{n,(\omega_i - \omega_L)/\Omega}. \quad (\text{A9})$$

We finally obtain for the rate of molecules formation:

$$\gamma_i = \frac{\pi}{\Omega} N (\beta\hbar\Omega)^3 e^{-\beta\hbar\Omega} K^2 \sum_{J,M} \delta_{J,J_i} \delta_{M,M_i} S_{i\alpha}^2, \quad (\text{A10})$$

where the n value is the resonant one, $(\omega_i - \omega_L)/\Omega$, or, using eq(A3)

$$\gamma_i = (2J_i + 1) \frac{3^{3/2}}{\pi^3} h \frac{N}{\Omega} \lambda_{ih}^3 e^{-\beta E_r} K^2 \frac{(k_n R_0^i)^2 j_{J_i}^2(k_n R_0^i)}{(3n\hbar\Omega\hbar\Delta_i)^{1/2}}, \quad (\text{A11})$$

which (apart from the absence of phaseshift in the $J_i=0$ case) is almost identical to Eqs(52) and (53). The comparison between the two calculations cannot be made more precise, since the volume and the density in the trap are not exactly defined.

Acknowledgments: Helpful discussions with Jacques Vigué and with Paul Lett are gratefully acknowledged

References

- Abraham E R I , Richtie N W M , Mc Alexander W I and Hulet R G 1995a J. Chem. Phys. **103**
7773
- Abraham E R I , Mc Alexander W I , Sackett C A and Hulet R G 1995b Phys. Rev. Lett. **74** 1315
- Abramovitz M and Stegun I 1965 "Handbook of Mathematical Functions" (Dover Publ. Inc., New
York)
- Bagnato V , Marcassa L , Tsao C, Wang Y and Weiner J 1993 Phys. Rev. Lett. **70** 3225
- Bayliss N S 1937 Proc. Roy. Soc. **A158** 551
- Band Y B and Julienne P S 1992 Phys. Rev. **A46** 330
- Cline R A, Miller J D and Heinzen D J 1994 Phys. Rev. Lett. **73** 632
- Foucrault M, Millié Ph and Daudey J P 1992 J Chem Phys **96** 1257
- Gardner J R, Cline R A, Miller J D , Heinzen D J , Boesten H M J M and Verhaar B J 1995 Phys.
Rev. Lett. **74** 3764
- Herzberg G 1950 "Spectra of Diatomic Molecules" Van Nostrand Reinhold Company (New York
Cincinnati Toronto London Melbourne)
- Jablonski A 1945 Phys. Rev. **68** 78
- Jones KM, Maleki S, Bize S, Lett P D , Williams C J , Richling H , Knöckel H , Tiemann E , Wang
H, Gould P L and Stwalley W C 1996 Phys Rev A **54** R1006
- Julienne P S , Band Y B and Suominen K. -A. 1995 Phys. Rev. **A49** 3890
- Julienne P S 1996, to appear in J Res NIST special issue on BEC
- Kagan Yu, Shlyapnikov G V and Walraven J T M 1996 Phys. Rev. Lett. **76** 2670
- Lett P D, Helmerson K, Phillips W D, Ratliff L P , Rolston S L and Wagshul M E 1993 Phys. Rev.
Lett. **71** 788
- Lett P D 1996, private communication
- Leonhardt D and Weiner J 1995 Phys. Rev. **A52** R4332
- Marinescu M , Sadeghpour H R , Dalgarno A 1994 Phys. Rev. **A49** 982
- Marinescu M and Dalgarno A 1995 Phys Rev **A52** 311
- McAlexander W I, Abraham E R I, Ritchie N W M, Williams C J, Stoof H T C and Hulet R G 1995,
Phys Rev **A51** R871
- Miller J D , Cline R A and Heinzen D J 1993 Phys. Rev. Lett. **71** 2204

O'Malley T F, Spruch L and Rosenberg L 1961 J. Math. Phys. **2** 491

Ratliff L P , Wagshul M E , Lett P D , Rolston S L and Phillips W D 1994 J. Chem. Phys. **101**
2638

Shlyapnikov G V 1996, private communication in Les Houches workshop on Bose-Einstein
condensation

Stoof H T C 1994 Phys Rev A **49**, 3824

Tellinghuisen J 1973 J. Chem. Phys. **58** 2821

Tiesinga E, Williams C J, Julienne P S, Jones K M, Lett P D and Phillips W D 1996, to appear in J.
Res. NIST special issue on BEC

Thorsheim H R , Weiner J and Julienne P S 1987 Phys. Rev. Lett. **58** 2420

Verhaar B J, Gibble K and Chu S 1993 Phys Rev A **48** R3429

Wang H, Gould P L and Stwalley W C 1996 Phys. Rev. A **53** 126

Williams C J and Julienne P S 1994 J. Chem. Phys. **101** 2634

Table caption

Table 1: Photoassociation rate to $J_i = 0$ levels for all alkalis, in comparable conditions. The C_3 values for Na (Lett et al 1993), K (Wang et al 1996), Rb (Cline et al 1994) and Cs (estimated from asymptotic calculations of Marinescu and Dalgarno 1995) are those of the $1_g(P_{3/2})$ state, the value for Li (McAlexander et al 1995) is the one of $^3\Sigma_g^+$ state. The atomic density is 10^{11} cm^{-3} , the "Doppler" temperature is equal to $\hbar\Gamma/2$, the discrete level is located at 1cm^{-1} below the dissociation limit and the laser intensity is 10^7 Wm^{-2} . The given value of the photoassociation rate is an average value calculated using the lineshape area (it would roughly correspond to the case of a laser of width equal to 5MHz centered at the line maximum, E_r). The given value of the steady-state number of molecules and of the corresponding percentage corresponds to 10^7 atoms.

FIGURE CAPTIONS

Figure 1: Schematic diagram (not in scale) of the relevant energies, transitions and molecular states considered in the present work.

Figure 2: (a) to (c): s-wave radial continuum wavefunctions for the relative motion of two Cs atoms, assumed to yield the $^3\Sigma_u^+$ molecular ground state, for several temperatures $T=E/k_B$. Solid lines: numerical calculations; dotted lines: analytic expression, assuming a zero phaseshift. (d) numerical (solid line) and approximate (dotted line) vibrational wavefunction for the $(v_i = 289, J_i = 1)$ level ($\Delta_i = 1.107\text{cm}^{-1}$), in the $1_g(^2P_{3/2})$ excited molecular potential (dot-dashed line). The location of the outer turning point R_0 is indicated by arrows for two typical energy positions.

Figure 3: Computed effective length A as a function of E/k_B (in mK). Insert: s-wave radial continuum wavefunctions for the relative motion of two Cs atoms in the $^3\Sigma_u^+$ molecular ground state, for $T=0$, showing the determination of a negative scattering length L for the potential used in the present work

Figure 4: Overlap integral as a function of E/k_B (in mK), between the s-wave radial continuum wavefunction for the relative motion of two Cs atoms in the $^3\Sigma_u^+$ molecular ground state, and the vibrational wavefunction $(v_i = 289, J_i = 1)$ of the $1_g(^2P_{3/2})$ excited molecular state. The corresponding detuning is $\Delta_i = 1.107\text{cm}^{-1}$. Solid line: numerical calculation; dashed line: present analytical model, assuming $A=0$; dotted line: idem, assuming $A=80\text{a.u.}$; dot-dashed line: idem, assuming $A=-250\text{a.u.}$

Figure 5: Photoassociation rate as a function of the laser frequency $E_r/k_B = \hbar(\omega_i - \omega_L)/k_B$ (expressed in mK) Solid line: numerical calculation, dashed line: present analytical model, assuming $A=0$; dotted line: idem, assuming $A=80\text{a.u.}$; dot-dashed line: idem, assuming $A=-250\text{a.u.}$. Insert: Corresponding areas, normalized to the area of the numerical evaluation of the rate.

Figure 6: Photoassociation rate as a function of the laser frequency $E_r / k_B = \hbar(\omega_i - \omega_L) / k_B$ (expressed in mK), for several values of the angular momentum of the relative nuclear motion. (a) for a cold Lithium sample, at $T=1\text{mK}$; (b) for a cold Rubidium sample at $T=0.7\text{mK}$.

Figure 7: Mean kinetic energy for the uppermost vibrational levels of the $1_g(^2P_{3/2})$ excited molecular state of Cs_2 , as a function of their energy position $-E_b = -\hbar\Delta_i$ of this level. The lower bound of the energy range shown here corresponds to $v_i = 237$.

	Li	Na	K	Rb	Cs
$mass(a.m.u)$	7	23	39	85	133
$\Gamma_{np \rightarrow ns} (10^7 s^{-1})$	3.6	6.2	3.6	3.7	3.3
$C_3(a.u.)$	11.1	10.5	13.5	14.4	16.2
$\lambda_L(nm), D_2$ line	671	589	766	780	852
$2K(10^{10} s^{-1})$	1.6	1.7	2.0	2.0	2.2
$T_{Doppler}(mK)$	0.140	0.240	0.140	0.140	0.125
$\lambda_{th}(nm)$	113	48	48	32	27
$R_0^i(a.u.)$	135	132	145	147	153
$a(a.u.)$	9.2	6.1	5.3	4.1	3.6
$\hbar\omega_m(mK)$	1.35	0.43	0.21	0.094	0.055
$E_r(mK),$ line maximum	0.067	0.10	0.057	0.046	0.035
$\gamma_i(10^4 s^{-1})$	45	22	25	13	10
$\mathcal{N}_i,$ steady state	50400	13900	27200	14700	12300
%	0.50	0.14	0.27	0.15	0.12

TABLE 1.

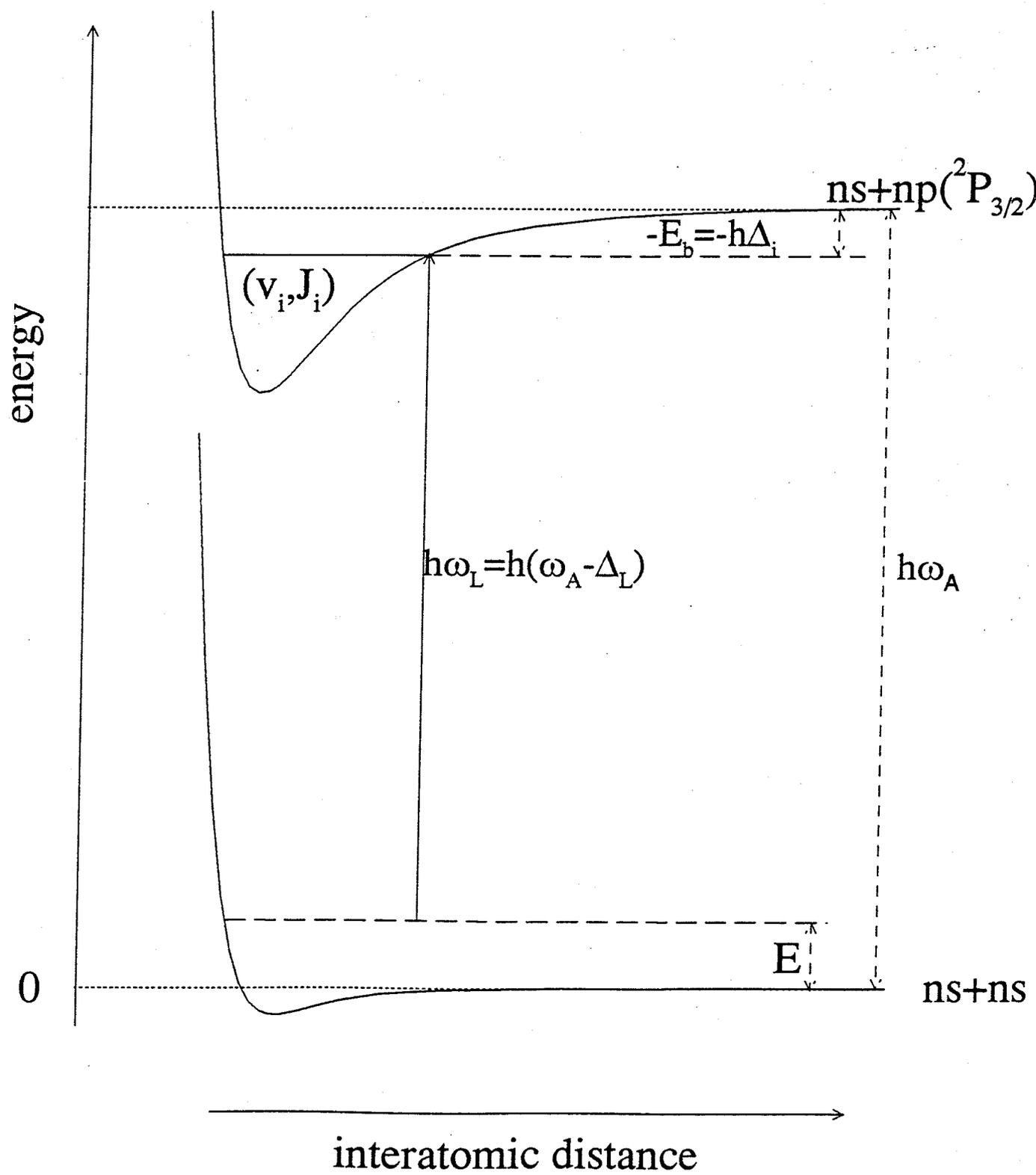


Figure 1

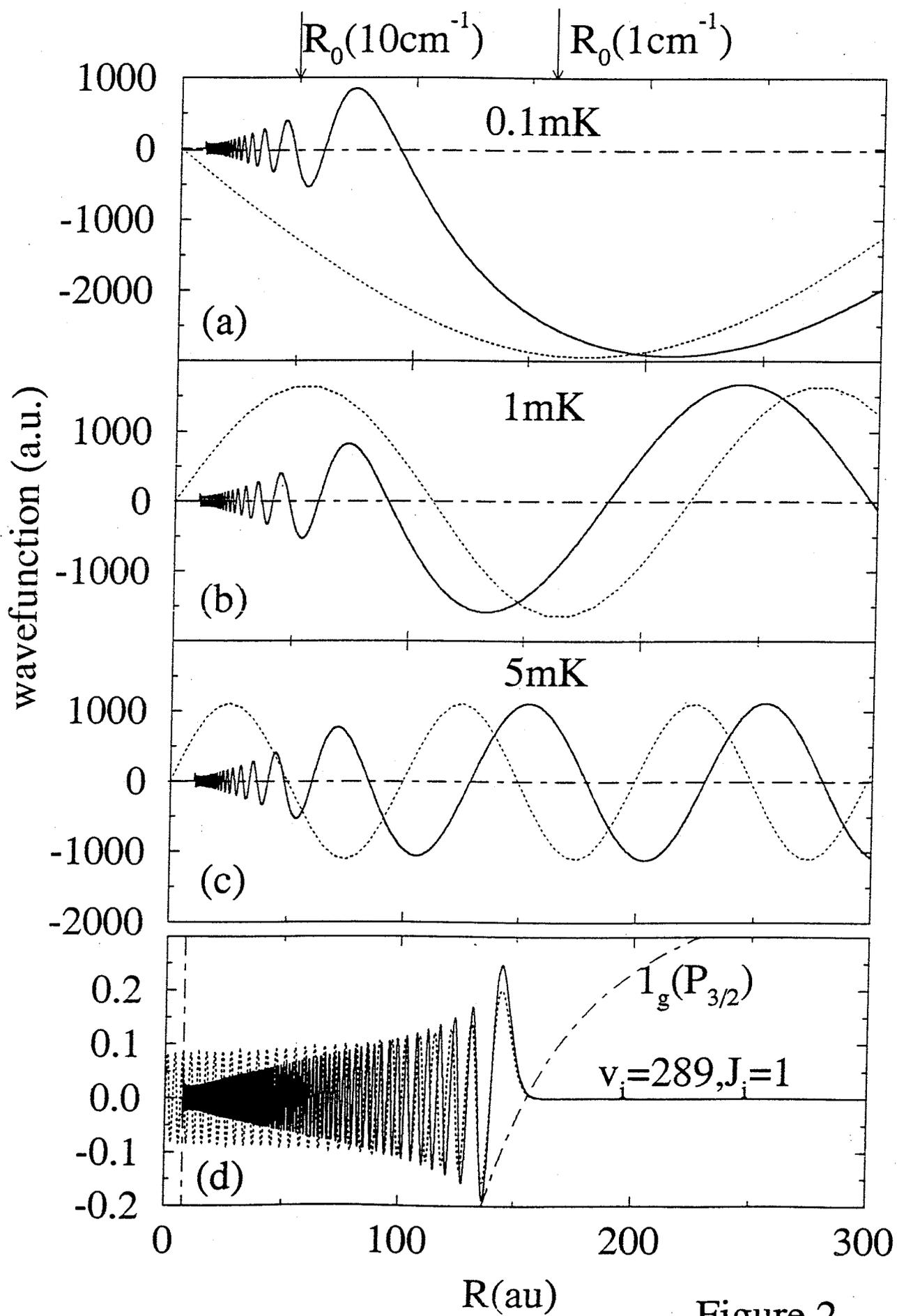


Figure 2

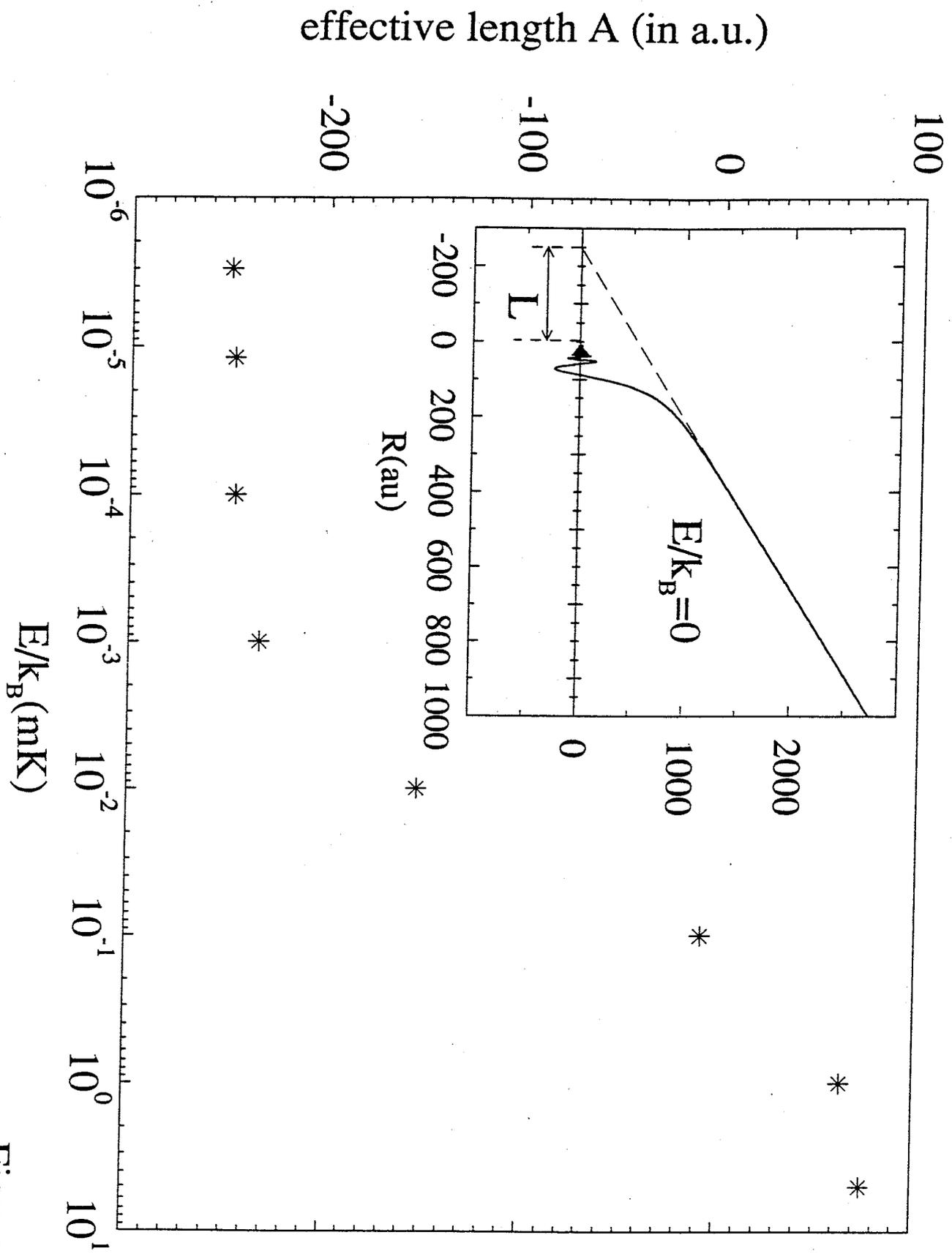


Figure 3

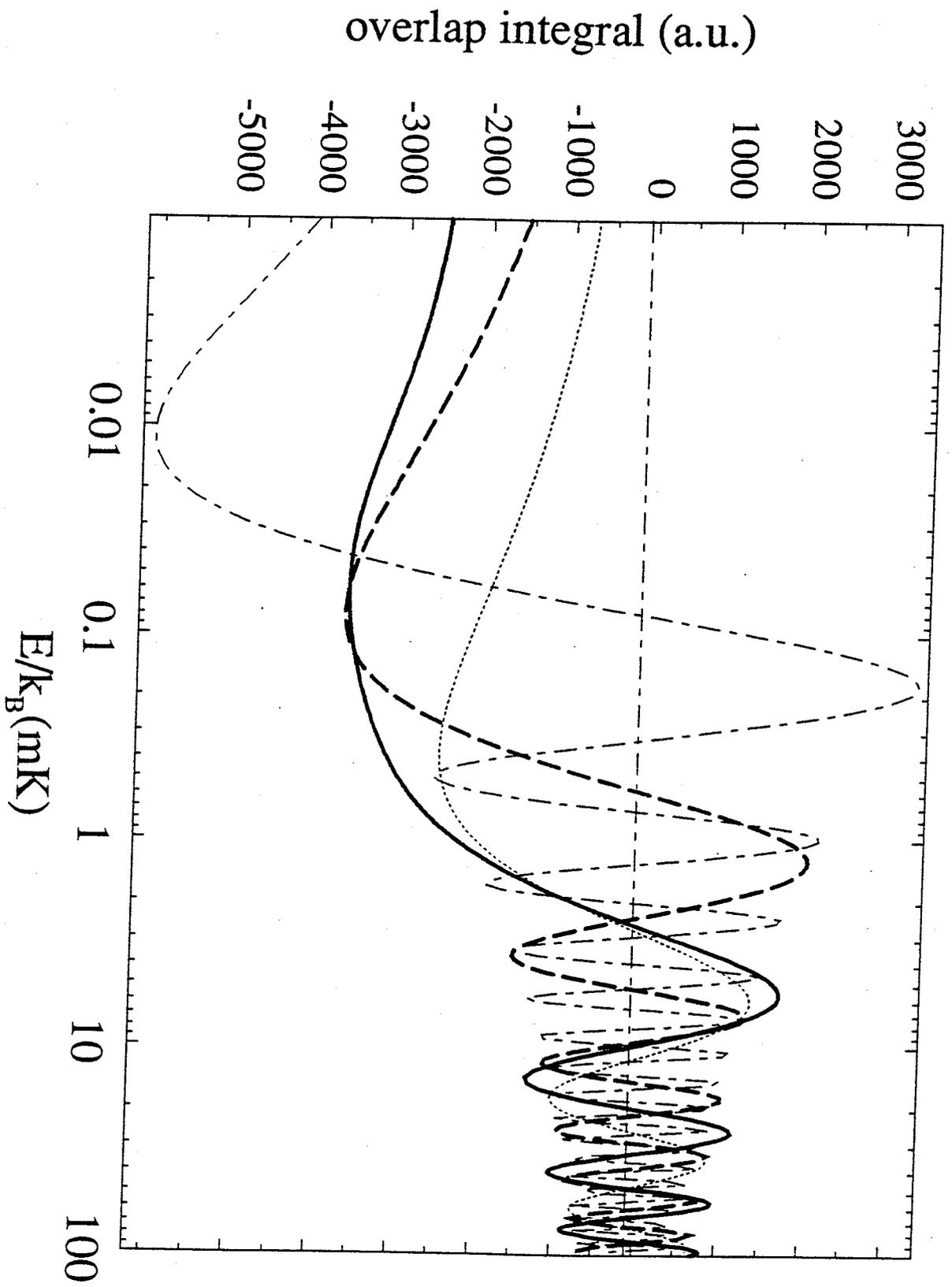


Figure 4

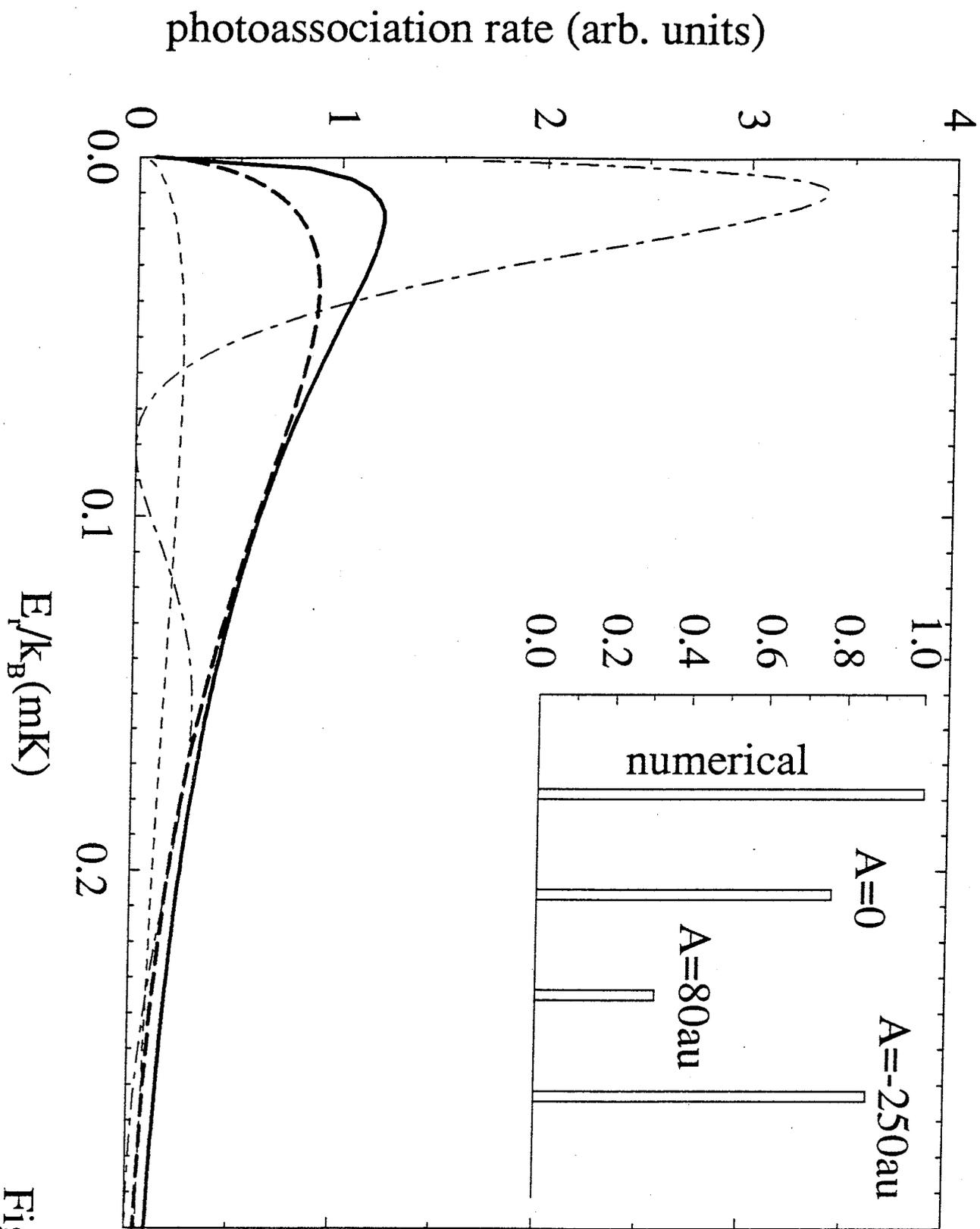


Figure 5

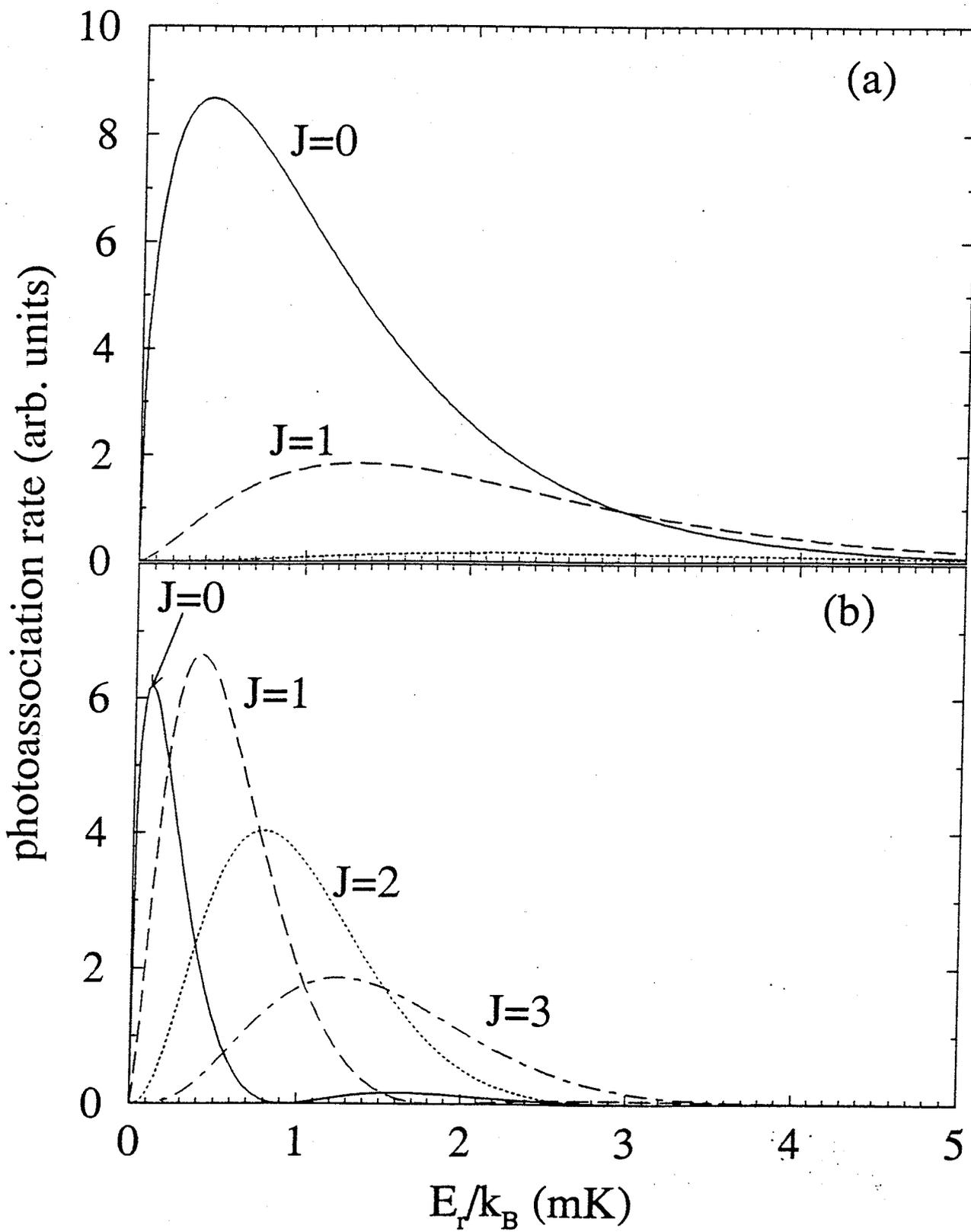


Figure 6

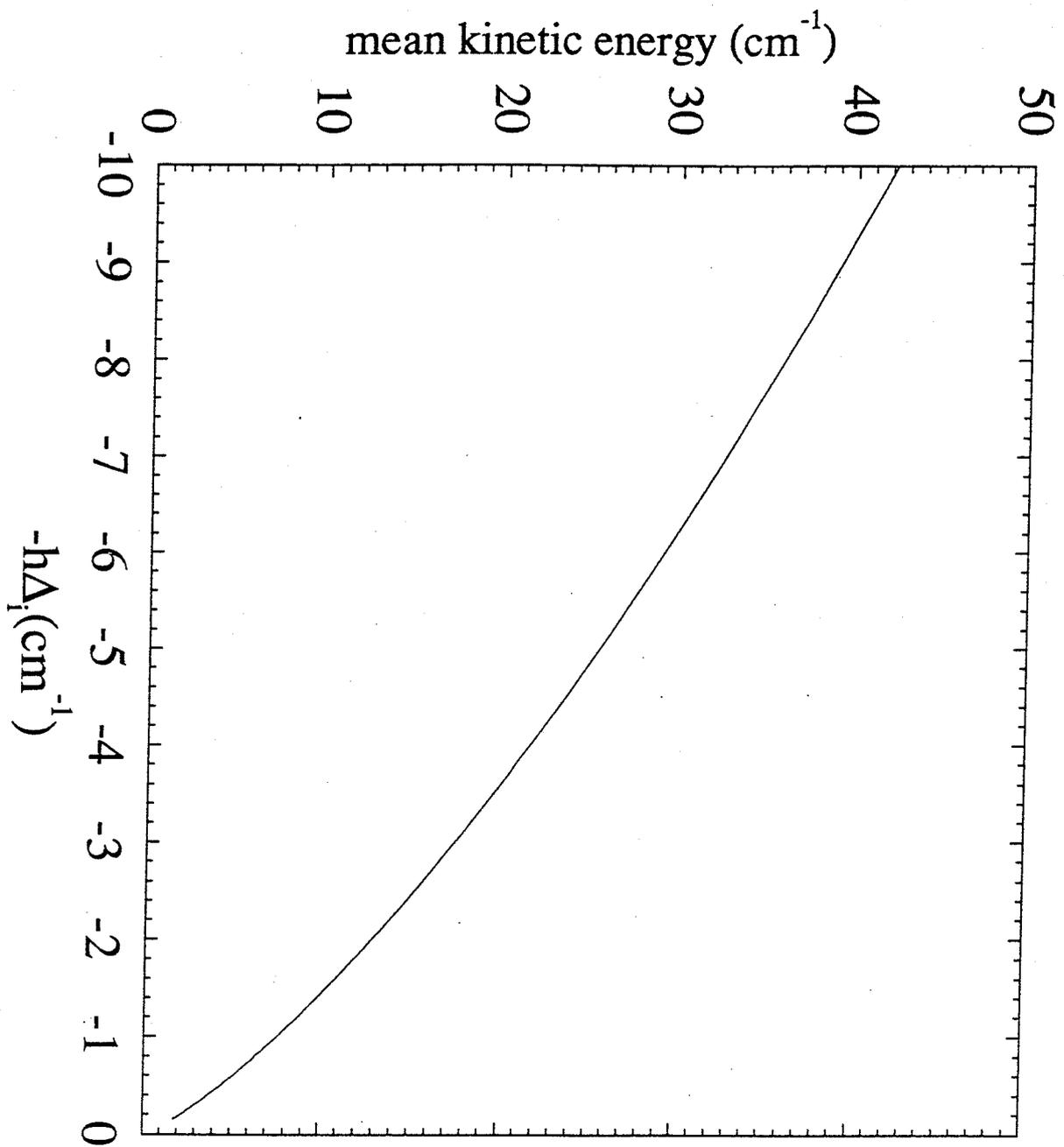


Figure 7

Table des matières

Introduction générale	1
Bibliographie	5
1. La molécule de Cs_2.....	9
1.1 Introduction	9
1.2 Les molécules diatomiques	11
1.2.1 Groupes de symétrie et molécules	11
1.2.2 Représentations irréductibles	14
1.2.3 Notations spectroscopiques	14
1.2.4 Solutions à longue distance internucléaire	17
1.2.5 Couplage des moments orbitaux	17
1.2.6 Couplage des spins.....	20
1.2.7 Propriétés de symétrie	21
1.2.8 Equation de Schrödinger.....	22
1.2.9 Hamiltonien du système et approximation de Born-Oppenheimer.....	25
1.2.10 Courbes de potentiel.....	28
1.2.11 Mouvement nucléaire et niveaux vibrationnels	30
1.2.12 Spin électronique et cas de Hund	34
1.2.13 Règles de sélection	38
1.2.14 Le principe de Franck-Condon.....	40
1.3 La molécule de Cs_2.....	43
1.3.1 Rappels sur l'atome de césium.....	43
1.3.2 La molécule	43
1.3.3 Les courbes de potentiel sans structure fine.....	45
1.3.4 Les courbes de potentiel avec structure fine	47
1.3.5 Les courbes de potentiel avec structure hyperfine.....	50
1.4 Conclusion.....	53
1.5 Bibliographie.....	55

2. Le piège magnéto-optique de césium.....	59
2.1 Introduction	59
2.2 Principe de fonctionnement du piège magnéto-optique.....	63
2.2.1 Force de pression de radiation	63
2.2.2 Refroidissement Doppler à une dimension.....	66
Atomes à deux niveaux	66
Mélasse Doppler.....	66
Limite du refroidissement Doppler.....	68
Configuration lasers de polarisation $\sigma^+ - \sigma^-$	70
Champ électromagnétique.....	70
Champ créé par le laser	71
Hamiltonien atomique.....	72
Formalisme de la matrice densité.....	75
Force radiative dans la configuration $\sigma^+ - \sigma^-$	79
2.2.3 Piégeage à une dimension	82
2.2.4 Piège magnéto-optique 1D dans le cas d'une transition J vers $J'=J+1$	85
Les mécanismes Doppler.....	85
Les mécanismes du piège magnéto-optique	91
2.2.5 Les mécanismes sub-Doppler	95
Mélasses sub-Doppler	95
Pièges magnéto-optiques sub-Doppler	98
2.2.6 Le piège magnéto-optique à trois dimensions.....	100
2.3 Dispositif expérimental.....	103
2.3.1 Vue d'ensemble.....	104
2.3.2 L'enceinte	105
Les pompes à vide.....	105
La pompe primaire	105
La pompe secondaire	106
Les pompes à ultravide	106
Les parois de l'enceinte.....	107
Les pièges mécaniques.....	107
Le dégazage.....	107
2.3.3 Les champs magnétiques	108
Compensation des champs magnétiques parasites.....	108
Les divers parasites	108
Les bobines de compensation.....	108

Les gradients de champ magnétique.....	109
Refroidissement des bobines.....	111
2.3.4 La source de césium.....	112
2.3.5 Les faisceaux lasers.....	112
Le système laser de piégeage.....	113
Le laser maître.....	113
La technique esclave maître.....	115
Modification, division et polarisation des faisceaux.....	116
La diode de repompage.....	117
Les modulateurs acousto-optiques.....	117
2.3.6 La détection.....	119
Le moniteur.....	119
La carte d'acquisition.....	119
La diode calibrée.....	119
2.3.7 Procédure expérimentale.....	120
2.4 Caractérisation du piège.....	121
2.4.1 Forme du piège.....	121
2.4.2 Nombre d'atomes.....	123
2.4.3 Densité.....	123
2.4.4 Température.....	123
2.4.5 Temps de chargement.....	124
2.4.6 Temps de dépompage.....	125
2.5 Conclusion.....	126
2.6 Bibliographie.....	127
3. La photoassociation.....	131
3.1 Introduction.....	131
3.2 Photoassociation moléculaire d'atomes froids.....	134
3.2.1 Photoassociation moléculaire.....	134
3.2.2 Principe d'une expérience de photoassociation.....	137
Méthode dite par perte d'atomes ou trap-loss.....	137
Analyse directe des molécules par photoionisation.....	139
3.2.3.Exemple d'application: Calcul de la constante moléculaire C_3	140
3.3 Expériences sur les autres alcalins.....	143

3.3.1 Lithium.....	143
3.3.2 Sodium.....	144
3.3.3 Potassium.....	146
3.3.4 Rubidium.....	147
3.3.5 Récapitulatif.....	150
3.4 Dispositif expérimental.....	151
3.4.1 Les lasers.....	151
Le laser à Argon.....	151
Le laser Titane:Saphir.....	152
Les modulateurs acousto-optiques.....	153
3.4.2 Méthodes de détection.....	154
Fluorescence.....	154
La détection des ions.....	154
Zone accélératrice.....	154
Les galettes de détection.....	155
Temps de vol.....	156
3.5 Méthodes expérimentales.....	157
3.5.1 Méthode par mesure de la fluorescence.....	157
3.5.2 Méthode de spectroscopie par temps de vol.....	159
3.5.3 Méthode par mesure totale des ions.....	161
3.5.4 Mesures préliminaires sur les atomes de Rydberg.....	164
3.5.5 Méthode par comparaison des ions.....	166
3.5.6 Conclusion.....	170
3.6 Observation d'une série vibrationnelle.....	171
3.6.1 Calcul de la proportion d'atomes dans chaque sous niveau du fondamental.....	175
Forme indépendante des équations de Bloch optiques.....	177
3.6.2 Couplage d'un état discret vibrationnel avec le continuum des états du piège.....	181
3.7 Aspects théoriques de la photoassociation.....	188
3.7.1 Hamiltonien du système.....	188
3.7.2 Hamiltonien et équation d'évolution.....	189
3.7.3 Etats moléculaires et matrice densité initiale.....	191
3.7.4 Traitement perturbatif.....	192
3.7.5 Matrice de couplage : approximation longue distance.....	194
3.7.6 Taux de photoassociation.....	198

3.7.7 Rôle de l'émission spontanée.....	199
Nombre de molécules formées.....	199
Réchauffement.....	202
3.7.8 Conclusion.....	203
3.8 Bibliographie.....	205
<i>Conclusion générale.....</i>	<i>209</i>
<i>Bibliographie générale.....</i>	<i>215</i>
<i>Publications.....</i>	<i>221</i>

