



Photo-association de l'hélium métastable au voisinage de la Condensation de Bose-Einstein et formation de dimères géants

Jérémie Léonard

► To cite this version:

Jérémie Léonard. Photo-association de l'hélium métastable au voisinage de la Condensation de Bose-Einstein et formation de dimères géants. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2003. Français. NNT : . tel-00004295

HAL Id: tel-00004295

<https://theses.hal.science/tel-00004295>

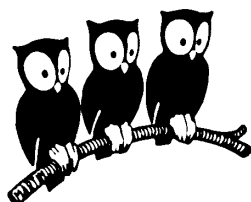
Submitted on 23 Jan 2004

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

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

DÉPARTEMENT DE PHYSIQUE
DE L'ÉCOLE NORMALE SUPÉRIEURE

LABORATOIRE KASTLER BROSSEL



THÈSE DE DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ PARIS VI
Spécialité : Physique Quantique

présentée par
Jérémie LÉONARD

pour obtenir le titre de Docteur de l'Université Paris VI

Sujet de la thèse :

PHOTO-ASSOCIATION DE L'HÉLIUM MÉTASTABLE
AU VOISINAGE DE LA CONDENSATION DE BOSE-EINSTEIN
ET FORMATION DE DIMÈRES GÉANTS

Soutenue le 21 Novembre 2003 devant le jury composé de :

Mme	F. MASNOU-SEEUWS	Rapporteur
M.	J. VIGUÉ	Rapporteur
M.	I. BLOCH	Examineur
M.	R. COMBESCOT	Examineur
M.	C. COHEN-TANNOUDJI	Président
Mme	M. LEDUC	Directrice de thèse
M.	M. WALHOUT	Membre invité

Remerciements

J'ai réalisé cette thèse au laboratoire Kastler Brossel du département de Physique de l'Ecole Normale Supérieure de Paris, où je fus initialement "affecté" par la Délégation Générale de L'Armement... Je remercie donc en tout premier lieu Michèle Leduc, à l'époque directrice du laboratoire, et la DGA qui ont permis cette "affectation" presque providentielle, et m'ont fait prendre mes fonctions sous les drapeaux au sein de l'équipe "Atomes Froids".

C'est ensuite encore à Michèle Leduc que je dois d'être resté au sein de cette équipe, de retour à la vie civile, pour y réaliser cette thèse et je la remercie de la confiance qu'elle m'a portée dès ce moment. Outre le travail scientifique que j'ai réalisé sous sa direction, j'ai appris aux côtés de Michèle à quel point le travail de recherche est un travail de communication, de rencontres et d'échanges. Je remercie d'ailleurs Michèle pour sa facilité à constituer des équipes au sein desquelles les compétences individuelles s'ajoutent et se complètent dans une ambiance de travail intense, extrêmement motivante et très chaleureuse.

Parmi l'ensemble des personnes qui ont contribué ou contribuent toujours au travail réalisé sur "la manip Hélium", je souhaite remercier tout particulièrement trois autres personnes qui ont eu également une contribution et un impact tout à fait central sur la déroulement et l'aboutissement de ma thèse, tant sur le plan scientifique que personnel et humain. En tout premier lieu, il s'agit de Franck Pereira Dos Santos, qui commençait sa deuxième année de thèse lorsque je suis arrivé dans l'équipe. Il a toujours su faire preuve de la patience qu'il faut, lorsqu'on est un thésard pressé par le temps et le poids de la charge, pour former un collègue plus jeune et je lui en suis extrêmement reconnaissant. J'ai énormément appris à son contact, autant sur la physique, que sur les techniques expérimentales, ou encore sur la façon d'organiser son activité lorsqu'on est en permanence submergé par la masse de travail à accomplir. Si l'occasion s'en présente je serais enthousiasmé de retravailler à ses côtés.

Ensuite, le travail que j'ai réalisé sur la photo-association doit énormément à ma rencontre avec Allard Mosk. Allard souhaitait faire un bref séjour sur notre expérience entre deux post-docs. Michèle l'a immédiatement accueilli, et en deux séjours d'un mois (février puis juin 2002), Allard nous a donné l'impulsion initiale qui nous a embarqué ensuite dans une aventure expérimentale et théorique nouvelle, qui je pense, devrait encore durer un certain temps. La collaboration avec Allard est restée régulière et extrêmement fructueuse. J'ai toujours une satisfaction réelle à discuter avec lui, et sa culture scientifique expérimentale et théorique ne cesse de m'impressionner.

Enfin, je souhaite remercier très chaleureusement Claude Cohen-Tanoudji. Il a toujours témoigné d'un intérêt très vif pour l'avancée de l'expérience, à toutes les étapes successives, et il s'est tout particulièrement investi, pour nous aider à comprendre la physique moléculaire. J'ai goûté le grand privilège d'apprendre à rédiger un article scientifique à ses côtés, et j'ai tenté, autant que je l'ai pu, de m'imprégner de la rigueur et de la clarté qui ressortent invariablement de son travail d'écriture scientifique, et des discussions que nous avons eues en général.

Cette thèse est le résultat d'une masse de travail considérable réalisé par un grand nombre de personnes qui se sont succédées en trois "générations d'équipes hélium". Je tiens à remer-

cier tout d’abord, les membres de ce que j’appellerais l’équipe “Condensation”: Franck, Francisco Perales, Junmin Wang et Carl Barrelet. C’est l’équipe au sein de laquelle j’ai découvert le vissage de boulons, le collage à la super glue de spires de bobines entre elles et sur les doigts, les fuites incolmatables du piège magnétique, l’implosion de la cellule de verre, les coupures de courants pendant les vacances, les étuvages multiples, les galères interminables pour arriver à piloter correctement le courant dans les bobines du piège magnétique, l’excitation des journées de manips pour transférer le nuage dans le piège magnétique, le travail automatique et abrutissant consistant à presser 500 fois par jour les touches “Entrée” de 2 ordinateurs pour synchroniser manuellement le démarrage de la séquence expérimentale et la prise d’images... Tout ça, à la seule fin de se voir une nuit, au labo, en train de crier “BEC, BEC, BEC!”, avec le sentiment d’avoir enfin tiré un beau résultat de cette grande enceinte vide!

Ensuite est venu le temps de l’automatisation de l’expérience, des séries innombrables de données sur les excitations collectives du gaz, et de Sylvain Schwartz et Erwan Jahier. Ils ont constitué l’équipe “Hydrodynamique”. Je souhaite les remercier chaleureusement tous les deux pour n’avoir pas démerité pendant cette période parfois difficile de ma thèse. La pression accrue que je ressentais juste après le départ de Franck m’a conduit à vouloir parfois contrôler trop de chose par moi même, ce qui a très certainement freiné leur prise de contact puis d’assurance avec le montage expérimental. Sur le plan humain en revanche, la “prise de contact” entre nous a été très rapide. L’ambiance a été des plus joviales, entretenue en particulier par les efforts constants de Sylvain en la matière, ce qui a parfois été bien utile pour maintenir le moral.

Enfin est arrivé le temps de la photo-association, confusément initié dans nos esprits par la rencontre avec Allard et la conférence des Houches de Mars 2002. Les expériences de photo-association ont commencé de prendre une tournure concrète avec le travail d’Erwan et d’Allard, dans la souffrance d’un été où toutes nos diodes lasers sont mortes successivement. Les premières raies de photoassociation ont été obtenues peu de temps avant l’arrivée de Tobias Müller et de Matt Walhout, qui constituent, avec Maximilien Portier arrivé plus tard, l’équipe “Photo-association” de ma thèse. Je tiens à les remercier tous les trois d’avoir contribué très activement et très efficacement à ce travail qui s’est avéré très productif pour l’équipe et pour moi en particulier qui ai découvert la physique moléculaire... J’ai en particulier passé une année complète fort agréable et studieuse avec Matt Walhout. Sur le plan scientifique nous avons appris ensemble quelques éléments de physique moléculaire. Mais Matt a également tenté de m’enseigner l’anglais et le métier de tour operator...

Outre ces différentes équipes, deux personnes ont eues des contributions plus espacées mais également plus durables dans le temps. En premier lieu, il s’agit d’Unnikrishnan qui revient tous les ans passer quelques mois dans l’équipe depuis les tous débuts de l’expérience. C’est un bonheur constant de travailler avec lui et de partager son enjouement si communicatif, et je l’en remercie très chaleureusement. Enfin, j’aimerais remercier également Ernst Rasel pour la source d’atomes très efficace qu’il a mise au point avant mon arrivée et que j’ai appris tant bien que mal à entretenir, ainsi que pour les discussions que nous avons échangées et les encouragements qu’il n’a jamais manqué de m’adresser.

Je remercie également l’ensemble des chercheurs du laboratoire, permanents ou en formation, qui ont contribué par de nombreux échanges d’idées et de matériel, à la réussite des

travaux reportés dans cette thèse. L’ambiance de travail dans la mezzanine a toujours été agréable, et je remercie pour cela l’ensemble des personnes qui, à un moment ou à un autre, y ont séjourné en même temps que moi.

Je tiens à remercier très sincèrement l’ensemble des membres du laboratoire, du Département de Physique et de l’Ecole Normale qui assument des fonctions autres que de recherche, mais dont la contribution est tout aussi capitale pour permettre la réussite de telles expériences. Je pense en particulier aux membres des secrétariats, des ateliers de mécanique et d’électronique, ainsi qu’aux membres des “Services Généraux”. Je salue ici leur travail, qui souvent doit être accompli dans l’urgence, afin de résoudre les problèmes les plus variés: pannes électriques, catastrophes de plomberie, nécessité pressante de ressouder, redécouper, ré-usiner, réparation express de boîtes d’électronique “fondues”, fourniture de matériel de bureau, d’outils, lutte anti-virus informatique, nettoyage de pompe à vide, commandes d’équipements, recherche du bon code de crédit, code d’inventaire, code de fournisseur, et quantité d’autres services...

Je remercie les membres de mon jury de thèse: Immanuel Bloch et Rolland Combescot pour l’intérêt qu’ils ont porté à mon travail, ainsi que Françoise Masnou-Seeuws et Jacques Vigué pour avoir accepté la tâche de rapporteurs et pour les discussions enrichissantes que nous avons eues.

J’adresse un message d’encouragement à la “nouvelle équipe hélium” composée d’Umakant Rapol, de Jae-Wan Kim et de Steven Moal. Je déplore n’avoir pas eu le temps de travailler plus longtemps à leurs côtés, mais suis persuadé qu’ils obtiendront très prochainement de beaux résultats avec les expériences de photo-association. Courage!

Je souhaite également remercier J. Walraven, M. Inguscio, T. Guglielmo, ainsi que Torsten Petelski et les membres du LENS pour m’avoir permis de passer deux séjours très agréables et enrichissants à Florence, autour d’un magnifique MOT bleu de strontium, juste avant puis juste après ma soutenance de thèse.

Enfin, bien que j’aie fait ma thèse dans une cave, je garde un bon souvenir de cette période. Je dois en grande partie ce bon souvenir à l’ensemble des personnes (amis, famille) qui ont partagé des instants de ma vie extérieure à cette cave. Je ne dresserai pas ici une longue liste de noms, mais je remercie tous ceux qui partagent avec moi le souvenir de ces moments de détente. Je remercie tout spécialement Nadège.

Table des matières

1	Introduction	13
1.1	L'atome d'hélium métastable	15
1.1.1	L'état métastable triplet	15
1.1.2	La manipulation laser de He^*	17
1.2	Les collisions Penning	17
1.3	La longueur de diffusion	19
1.4	Plan de la thèse	20
2	Piégeage magnétique...	23
2.1	Production d'un jet intense d'atomes d'hélium métastable	23
2.1.1	La source d'atomes métastables	23
2.1.2	Collimation et épuration du jet atomique	26
2.1.3	Le système laser	26
2.1.4	Le système à vide	27
2.2	Ralentissement, piégeage et pré-refroidissement de He^*	28
2.2.1	Le ralentisseur Zeeman	28
2.2.2	Le piège magnéto-optique (MOT)	29
2.2.3	Collisions Penning assistées par lumière	30
2.3	Piégeage magnétique	31
2.3.1	Réalisation d'un piège magnétique	31
2.3.2	Transfert du MOT vers le piège magnétique	34
2.3.3	Caractérisation expérimentale du piège	36
3	Production d'un condensat de He^*	39
3.1	Refroidissement évaporatif et condensat de Bose-Einstein	40
3.1.1	Le refroidissement évaporatif	40
3.1.2	Observation de la Condensation de Bose-Einstein	41
3.2	Caractérisation de la transition de phase	43
3.2.1	Ajustement des images d'absorption	43

3.2.2	Mesure de la température critique	46
3.2.3	Calibration du nombre d'atomes	47
3.3	Etude de la fin de rampe d'évaporation	48
3.3.1	Régime d'emballlement	49
3.3.2	Taux de chauffage	50
3.3.3	Vers le régime hydrodynamique?	53
4	Détermination de la longueur de diffusion.	55
4.1	Collision élastique de deux atomes ^4He dans l'état 2^3S_1	55
4.1.1	Etats électroniques d'une paire $2^3S_1 + 2^3S_1$	55
4.1.2	Collisions froides dans l'état électronique $^5\Sigma_g^+$	57
4.1.3	Longueur de diffusion	59
4.2	Mesure de la longueur de diffusion à partir du condensat	63
4.2.1	L'approximation de champ moyen	63
4.2.2	Mesure des rayons du condensat <i>in situ</i>	64
4.2.3	Détermination de a	65
4.2.4	Conclusion	66
4.3	La photo-association d'atomes froids	67
4.3.1	Schéma de principe	67
4.3.2	Le principe de Franck-Condon	68
4.3.3	Mesure de la longueur de diffusion	71
5	Expériences de PA à un photon	75
5.1	Introduction à la photo-association de He^*	75
5.1.1	Les différents types de potentiels accessibles	75
5.1.2	Mesures précédemment réalisées dans $^4\text{He}^*$	77
5.1.3	Molécules à purement longue portée	78
5.1.4	Acquisition des spectres de photo-association	80
5.2	Spectres préliminaires de photo-association	82
5.2.1	Balayage en fréquence du laser de PA	82
5.2.2	Signal détecté	85
5.2.3	Dans le rouge de la raie atomique D_2	86
5.2.4	Dans le rouge de la raie atomique D_0	88
5.3	Spectroscopie de haute résolution au voisinage de D_0	89
5.3.1	Mesure précise de la fréquence du laser de photo-association	89
5.3.2	Détection calorimétrique des spectres	90
6	Potentiels adiabatiques liés à $2^3S + 2^3P$	93

6.1	Cadre de la description théorique	94
6.1.1	Approche perturbative du problème	94
6.1.2	Le mouvement des noyaux	95
6.1.3	Résolution de l'équation de Schrödinger	96
6.2	États électroniques moléculaires	98
6.2.1	Introduction	98
6.2.2	Espace des états électroniques	99
6.2.3	Nombres quantiques moléculaires	100
6.2.4	États propres électroniques dans les cas limites de Hund	101
6.2.5	Récapitulatif	102
6.3	Écriture explicite de l'hamiltonien électronique	102
6.3.1	L'interaction dipôle-dipôle résonante	102
6.3.2	Description de la structure fine	104
6.4	$2^3S - 2^3P$, dans l'approximation des noyaux fixes	105
6.4.1	Diagonalisation de $\hat{H}_e$	105
6.4.2	Existence des puits de potentiel à purement longue portée	105
6.4.3	Sous-Espace <i>ungerade</i>	107
6.4.4	Sous-Espace <i>gerade</i>	107
6.5	Traitement du mouvement des noyaux...	110
6.5.1	Couplage entre les degrés de liberté électroniques et de rotation	110
6.5.2	Effets de la vibration sur l'état électronique	111
7	Dimères géants d'hélium	113
7.1	Calcul des états liés à purement longue portée	113
7.1.1	États électroniques à purement longue portée	114
7.1.2	Nombre quantique de rotation J : règles de sélection et statistique de Bose-Einstein	114
7.1.3	Calcul des énergies de liaison	116
7.1.4	Dimères géants	118
7.2	Détermination expérimentale des énergies de liaison	119
7.2.1	Position du problème	119
7.2.2	Lois de conservation	121
7.2.3	Fonction de distribution de la paire initiale d'atomes	122
7.2.4	Calcul du décalage moyen des raies	123
7.2.5	Mesure expérimentale du décalage des raies moléculaires	124
7.3	Comparaison entre théorie et expérience pour le puits 0_u^+	127
7.3.1	Confrontation des résultats théoriques et expérimentaux	127
7.3.2	Mise en évidence de l'effet de retard	128

7.3.3	Validité de l'approche adiabatique	129
7.3.4	Mesure de la durée de vie radiative de $\text{He}(2^3P)$	131
7.4	Mécanismes de la détection calorimétrique	131
7.4.1	Observations expérimentales de l'effet "calorimétrique"	131
7.4.2	Largeur de raie	134
7.4.3	Interprétation semi-quantitative du chauffage	135
7.4.4	Discussion	138
7.4.5	Conclusion	138
8	Interprétation du spectre dans le rouge de D_2	141
8.1	Spectre de raies et "fond" de pertes non résonantes	142
8.1.1	Introduction	142
8.1.2	Collisions Penning assistées par lumière	142
8.1.3	Composantes discrètes du spectre	143
8.2	Identification des raies observées dans le rouge de D_2	144
8.2.1	Principe de la méthode de "la phase accumulée"	145
8.2.2	Application au spectre observé dans le rouge de D_2	146
8.2.3	Conclusion	148
9	Prolongements	151
9.1	Expériences à 1 photon	151
9.1.1	Compréhension fine des collisions optiques	151
9.1.2	Interprétation du spectre dans le rouge de D_2	153
9.1.3	Mesure de la longueur de diffusion	154
9.1.4	Interprétation du chauffage	156
9.2	Expériences à 2 photons	157
9.2.1	Principe	157
9.2.2	Réalisation expérimentale	159
9.3	Évolution du montage expérimental	162
10	Conclusion	163
A	Détection par absorption	167
A.1	Imager un nuage d'hélium métastable	167
A.2	Interprétation quantitative des images d'absorption	169
A.3	Courants de Foucault et méthodes de détection	170
A.4	Expérience de chute libre	171
A.4.1	Calibration du grandissement	171

A.4.2	Chute libre d'un condensat	173
B	Vers le régime hydrodynamique	175
B.1	Modes collectifs d'oscillation du gaz classique	175
B.2	Expériences et résultats	177
C	Complément au chapitre 6	191
C.1	Combinaisons linéaires d'orbitales atomiques...	191
C.1.1	Le cas $2^3S + 2^3S$	191
C.1.2	Le cas $2^3S + 2^3P$	192
C.2	L'interaction dipôle-dipôle résonante	194
C.2.1	L'interaction dipôle-dipôle retardée	194
C.2.2	Éléments de matrice de $\hat{U}(R)$	195
C.2.3	États propres de $\hat{U}(R)$	196

Chapitre 1

Introduction

La condensation de Bose-Einstein est une transition de phase dictée par la statistique quantique, et prédite dès 1924 dans le cas du gaz parfait de bosons identiques [1, 2]. Il faut cependant attendre jusqu'en 1995 pour observer l'état de la matière initialement imaginé par Einstein, dans des gaz d'alcalins suffisamment dilués pour s'approcher du gaz parfait [3]. Ces travaux ont été récompensés par l'attribution du prix Nobel de Physique 2001 à Eric A. Cornell, Wolfgang Ketterle et Carl E. Wieman. Depuis 1995, de très nombreux travaux ont conduit à une compréhension approfondie des propriétés du condensat. Les propriétés de cohérence (voir par exemple [4, 5, 6]), ainsi que de superfluidité, avec la formation de vortex (voir, par exemple [7, 8]) ont été et sont toujours abondamment étudiées (voir également l'article de revue [9]).

L'observation de la condensation de Bose-Einstein dans les gaz dilués a été le fruit d'efforts expérimentaux et technologiques importants vers un contrôle très précis des degrés de libertés internes et externes des atomes. Des développements plus récents ont démontré la possibilité de contrôler également *les interactions* au sein des gaz dilués ultra-froids. En particulier, l'utilisation de résonances de Feshbach permet de passer, à volonté, d'un gaz parfait à un gaz en interactions effectives attractives ou répulsives éventuellement fortes, menant jusqu'à la production contrôlée de molécules (voir par exemple [10, 11]). Également, l'utilisation de réseaux optiques permet de contrôler la durée des interactions de paires, autorisant, par exemple, la fabrication contrôlée d'états intriqués impliquant un grand nombre d'atomes [12].

Les interactions, les degrés de libertés internes et externes, ainsi que la dimensionalité du gaz, deviennent contrôlables avec un degré de sophistication tel que les gaz dilués ultra-froids peuvent désormais constituer des systèmes modèles pour étudier des problèmes complexes abordés par la physique de la matière condensée. En effet, citons trois exemples actuels. Le piégeage de condensats de Bose-Einstein dans des réseaux optiques tri-dimensionnels est décrit par le même hamiltonien que celui qui prédit la transition superfluide / isolant de Mott [13]. Les gaz bosoniques dilués constituent donc un système modèle pour étudier cette transition avec un contrôle complet des interactions [14]. De même les atomes d'un condensat bi-dimensionnel en rotation rapide sont formellement décrits par le même hamiltonien que celui qui conduit à l'observation de l'effet Hall quantique dans un gaz d'électrons bi-dimensionnel [15]. Enfin, le refroidissement d'atomes neutres fermioniques ayant des interactions attractives

conduit à un système modèle pour étudier la transition de phase BCS [16, 17], puisque l'hamiltonien est formellement le même que celui qui décrit l'appariement d'électrons dans un cristal, conduisant à l'observation de la supra-conductivité en physique des solides.

Le contrôle des interactions est donc un défi scientifique actuel majeur dans la physique des gaz dilués ultra-froids. Les collisions élastiques, tout d'abord, régissent les échanges d'énergie cinétique entre particules et déterminent la possibilité de refroidir le gaz par évaporation (voir le chapitre 3). Ensuite, elles gouvernent l'interaction effective entre particules, et leur ajustement éventuel ouvre la voie aux développements cités ci-dessus. Par ailleurs, les collisions inélastiques doivent également rester sous contrôle, puisqu'elles limitent la durée de vie de l'échantillon gazeux.

Les possibilités de détection du gaz ultra-froid sont aussi une question centrale. Aujourd'hui, parmi l'ensemble des atomes observés dans l'état de condensat de Bose-Einstein, l'hélium 4 est le seul pour lequel la condensation soit obtenue alors que l'atome est dans un état électronique excité, métastable, noté He^* tout au long de ce manuscrit. Cette propriété en fait un cas tout à fait à part, et s'avère un atout *a priori* extrêmement intéressant. En effet, les atomes de He^* possèdent suffisamment d'énergie interne (~ 20 eV) pour ioniser presque tous les autres éléments de la table périodique de Mendeleïev, produisant des électrons détectables avec une grande efficacité. Cette détection électronique a permis, par exemple, à partir d'un gaz froid de néon métastable (non condensé) de réaliser la mesure directe de franges d'interférences d'ondes de matière d'atomes neutres [18], ou encore de la fonction de corrélation à deux corps dans le gaz dilué ultra-froid, mettant en évidence le phénomène de groupement de bosons [19]. Cette détection efficace et porteuse de résultats expérimentaux spectaculaires, est impossible avec les autres espèces atomiques condensées jusqu'alors. Elle a très largement motivé la course vers la condensation de gaz rares métastables d'hélium et de néon. (À ce jour, la condensation de Bose-Einstein n'a encore jamais été observée pour le néon [20, 21].)

Cependant, la métastabilité de He^* (Ne^*) représente une embûche supplémentaire sur la route vers la condensation de Bose-Einstein. En effet, un échantillon froid de gaz rare métastable est le siège de collisions (inélastiques) ionisantes, dites collisions Penning [22], extrêmement efficaces et inexistantes dans les autres gaz dilués condensés. La durée de vie du nuage gazeux piégé et refroidi en est menacée. Ainsi, le succès du refroidissement évaporatif, et l'observation de la condensation de Bose-Einstein, sont conditionnés à l'inhibition pure et simple des collisions Penning, ce qui constitue une forme radicale de contrôle des interactions inélastiques. Cette inhibition a été prédite [23] puis démontrée dans le cas d'un échantillon de He^* gazeux polarisé de spin (voir le paragraphe 1.2).

Avant l'observation du condensat de Bose-Einstein (BEC), la section efficace de collision élastique au sein du gaz ultra-froid était assez largement inconnue. Cette inconnue, ajoutée à la certitude de collisions inélastiques toujours très efficaces, bien que partiellement inhibées, a rendu la course vers la condensation de Bose-Einstein très hasardeuse dans le cas de He^* . La première observation de la condensation de l'hélium 4 métastable (He^*), réalisée en Février 2001, au laboratoire Charles Fabry (Institut d'Optique, Orsay) et, quelques jours après, dans notre équipe, a été, en réalité, le résultat d'un pari risqué [24, 25, 26, 27, 28]. Notre expérience a été conçue dans le but initial d'observer la condensation de Bose-Einstein. Il était capital que règne, dans l'enceinte à vide, une pression résiduelle la plus basse possible, afin de ne pas

nuire davantage à la durée de vie du nuage froid. Aussi, il a été choisi de ne placer aucun détecteur électronique dans l'enceinte à vide, et de mettre en œuvre une détection optique du nuage, analogue à celle réalisée sur les alcalins. Aujourd'hui, la démonstration expérimentale de la condensation de Bose-Einstein de l'hélium métastable a été faite. Les propriétés collisionnelles (élastiques et inélastiques), bien que toujours mal connues, s'avèrent assez favorables à l'obtention d'un condensat par les méthodes usuelles. La mise en œuvre d'une détection électronique, permettant la détection directe des atomes neutres, ou des ions qu'ils produisent, est désormais devenue une évolution logique de notre expérience.

Compte tenu de l'ambition décrite ci-dessus pour la physique atomique, et en particulier pour les gaz dilués d'hélium métastable qui offrent une possibilité de détection incomparable, il est devenu indispensable de sonder précisément les collisions élastiques et inélastiques au sein du gaz. Les expériences de photo-association (PA) sont un outil puissant pour sonder ces interactions [29, 30, 31, 32]. Tout d'abord, elles ont montré leur efficacité à mesurer les longueurs de diffusion (décrivant les collisions élastiques, voir le chapitre 4) dans le cas des alcalins. Dans le cas de l'hélium métastable, elles permettent aussi de sonder des canaux de collisions inélastiques qui n'existent pas dans les autres gaz dilués sur lesquels les techniques de photo-association ont été développées. Un des objectifs de telles expériences est donc aussi d'étudier les mécanismes des collisions Penning [33], voire également de les contrôler. En effet, outre la polarisation de l'échantillon gazeux, une autre façon d'inhiber les collisions Penning est simplement de maintenir les atomes suffisamment distants les uns des autres. Une première idée consiste alors à les plonger dans un réseau optique avec un atome unique par site, dans une situation où aucune interaction de paire n'existe plus, toutes les interactions sont alors inhibées. Les situations où les collisions Penning sont inhibées mais où des interactions de paires restent possibles sont probablement plus intéressantes. Une telle situation a été explorée au cours de cette thèse, en démontrant pour la première fois l'existence de dimères géants d'hélium. Ces molécules sont constituées d'une paire d'atomes qui interagissent suffisamment pour former un état lié, tout en maintenant une distance interatomique suffisamment grande pour éviter l'auto-ionisation de la paire. Une grande partie de cette thèse est consacrée à l'étude expérimentale et théorique de ces dimères géants.

Avant de présenter le plan de cette thèse, ce premier chapitre introduit aux propriétés électroniques puis collisionnelles spécifiques de l'hélium métastable. Il en ressort que ces dernières sont encore mal connues. Des expériences de photo-association ont donc été engagées, dans le courant de l'année 2002, dans le but de sonder ces propriétés. Elles constituent, au sein de notre équipe, une orientation scientifique nouvelle vers la compréhension, voire le contrôle des interactions de paires dans un gaz ultra-froid d'hélium métastable.

1.1 L'atome d'hélium métastable

1.1.1 L'état métastable triplet

A l'instar des autres gaz rares, l'isotope le plus abondant de l'hélium, ^4He , est un boson de spin nucléaire nul. Il n'a donc pas de structure hyperfine. Quelques uns des niveaux

électroniques de l'hélium 4 sont représentés sur la figure 1.1. Le premier niveau excité est un niveau triplet 2^3S_1 , qui se trouve 19.8 eV au dessus de l'état fondamental, 1^1S_0 . C'est la raison pour laquelle l'excitation de l'hélium par des transitions optiques à partir de l'état fondamental est difficile, car elle nécessiterait l'utilisation de lasers émettant dans l'UV lointain. Elle peut néanmoins se faire par bombardement électronique. Moos et Woodworth ont mesuré un taux de transition de l'état 2^3S_1 vers l'état fondamental de $1.10(33) \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ [34]. Cette mesure est en accord avec des calculs théoriques qui prédisent un taux de transition de $1.272 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ [35, 36], ce qui correspond à une durée de vie de 7860 s (soit un peu plus de 2 heures). L'état 2^3S_1 ne peut se désexciter radiativement que par une transition de type dipolaire magnétique, ce qui explique sa très grande durée de vie. C'est donc un état métastable et, comparée au temps moyen que dure la contribution d'un atome à notre expérience, sa durée de vie peut être considérée comme infinie.

D'autres états triplets peuvent être excités à partir de cet état métastable, et ils se désexcitent préférentiellement vers 2^3S_1 plutôt que vers le niveau fondamental singulet, à cause de la règle de sélection $\Delta S = 0$. Ainsi l'état 2^3S_1 , que l'on désignera désormais par He^* , peut être considéré comme un niveau fondamental "effectif" à partir duquel des transi-

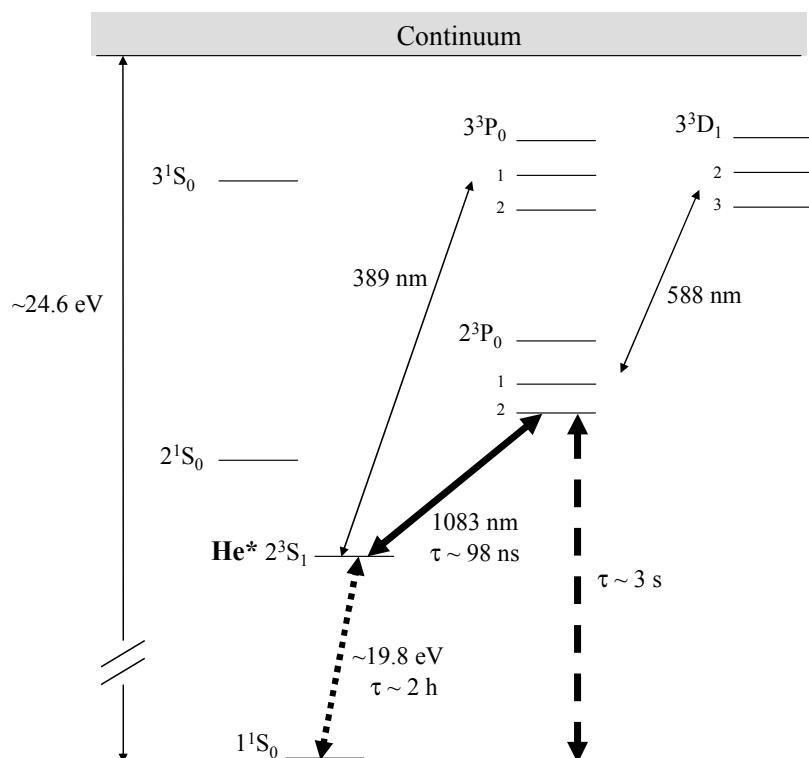


FIG. 1.1 – Quelques niveaux de la structure électronique de l'hélium 4.

tions optiques fermées rendent possible le refroidissement laser. Le niveau 2^1S_0 est lui aussi métastable. Cependant, sa durée de vie n'est que de ~ 20 ms, et c'est un niveau singulet. Par conséquent, il n'existe pas de transitions fermées à partir de 2^1S_0 puisque les niveaux excités peuvent toujours se désexciter vers le fondamental; le refroidissement laser est impossible à partir de cet état.

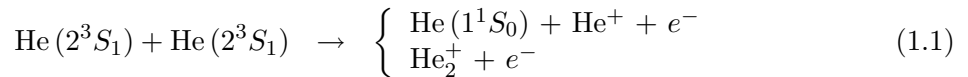
La métastabilité de He^* , et de certains états excités des gaz rares en général, les rend particulièrement attractifs en physique atomique, car leur très grande énergie interne autorise une détection électronique, déjà évoquée ci-dessus. Lors d'une collision avec un autre atome, une molécule, ou encore une surface, un atome He^* peut se désexciter et libérer une énergie suffisante pour arracher un électron au partenaire de la collision avec une probabilité en général proche de 1. Cette propriété rend sa détection très aisée, car l'électron produit peut facilement être accéléré, et amplifié, produisant un courant électrique détectable. Ainsi, ces atomes neutres peuvent, en principe, être détectés presque "un par un". Cette technique est utilisée sur notre expérience pour mesurer le flux d'atomes métastables produits. Elle a été abondamment utilisée dans notre groupe pour détecter le nuage froid obtenu lors des expériences de refroidissement sub-recul (VSCPT) [37]. Enfin, elle est également utilisée dans l'expérience d'Orsay pour détecter le nuage gazeux, en le laissant tomber, sous l'effet de la gravité, sur une galette à micro-canaux. La distribution des temps d'arrivée des atomes renseigne sur la distribution des vitesses initiales, et donc sur la température de l'échantillon.

1.1.2 La manipulation laser de He^*

Depuis l'état 2^3S_1 , une transition de longueur d'onde $\lambda = 1083$ nm permet d'exciter l'état $2^3P_{J=0,1,2}$ qui possède une structure fine. Celle-ci est très bien connue [38]: $\Delta_{J=0 \leftrightarrow 1} = 29.616950$ GHz et $\Delta_{J=1 \leftrightarrow 2} = 2.291175$ GHz. Ces mesures permettent de tester la théorie de l'électrodynamique quantique et constituent une détermination indirecte de la constante de structure fine α [39]. Dans notre expérience, des atomes d'hélium métastables sont produits dans l'état triplet, puis manipulés par laser à l'aide de la transition fermée $2^3S_1 \leftrightarrow 2^3P_2$. La largeur naturelle de l'état excité est $\Gamma/2\pi = 1.6248$ MHz [40], ce qui correspond à une durée de vie de $\tau \sim 98$ ns. L'intensité de saturation de cette transition est $I_{\text{sat}} = 0.16$ mW/cm². Notons que les transitions $2^3S_1 \leftrightarrow 2^3P_1$ et $2^3S_1 \leftrightarrow 2^3P_0$ ont aussi été utilisées pour des expériences de refroidissement sub-recul (VSCPT), pratiquées à l'ENS [37]. On peut aussi exciter l'état métastable triplet avec la raie $2^3S_1 \leftrightarrow 3^3P$ à 389 nm. Cette transition est utilisée pour réaliser un piège magnéto-optique (MOT) d'hélium métastable à Amsterdam [41]. Enfin, on peut exciter le niveau 2^3P vers le niveau 3^3D , à 588 nm: c'est ce qu'a fait une équipe japonaise [42] pour mesurer la fluorescence d'un MOT d'hélium métastable.

1.2 Les collisions Penning

Dans la marche vers la condensation de Bose-Einstein, la métastabilité de He^* devient un inconvénient majeur. En effet, une paire d'atomes métastables a une énergie suffisante pour ioniser l'un d'entre eux, selon les processus suivants:



La première réaction, qui produit un atome dans l'état fondamental, un ion et un électron, est appelée ionisation Penning [22]. La seconde, produisant un ion moléculaire, est appelée ionisation associative, et est minoritaire [43]. Ces réactions conduisent à un taux de pertes à *deux corps* $\beta\bar{n}$, proportionnel à la densité moyenne du nuage $\bar{n}$. Ainsi, le nombre N d'atomes froids piégés diminue dans le temps selon la loi suivante:

$$\frac{dN}{dt} = -\beta\bar{n}N.$$

Ces processus d'ionisation sont redoutablement efficaces, conduisant à une constante de taux de perte $\beta \sim 2 \times 10^{-10} \text{ cm}^3.\text{s}^{-1}$, connue à un facteur 2 près [44]. Un tel taux de perte est rédhibitoire. Pour une densité typique de $5 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$, atteinte au voisinage de la condensation, la durée de vie de l'échantillon serait, dans ces conditions, de l'ordre de $1/(\beta\bar{n}) \sim 0.1 \text{ ms}$.

Cependant, le drame est moindre dans un échantillon gazeux polarisé de spin. En effet, le membre de gauche des équations 1.1 a alors un spin total égal à 2, ce qui est impossible dans le membre de droite (l'ion et l'électron ont un spin 1/2, et l'hélium 4 a un spin nul dans son état fondamental). La conservation exacte du spin total empêcherait donc cette réaction. En réalité, le spin total n'est pas un bon nombre quantique, et peut relaxer à cause de l'interaction spin-spin entre les deux moments magnétiques atomiques. L'inhibition de l'ionisation Penning n'est donc que partielle. En 1994, G. Slyapnikov *et al.* [23] calculent la constante de taux de pertes $\beta_{\uparrow\uparrow}$ dans un échantillon d'hélium métastable polarisé, et prédisent une inhibition partielle mais spectaculaire des pertes, par 5 ordres de grandeur, par la polarisation du gaz. Cette prédiction a déclenché la quête de la condensation de Bose-Einstein dans l'hélium métastable. Depuis d'autres calculs ont confirmé la valeur $\beta_{\uparrow\uparrow} \sim 2 \times 10^{-14} \text{ cm}^3.\text{s}^{-1}$ [45, 46], à un facteur 3 près (en plus ou en moins), compte tenu de l'incertitude ($\sim 1\%$) avec laquelle est connu le potentiel $^5\Sigma_g^+$ qui régit l'interaction de deux atomes métastables dans un nuage polarisé de spin.

Dans les expériences de condensation de Bose-Einstein sur He^* , les atomes sont maintenus dans un piège magnétique. Tous les spins atomiques sont alignés sur le champ magnétique local, et les conditions sont remplies pour l'inhibition des pertes par ionisation Penning. L'observation de la transition de phase a été une démonstration éclatante de l'inhibition des collisions Penning dans un échantillon polarisé de He^* [24, 25]. En effet, alors que la densité du gaz atteint $5 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$ au voisinage de la transition de phase, la durée de vie d'un nuage de He^* polarisé est de l'ordre de la seconde. Ainsi la mesure de la durée de vie du condensat nous a permis de déterminer une borne supérieure pour le coefficient $\beta_{\uparrow\uparrow}$. Dans un condensat, la réduction des fluctuations de densité est responsable d'une diminution par un facteur 2 du taux de perte à deux corps comparé à ce qu'il est dans un nuage thermique [47, 48]. Compte tenu de la définition usuelle de β , le résultat obtenu dans notre groupe est $\beta_{\uparrow\uparrow}/2 < (4.2 \pm 0.6) \times 10^{-14} \text{ cm}^3.\text{s}^{-1}$ [25]. Soulignons dès maintenant que ce type de mesure est fiable à la condition que le nombre d'atomes piégés, et la densité du nuage, soient bien calibrés, ce qui reste une difficulté majeure dans notre expérience, ainsi que nous le verrons.

Les collisions Penning interviennent aussi entre un atome métastable et un atome excité dans l'état 2^3P , par les lasers de refroidissement. Ce processus est encore plus efficace que la collision ionisante $2^3S + 2^3S$ dans le cas non polarisé, et il limite la densité accessible dans le piège magnéto-optique, dans lequel le gaz est initialement piégé et pré-refroidi. Ce

problème a été étudié phénoménologiquement sur notre MOT et sera abordé au chapitre 3. Les expériences de photo-association peuvent *a priori* permettre de construire une description microscopique de ces collisions Penning assistées par lumière. Cette approche a été développée par le groupe de P. van der Straten et A. Niehaus (Utrecht) [33]. Nous verrons que la compréhension des processus inélastiques pourrait être améliorée en reprenant ce type d'expériences sur notre nuage. Pour cela, un détecteur d'ions non encore disponible sera nécessaire.

1.3 La longueur de diffusion

Malgré les collisions Penning, la condensation de Bose-Einstein a pu être réalisée [27, 28]. Elle est observée à l'issue du refroidissement évaporatif forcé (décrit au chapitre 3), qui n'est possible qu'en présence de collisions élastiques capables de thermaliser l'échantillon gazeux. Le corollaire de ce procédé expérimental est que le taux de collisions élastiques doit être suffisamment élevé pour que la thermalisation du nuage soit rapide devant sa durée de vie.

Les collisions élastiques sont donc un ingrédient essentiel dans toutes les expériences de condensation de Bose-Einstein. Elles sont décrites par un seul paramètre, la longueur de diffusion a , dont nous rappellerons la définition rigoureuse au chapitre 4. Dans l'immédiat, il suffit de la définir en fonction de la section efficace de collisions élastiques σ . A très basse température, et en particulier au voisinage de la transition de phase, la section efficace de collisions élastiques est proportionnelle à a^2 , et on peut définir la valeur absolue de a comme $|a| = \sqrt{\sigma/8\pi}$.

La longueur de diffusion est l'unique paramètre d'une théorie de champ moyen très bien adaptée à la description des interactions au sein du gaz ultra-froid (voir par exemple l'article de revue [30]). Le signe de a renseigne sur le caractère attractif ($a < 0$) ou répulsif ($a > 0$) des interactions effectives. Là encore, l'observation du condensat de Bose-Einstein a donné les premières informations sur a . Tout d'abord, elle a démontré que $a > 0$, puisque le condensat est stable. En effet, une longueur de diffusion négative aurait conduit à l'effondrement du condensat sur lui-même à cause des interactions attractives (voir par exemple les travaux du groupe de Hulet en 2000 [49]). Ensuite, la taille du condensat est fixée par les interactions (voir le chapitre 3), et la mesure du rayon du condensat donne une mesure indirecte du produit Na , avec N le nombre d'atomes condensés. Dans le cas des alcalins, a est bien connu, et cette mesure permet de calibrer N . Dans le cas de He^* , on a mesuré N indépendamment, et on en a déduit a . L'imprécision avec laquelle N est mesuré est alors la cause principale d'incertitude sur a . Les valeurs publiées de a , obtenues par cette méthode, sont $a = 16 \pm 8$ nm [25], et $a = 20 \pm 10$ nm [24]. La longueur de diffusion de He^* est donc relativement élevée¹, et c'est la raison pour laquelle le refroidissement évaporatif est si efficace.

Cette incertitude sur a représente une difficulté supplémentaire pour la calibration du nombre d'atomes dans l'expérience, et donc pour la détermination des autres propriétés collisionnelles, qui nécessite la mesure précise de la densité. Ainsi, à ce jour, la détermination expérimentale la plus précise de $\beta_{\uparrow\uparrow}$ est due l'équipe d'Orsay [50, 51], mais la précision de

1. À titre de comparaison, pour du ^{87}Rb piégé magnétiquement dans l'état hyperfin $F = 1, M_F = -1$, la longueur de diffusion est $a \sim 100a_0 = 5.3$ nm.

cette mesure reste entièrement conditionnée par celle de la longueur de diffusion a . Les auteurs de [50] donnent le résultat suivant: $\beta_{\uparrow\uparrow} = (\frac{a}{20})^2 \times (2.9 \pm 2) \times 10^{-14} \text{ cm}^3.\text{s}^{-1}$, où a est la valeur exacte, en nm, de la longueur de diffusion².

De même, les collisions inélastiques impliquant trois corps sont caractérisées par un taux de pertes $L\bar{n}^2$, où la valeur de la constante de taux L est aussi subordonnée à la connaissance de la longueur de diffusion. Les auteurs de [50] donnent en effet $L = (1.2 \pm 0.7) \times (\frac{a}{20})^3 (1 - 0.21 \frac{a-20}{20}) \times 10^{-26} \text{ cm}^6.\text{s}^{-1}$, où a est la longueur de diffusion en nm. Notons que même en supposant $a = 10 \text{ nm}$ cette constante de taux de perte prend la valeur³: $L \sim 1.5 \times 10^{-27} \text{ cm}^6.\text{s}^{-1}$.

Depuis les premières observations de la condensation de Bose-Einstein de He^* , la longueur de diffusion est restée un paramètre mal connu. Cette inconnue s'avère un handicap important pour les expériences menées jusqu'à présent, comme l'étude du régime hydrodynamique dans notre équipe (voir annexe B), ou l'étude des taux d'ions émis et des processus de collisions inélastiques dans l'équipe d'Orsay (voir le travail de thèse d'O. Sirjean en 2003 [53]). Plus généralement, la mesure de a est un prélude à la compréhension fine des interactions de paires dans le gaz froid, dans le contexte scientifique actuel où le défi est dicté par la possibilité de contrôler très finement ces interactions de paires. C'est pour ces raisons que nous nous sommes orientés, au début de l'année 2002, vers des expériences de photo-association.

Cependant, le champ des expériences nouvelles à réaliser ne se limite pas à la seule mesure de la longueur de diffusion. Ainsi, des dimères géants originaux ont été découverts lors d'expériences préliminaires. Une étude approfondie de ces dimères a été menée. De plus, la possibilité (ou non) de produire des dimères éventuellement ("doublement") métastables est une question en suspend. Tout d'abord la spectroscopie de ce type de molécules conduirait à une compréhension approfondie des interactions élastiques entre atomes métastables. Ensuite la mesure éventuelle de la durée de vie encore inconnue de ces dimères renseignerait sur les mécanismes d'auto-ionisation de type Penning, supposés responsable de leur destruction.

1.4 Plan de la thèse

Les deux chapitres suivants présentent le déroulement d'une expérience de production d'un condensat de Bose-Einstein d'hélium métastable, depuis la production des atomes métastables, jusqu'à la détection du condensat. Tout d'abord, le chapitre 2 est consacré à la description du montage expérimental: la source d'atomes, la préparation du jet de métastable, le chargement du MOT et le piégeage magnétique. Il décrit succinctement l'ensemble des préoccupations quotidiennes que nécessite le bon fonctionnement de chaque étape de l'expérience. Le but premier de ce chapitre est de permettre une compréhension "autonome" de ce mémoire, en limitant autant que possible les renvois à la thèse de doctorat de mon prédécesseur Franck Pereira Dos Santos [28] où de nombreux détails complètent cette description. La tâche principale de Franck a été la construction de cette expérience démarrée en 1997, depuis la mise au point de la source d'atomes, jusqu'à la démonstration de la condensation de Bose-Einstein de

2. Pour ^{87}Rb dans l'état hyperfin $F=1, M_F=-1$, on a $\beta < 1.6 \times 10^{-16}$ [48]. Dans ce cas, les processus de pertes à deux corps sont également dus à de la relaxation de spin qui porte l'atome dans un état non piégé magnétiquement, mais n'induit pas d'ionisation.

3. Pour comparaison, cette valeur de L pour He^* est 100 fois plus élevée que dans le cas de ^{87}Rb [52].

l'hélium métastable en 2001. Ma contribution personnelle commence fin 1999 avec l'étude des propriétés du piège magnéto-optique déjà opérationnel à mon arrivée, et du taux de pertes induites par les collisions Penning assistées par lumière au sein du MOT. J'ai donc participé à la construction du piège magnétique, à la mise en œuvre du piégeage magnétique des atomes et du refroidissement évaporatif, puis aux premières études du condensat.

Le chapitre 3 est consacré plus spécifiquement à la production et à la détection du condensat. Le refroidissement évaporatif est présenté, qui aboutit à l'observation de la transition de phase. La mesure de la température critique du gaz est détaillée; elle permet de calibrer le nombre d'atomes dans l'expérience. Par ailleurs, les difficultés expérimentales rencontrées en fin de refroidissement sont discutées: lorsque la densité du gaz devient élevée, les collisions Penning deviennent importantes, conduisant à des pertes et des taux de chauffages élevés au sein du gaz.

Le chapitre 4 est dédié à la description des collisions élastiques dans un gaz ultra-froid de He^* . En particulier, le concept de longueur de diffusion est illustré à l'aide de l'expression approchée du potentiel d'interaction $^5\Sigma_g^+$ entre deux atomes d'hélium métastable, donnée par Stärrck et Meyer en 1994 [54]. Les déterminations théoriques (à partir de ce potentiel) et expérimentales (à partir de la taille du condensat) de la longueur de diffusion, ainsi que leurs incertitudes respectives, sont discutées. Ces déterminations restent assez largement imprécises pour des raisons qui sont détaillées. Le principe de la photo-association est alors introduit. Cette technique permet de sonder très précisément les potentiels moléculaires et, en particulier, de produire une mesure expérimentale *a priori* précise de la longueur de diffusion.

Des expériences de photo-association à une seule couleur ont donc été démarrées, qui sont présentées au chapitre 5. Dans un premier temps un balayage étendu en fréquence du laser de photo-association a permis de sonder les états liés dans des potentiels liés aux asymptotes $2^3S_1 + 2^3P_2$ et $2^3S_1 + 2^3P_0$. Un balayage plus fin a ensuite permis de réaliser la spectroscopie très précise des états liés connectés à l'asymptote $2^3S_1 + 2^3P_0$.

L'interprétation quantitative des spectres obtenus a motivé le calcul numérique des potentiels d'interaction entre deux atomes d'hélium, l'un dans l'état 2^3S , et l'autre dans l'état 2^3P . Un calcul approché, valable à grande distance inter-atomique, et comparable à celui développé dans le cas des alcalins, est appliqué au cas de l'hélium et présenté en détail au chapitre 6. Il prend en compte l'interaction dipôle-dipôle entre les deux atomes, ainsi que la structure fine atomique. On montre que la compétition entre ces deux interactions produit des puits de potentiels dont les minima, ainsi que l'ensemble de leur partie répulsive sont également à grande distance, donc bien décrits par ce calcul asymptotique. Ces puits de potentiels particuliers sont appelés potentiels "à purement longue portée".

Le chapitre 7, est consacré à l'étude des "dimères géants" que sont les états liés dans les potentiels à purement longue portée. Le spectre vibrationnel de l'un de ces dimères a été mesuré avec grande précision. Les énergies de liaison correspondantes sont déduites et comparées au calcul théorique, sur la base des potentiels d'interaction déterminés au chapitre précédent. L'accord entre la théorie et l'expérience est très bon. Par ailleurs, ces dimères géants sont détectés à l'aide d'une méthode originale qui consiste à utiliser le nuage d'atomes froids comme un "calorimètre" sensible à l'énergie libérée par ces molécules. Un modèle semi-quantitatif est proposé pour interpréter le chauffage observé; les ordres de grandeurs calculés sont en bon accord avec l'observation.

Le chapitre 8 présente les résultats préliminaires de l'identification du spectre mesuré dans le rouge de la raie D_2 . Ce travail est toujours en cours au moment de la fin de la rédaction de ce manuscrit, mais certaines conclusions peuvent déjà être tirées.

Enfin, le dernier chapitre conclut ce travail en essayant de synthétiser certaines des voies ouvertes au cours de cette thèse, et de dégager des directions prochaines de travail, à court et moyen termes.

Trois annexes complètent ce manuscrit. En particulier, une étude menée au cours de ma thèse et portant sur les modes collectifs d'oscillation du gaz, a donné lieu à la publication d'un article qui est reporté à l'annexe (B). Ce travail illustre la difficulté que représente la méconnaissance de la longueur de diffusion a dans une expérience telle que la nôtre. Il a en partie aussi motivé l'orientation nouvelle prise par l'expérience, dans le but de mesurer précisément a .

Chapitre 2

Piégeage magnétique d'un grand nombre d'atomes d'hélium métastable

Ce chapitre décrit succinctement l'ensemble du dispositif expérimental depuis la production d'atomes d'hélium métastable jusqu'au piégeage magnétique d'un nuage pré-refroidi dans la gamme du milliKelvin. De nombreux détails figurent dans la thèse de doctorat de Franck Pereira Dos Santos [28] ainsi que dans les articles [55, 56, 57], et complètent cette description. La figure 2.1 présente un schéma général de l'expérience. Le point de départ, décrit au premier paragraphe, consiste à produire un jet intense d'atomes d'hélium métastable. Celui-ci est ensuite ralenti et utilisé pour accumuler des atomes froids dans un piège magnéto-optique (voir paragraphe 2). Ce premier piège constitue l'étape préliminaire du refroidissement. Ensuite, les atomes froids sont transférés dans un piège purement magnéto-statique, décrit en détail au paragraphe 3.

2.1 Production d'un jet intense d'atomes d'hélium métastable

2.1.1 La source d'atomes métastables

La première étape expérimentale est probablement la plus délicate. Il s'agit de produire un jet intense d'atomes d'hélium 4 dans l'état métastable triplet. La source utilisée a été développée par Ernst Rasel en 1997-98, elle est décrite dans [28]. Elle a été conçue spécialement pour cette expérience dont le but initial était la production d'un condensat de Bose-Einstein. Un schéma de cette source est donné par la figure 2.2.

Un réservoir cylindrique en nitrure de bore est rempli d'hélium dans son état fondamental à une pression constante estimée à quelques dizaines de mbar. Un orifice de diamètre 0.5 mm permet à l'hélium de s'échapper du réservoir vers le vide. Du côté interne de cet orifice se trouve une cathode d'acier en forme de pointe, alors que du côté externe, une plaque d'aluminium également percée sert d'anode. Une décharge électrique constante est entretenue entre la cathode et l'anode. Le nitrure de bore assure une bonne conductivité thermique tout

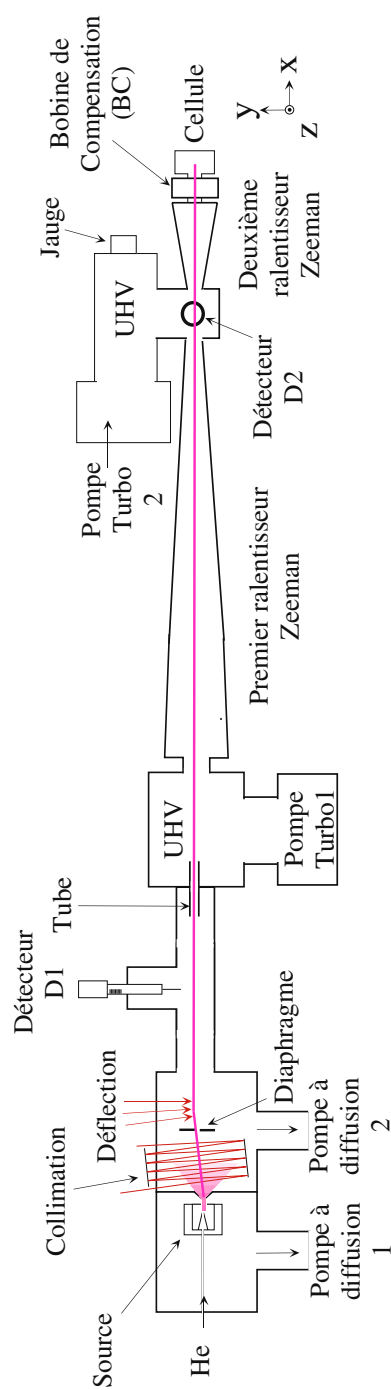


FIG. 2.1 – Dispositif expérimental. Le jet d'hélium est "collimaté", défléchi, ralenti et piégé dans une cellule en quartz.

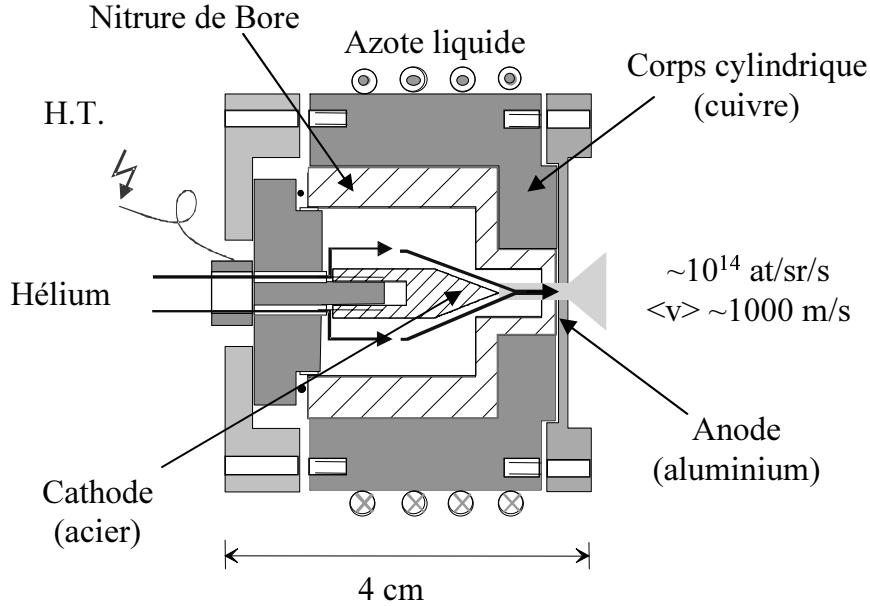


FIG. 2.2 – Schéma de la source d'atomes d'hélium métastable. La décharge se produit entre cathode et anode au travers de l'orifice de sortie. L'ensemble de la source est refroidi à l'azote liquide.

en étant un bon isolant électrique. Ainsi la décharge est guidée au travers de l'orifice par lequel l'hélium s'échappe, et la vitesse du jet atomique est réduite par contact thermique, puisque l'ensemble du réservoir est entouré d'une pièce de cuivre ajustée et refroidie à la température de l'azote liquide. La pièce de cuivre refroidit également l'anode en aluminium, ce qui est une spécificité de notre source. Cela permet de mieux contrôler la température du petit volume de gaz dans lequel se produit la décharge, et de diminuer sensiblement la vitesse de sortie des atomes. Typiquement, un atome sur 10^4 sort de cette source dans l'état métastable triplet. Cette piètre efficacité est le lot commun de toutes les sources de gaz rare métastable utilisant une décharge [58, 59, 60]. Lors d'un fonctionnement optimal, le flux de métastables obtenu a été estimé à 2×10^{14} atomes/steradian/seconde et la vitesse moyenne du jet atomique est de 1000 m/s [28].

Il semble que la vitesse de sortie des atomes, plus que leur flux, soit un paramètre critique. En effet, pour pouvoir être piégés, les atomes produits doivent être ralentis par le ralentisseur Zeeman (voir ci-dessous), dont la vitesse de capture est limitée à environ 1000 m/s. Il est important que la source soit bien refroidie à l'azote liquide. Il est arrivé que la circulation d'azote s'interrompe en cours d'expérience. Dans ce cas, le nombre d'atomes piégés à l'extrémité du ralentisseur Zeeman diminue à zéro en quelques minutes. Il est primordial que la pièce de nitrure de bore, réalise une bonne conduction thermique. Ainsi, son usinage est critique car elle doit être parfaitement ajustée à la pièce de cuivre froide qui l'entoure.

Le fonctionnement de la source est capricieux, et dans une certaine mesure mystérieux. Bien qu'il ait toujours été possible, à l'aide de cette source, de charger un MOT contenant suffisamment d'atomes pour produire un condensat, les conditions optimales sont malheu-

reusement difficiles à maintenir. En particulier on pense avoir constaté une “usure” de la pièce de nitrure de bore que l’on suppose être une des causes possibles de la détérioration des performances de la source au cours du temps. En effet l’opération de la décharge salit considérablement l’intérieur de la pièce, qui est nettoyée à chaque ouverture de la source. De plus, de l’huile provenant de la pompe à diffusion se dépose sur toutes les parois à l’intérieur de la chambre à vide, et on a constaté un jaunissement dans le temps de la pièce de nitrure de bore initialement parfaitement blanche. Les propriétés de surface de cette pièce évoluent manifestement dans le temps, et on pense que la thermalisation du gaz d’hélium peut en être affectée. Cette pièce est changée régulièrement (une à deux fois par an).

2.1.2 Collimation et épuration du jet atomique

Le jet atomique produit étant divergent, il est nécessaire de le “collimater” pour obtenir le flux nécessaire au piégeage d’un grand nombre d’atomes. Un faisceau laser parallèle, résonant avec la transition $2^3S_1 \leftrightarrow 2^3P_2$, d’intensité de l’ordre de $400 I_{sat}$ et de diamètre 2 cm est réfléchi entre deux miroirs plans quasiment parallèles qui encadrent le jet atomique. Le faisceau laser traverse donc un grand nombre de fois le jet atomique et la pression de radiation qu’il exerce sur les atomes réduit la dispersion des vitesses transverses. Cette configuration dite “Zig-Zag” est décrite dans [28, 55]. La collimation est réalisée dans les deux directions transverses au jet, en reproduisant le dispositif dans l’autre direction. La brillance du jet atomique peut ainsi être augmentée d’un facteur 15 typiquement, 25 au mieux.

La dernière étape de préparation du jet d’atomes métastables consiste à l’épurer de tout ce qui sort également de la source (atomes dans l’état fondamental, photons) et qui est indésirable pour la suite de l’expérience. Le jet initialement produit fait un angle d’un degré avec l’axe de l’expérience (voir la figure 2.1). Cette direction est définie par la présence de deux diaphragmes au travers desquels passent les atomes métastables collimatés ainsi que les particules “indésirables”. Une nappe de lumière résonante de largeur $\simeq 10$ cm et d’intensité $\simeq 40I_{sat}$, vient alors pousser les métastables pour les aligner sur l’axe de l’expérience. C’est une onde progressive, et convergente dont la pression de radiation défléchit les trajectoires des atomes. Seul He^* est défléchi et peut passer directement au travers du tube de pompage différentiel qui sépare la chambre de collimation du reste de l’expérience (à l’entrée de la chambre 1 sur la figure 2.1).

2.1.3 Le système laser

La collimation, la déflexion, et ensuite le refroidissement préliminaire des atomes utilisent un faisceau laser asservi sur la transition $2^3S_1 \leftrightarrow 2^3P_2$, à 1083 nm. Ce laser est produit par une diode laser de marque SDL, construite selon la technologie DBR (Distributed Bragg Reflector) [61] qui lui confère une largeur de raie de 3 MHz ainsi qu’une stabilité de mode accrue (émission monomode longitudinalement) et une accordabilité sans saut de mode sur plusieurs nm. Cette diode est montée dans une cavité étendue de 15 cm, et l’utilisation d’un miroir de sortie renvoyant 20 % de l’intensité vers la diode permet d’affiner le spectre d’émission à 0.3 MHz. La largeur spectrale a été mesurée en réalisant le battement de deux diodes identiques montées dans des cavités identiques. L’asservissement en fréquence est réalisé par

une rétroaction sur le courant de la diode, ainsi que sur la position du miroir de sortie de cavité, via une cale piézo-électrique. Le signal d'erreur utilisé pour ces asservissements est dérivé à partir de l'absorption saturée du laser par une cellule de gaz d'hélium 4 basse pression (0.05 mbar), ce qui limite l'élargissement de la raie par la pression. Une onde radio-fréquence (à 27 MHz, produite par un émetteur radio CB) est entretenue dans la cellule, ce qui assure la production d'atomes dans l'état métastable et permet l'observation de l'absorption saturée à 1083 nm. La robustesse de l'asservissement est limitée par sa dynamique trop faible en courant et/ou en amplitude de déplacement de la cale piézo-électrique. Pour cette raison, la dérive lente du laser ne peut être corrigée que pendant quelques heures (4 à 6 heures typiquement), après quoi la boucle d'asservissement saute. Lorsqu'elle est asservie, la fréquence moyenne de l'émission laser subit des fluctuations basses fréquences (d'origine acoustique) d'amplitude typiquement 0.3 MHz également. Enfin l'amplitude de la décharge RF servant à produire des métastables dans la cellule d'absorption saturée doit rester stable, sous peine d'une dérive de la valeur moyenne du signal d'erreur, et donc du point d'asservissement. En pratique nous avons constaté, sans pouvoir l'expliquer, que certaines cellules de gaz et leurs décharges produisent des signaux d'asservissement bien stables, d'autres peuvent engendrer des dérives de typiquement quelques MHz par heure.

Une seule diode laser est nécessaire pour l'ensemble de l'expérience. Elle est utilisée pour injecter deux amplificateurs à fibre de marque IRE-Polus et Keopsys. Ce sont des fibres de silice à double coeur dopées à l'ytterbium et pompées par des diodes laser de puissance à 980 nm. L'émission est stimulée par la longueur d'onde injectée (à 1083 nm), et quelques milliWatts suffisent pour obtenir en sortie 1 Watt de puissance sans altération notable du spectre d'émission [62]. Le mode spatial en sortie de fibre présente un profil gaussien TEM00. Ce faisceau laser, polarisé verticalement, est séparé en un grand nombre de faisceaux à l'aide de lames demi-ondes et de cubes polariseurs. Ainsi, à partir d'une seule diode asservie, et de deux amplificateurs à fibre, on produit 2 faisceaux de collimation (verticale et horizontale), 1 faisceau de déflexion, 1 faisceau pour le ralentisseur Zeeman (paragraphe 2.2.1), 6 faisceaux pour le MOT (paragraphe 2.2.2), 2 faisceaux contra-propageant pour le pompage optique (paragraphe 2.3.2), et 2 faisceaux contra-propageant pour la détection optique (annexe A). Les fréquences de tous ces faisceaux sont ajustées par des modulateurs acousto-optiques qui servent également à piloter leur intensité, y compris leur commutation on/off.

2.1.4 Le système à vide

La chambre "source" est l'enceinte à vide dans laquelle la décharge fonctionne. En raison de la faible efficacité de production d'atomes métastables, une très grande quantité d'hélium doit être utilisée, qui doit ensuite être évacuée efficacement pour ne pas détériorer le vide dans le reste de l'expérience. La chambre source est donc pompée par une pompe à diffusion Alcatel 6250 caractérisée par sa très grande vitesse de pompage de 3500 L/s ("pompe à diffusion 1" sur la figure 2.1). En cours de fonctionnement de la décharge, la pression est maintenue autour de 2×10^{-5} mbar dans cette enceinte. Un trou de diamètre 1 mm sépare cette chambre de la suivante où sont réalisées la collimation et la déflexion du jet atomique. Cette seconde enceinte est pompée par une pompe à diffusion Alcatel Crystal 162 ("pompe à diffusion 2"), et la pression y est de l'ordre de quelques 10^{-7} mbar.

Un tube de pompage différentiel de diamètre 1 cm et de longueur 10 cm sépare ensuite la chambre de collimation de la chambre UHV (“Ultra-High Vacuum”). Il permet de maintenir une différence de pression de 3 ordres de grandeurs entre les deux. La chambre UHV commence à l’entrée du ralentisseur Zeeman (“Chambre 1” sur la figure 2.1) où une pompe turbo-moléculaire Pfeifer TMU 1000 (vitesse de pompage $\simeq 1000$ L/s pour He) maintient la pression autour de 10^{-9} mbar en présence du jet atomique, 10^{-10} mbar lorsque la source d’atomes est fermée.

A l’autre extrémité du ralentisseur Zeeman (décrit ci-dessous), le piégeage des atomes a lieu dans une cellule de quartz dans laquelle règne une pression de l’ordre de 10^{-11} mbar, lorsque l’expérience est en fonctionnement. Cette extrémité de l’expérience est pompée par une seconde pompe turbo-moléculaire Pfeifer (TPU 450 H, vitesse de pompage de He $\simeq 400$ L/s). Le ralentisseur Zeeman remplit également la fonction de tube différentiel de pompage, entretenant une différence de pression d’environ 2 ordres de grandeurs entre ses deux extrémités.

La réalisation du vide dans la partie UHV, à partir de 1 atmosphère, nécessite d’étuver l’ensemble de l’expérience depuis le tube de pompage différentiel à la sortie de la chambre de collimation, jusqu’à la cellule de quartz, à une température d’environ 200°C, pendant 8 jours typiquement.

2.2 Ralentissement, piégeage et pré-refroidissement de He*

2.2.1 Le ralentisseur Zeeman

Le jet atomique est caractérisé par une vitesse moyenne trop élevée pour autoriser le piégeage des atomes par les techniques usuelles: la vitesse de capture de notre piège magnéto-optique est de l’ordre de 50 m/s. Un *ralentisseur à effet Zeeman* [63] est donc utilisé pour ralentir les atomes et permettre de les piéger. Le faisceau laser ralentisseur a une intensité voisine de 300 mW/cm². Il est désaccordé vers le rouge de 240 MHz par rapport à la raie atomique D_2 , ce qui le rend résonant avec des atomes He* de vitesse 1000 m/s, dans un champ magnétique de 540 G. Polarisé circulairement σ^+ , il est absorbé puis réémis (par émission spontanée) par les atomes qui sont ainsi ralentis. Le maintien de la condition de résonance nécessite de faire varier le champ magnétique pour compenser la variation de l’effet Doppler par une variation de l’effet Zeeman, au fur et à mesure que les atomes progressent et ralentissent.

La décélération moyenne maximale subie par les atomes est: $a_{max} = \Gamma/2 \cdot \hbar k/m$, avec $k = 2\pi/\lambda$. Dans le cas de He* avec $\lambda = 1083$ nm, on obtient $a_{max} \sim 9.6 \cdot 10^4 \times g$, où g est l’accélération de la pesanteur terrestre. Compte tenu de la grande vitesse des atomes He* produits par notre source à décharge, et en supposant que la décélération subie est constamment $a_{max}/2$, le ralentisseur Zeeman utilisé doit faire au minimum 1m de long. En pratique, deux solénoïdes successifs (appelés “Premier ralentisseur Zeeman” et “Second ralentisseur Zeeman” sur la figure 2.1), de longueur totale 2,6 m, produisent un champ continûment décroissant de 540 G à -140 G, de manière à “capturer” les atomes de vitesse au plus ~ 1000 m/s et à les ralentir jusqu’à ~ 40 m/s. Compte tenu de la grande longueur du dispositif, le jet atomique doit avoir une divergence initiale la plus faible possible pour maintenir un taux de capture

élevé dans le piège Magnéto-Optique à la sortie du ralentisseur Zeeman (voir paragraphe suivant). Cela rend donc absolument nécessaire la phase de collimation du jet atomique décrite au paragraphe précédent.

L'utilisation de deux ralentisseurs successifs (et non un seul) vient de ce que le sens du champ magnétique change en cours de route. Pour que le faisceau ralentisseur ne perturbe pas le piège Magnéto-Optique (MOT) qu'il traverse, il est important qu'il soit très désaccordé, ce qui impose un champ magnétique relativement grand en sortie de ralentisseur pour que la condition de résonance soit maintenue jusqu'au bout. Au lieu de choisir -140 G, ce qui nécessite l'utilisation de deux ralentisseurs successifs, on aurait pu choisir un champ positif élevé (+140 G, par exemple). Il aurait fallu démarrer avec un champ magnétique supérieur à l'entrée du ralentisseur Zeeman. Or cela est impossible pour au moins deux raisons. La première est l'existence de croisements entre sous niveaux Zeeman pour un champ voisin de 600 G. Le cas échéant les atomes peuvent donc sortir de la transition cyclante, et ne plus être ralentis. Il faut donc démarrer avec un champ magnétique inférieur. Une autre raison à ce choix est que la puissance électrique requise est plus faible, et le refroidissement des solénoïdes moins problématique. En effet, la puissance électrique utilisée est déjà de ~ 350 Watts au total, pour l'ensemble des deux solénoïdes. En l'absence de refroidissement, les parois de la chambre à vide sont donc chauffées, ce qui détériore la qualité du vide.

2.2.2 Le piège magnéto-optique (MOT)

Les atomes sont piégés à la sortie du ralentisseur Zeeman dans une cellule de quartz de dimensions $4\text{ cm} \times 4\text{ cm} \times 5\text{ cm}$, par un piège magnéto-optique [64]. Ce piège est constitué d'un champ magnétique quadrupolaire réalisé par deux bobines parcourues de courants opposés (bobines notées Q1 et Q2 sur la figure 2.3 ci-dessous), et d'une mélasse optique constituée de six faisceaux laser indépendants, deux à deux contre-propageant, qui se croisent au centre de la cellule. Quatre de ces faisceaux sont dans un plan orthogonal à l'axe de l'expérience, et les deux derniers sont alignés sur le jet atomique. Le tableau 2.1 résume les paramètres du MOT, tels qu'ils sont fixés pour une opération routinière de la machine. La principale originalité de ce MOT est le très grand désaccord auquel il fonctionne ($-45\text{ MHz} \simeq -30\text{ } \Gamma$). Ce désaccord inhabituel est nécessaire afin de diminuer autant que possible les pertes énormes induites par les collisions Penning assistées par lumière (voir le paragraphe 2.2.3).

La disposition géométrique choisie pour les faisceaux du MOT pose un problème rencontré sur le tard, et discuté en détail dans [28]. En effet les deux faisceaux du MOT alignés sur le jet atomique sont, en plusieurs points du ralentisseur Zeeman, résonants avec les atomes en cours de ralentissement, et peuvent les transférer dans un sous-niveau Zeeman qui n'est plus résonant avec le faisceau ralentisseur. Ces atomes ne sont alors plus ralentis. Un faisceau laser supplémentaire, aligné sur le jet atomique également, et appelé "faisceau repompeur", a été mis en place dans le but initial de transférer de nouveau les atomes dans le bon sous-niveau Zeeman, par pompage optique, et de permettre la poursuite du ralentissement. Initialement, ce faisceau laser était modulé en fréquence et les deux premières bandes latérales constituaient les deux fréquences nécessaires au repompage des atomes [28].

Cependant, la recherche permanente des conditions optimales de chargement du MOT, nous a fait dériver dans l'espace des paramètres, vers une configuration où l'effet du repom-

TAB. 2.1 – Paramètres usuels du MOT

Désaccord du MOT	-45 MHz
Diamètre des faisceaux laser	2 cm
Intensité laser longitudinale (Ox)	$2 \times 1.5 \text{ mW/cm}^2$
Intensité laser verticale (Oy)	$2 \times 2.5 \text{ mW/cm}^2$
Intensité laser transverse (Oz)	$2 \times 2 \text{ mW/cm}^2$
Intensité totale	12 mW/cm^2
Gradient du MOT (axe fort)	$b_z = 55 \text{ G/cm}$
Intensité ralentisseur	300 mW/cm^2
Intensité “repompeur”	25 mW/cm^2

peur reste spectaculaire, mais ne peut plus être interprété comme précédemment. Actuellement, le “faisceau repompeur” est un laser d’intensité 25 mW/cm^2 , ne contenant qu’une seule fréquence, désaccordée de -125 MHz en moyenne, par rapport à D_0 . Sa fréquence est modulée à 70 kHz, avec une amplitude de $\pm 7 \text{ MHz}$. Son effet est de multiplier par 5 le nombre d’atomes piégés dans le MOT. En revanche, il influence directement le MOT lui-même qui, en présence du faisceau repompeur, est décalé d’environ 0.5 cm par rapport au centre du champ quadrupolaire. En l’absence de modulation à 70 kHz, le gain sur le nombre d’atomes piégés n’est que de 3. L’effet de cette modulation a été remarqué de manière fortuite. En effet, à une certaine époque, ce faisceau repompeur était produit par une diode laser indépendante asservie en courant. Le signal d’erreur était obtenu en modulant le courant directement à 70 kHz, ce qui modulait l’émission laser. On a découvert alors que l’effet du faisceau repompeur était spectaculairement influencé par l’amplitude de cette modulation. Plus tard, le faisceau repompeur a été réalisé à partir du faisceau ralentisseur Zeeman directement, grâce à un modulateur acousto-optique (AOM), l’ordre 0 étant utilisé pour le ralentissement Zeeman, et l’ordre 1 pour le repompeur. La même modulation a dû être appliquée à l’onde RF de l’AOM pour une efficacité optimale. Aucune étude n’a plus été faite pour comprendre l’influence du faisceau repompeur sur le ralentissement du jet atomique.

2.2.3 Collisions Penning assistées par lumière

Le nombre maximal d’atomes piégés dans le MOT est fixé par l’équilibre entre le flux d’atomes capturés et le flux de pertes. Dans un MOT d’hélium métastable le processus de perte prédominant est dû aux collisions Penning. Elles interviennent entre deux atomes métastables (voir le chapitre 1) et aussi entre un atome métastable et un atome excité dans l’état 2^3P , en présence de la lumière du MOT.

La constante de taux de pertes à deux corps dans le MOT, β_{MOT} , a été étudiée en détail par plusieurs groupes [43, 65, 66, 67, 68, 69], dont le nôtre [57], au début de cette thèse. Elle peut être mesurée en étudiant la fluorescence du MOT, après la fin de son chargement. Pour l’essentiel, les pertes sont dues aux collisions $S - P$ et β_{MOT} peut s’écrire sous la forme (voir par exemple [28]):

$$\beta_{MOT} = 2K_{sp} \pi_s \pi_p ,$$

où π_s et π_p sont les populations dans les états S et P respectivement. Le désaccord et l'intensité des faisceaux lasers influencent la population d'atomes dans l'état excité, et donc la durée de vie du MOT. Au cours de l'étude décrite dans [57], le désaccord et l'intensité totale des faisceaux MOT ont été balayés entre -5 et -45 MHz, et entre 20 et 300 I_{sat} , respectivement. Il a été montré alors que le coefficient K_{sp} introduit ci-dessus est constant, égal à $(1.0 \pm 0.4) \times 10^{-7} \text{ cm}^3 \cdot \text{s}^{-1}$, dans la gamme de paramètres explorée, et que la variation de β_{MOT} est due à celle de π_p .

Ainsi, il est important, pour piéger le maximum d'atomes, d'avoir une population la plus faible possible dans l'état 2^3P . C'est la raison principale pour laquelle le désaccord des faisceaux du MOT est choisi si grand ($\sim -30 \text{ GHz}$). Il en résulte également un grand volume de capture et une température relativement élevée (1 mK). Dans les conditions typiques d'opération du MOT, décrites par le tableau 2.1, le nombre d'atomes piégés a été, au maximum de 1 à 1.5×10^9 atomes, il est couramment de 4 à 8×10^8 atomes. Pour une densité moyenne typique $\bar{n} = 2 \times 10^9 \text{ cm}^{-3}$, la durée de vie du MOT est de l'ordre de quelques centaines de millisecondes. Le temps de chargement du MOT est de 1 à 2 secondes selon l'intensité du faisceau d'atomes *ralentis* qui dépend des conditions de fonctionnement de la source, et de la qualité de la collimation. En particulier, la vitesse de sortie de atomes de la source doit être suffisamment basse pour que le ralentisseur Zeeman puisse capturer et ralentir la plus grande proportion possible des métastables produits.

2.3 Piégeage magnétique

Dans une expérience de condensation de Bose-Einstein de gaz dilué, le MOT constitue une étape préliminaire de refroidissement, nécessaire au piégeage d'un "grand" nombre d'atomes froids. Cependant, la température est limitée inférieurement par la présence de la lumière (piégeage dissipatif). Le refroidissement ultérieur, est réalisé par *évaporation* (voir ci-dessous) et doit se faire dans un piège non dissipatif [75]. De nombreuses solutions technologiques ont été démontrées (pièges magnétostatiques de type Ioffe-Pritchard [70], piège magnétique tournant "TOP" [71], piège dipolaire optique très désaccordé [72], ou encore des combinaisons de pièges optiques dipolaires et magnétiques comme dans le groupe de R. Grimm [73]). Un piège purement magnétostatique de configuration "QUIC" [74] et produisant un champ magnétique de type Ioffe-Pritchard a été construit dans notre expérience.

2.3.1 Réalisation d'un piège magnétique

Le piégeage magnétique d'atomes neutres repose sur la réalisation d'un champ magnétique inhomogène $\mathbf{B}(\vec{r})$, présentant un minimum local (en $\vec{r} = \vec{0}$), avec lequel des atomes de moment magnétique $\vec{\mu}$ non nul peuvent interagir selon l'énergie potentielle $W(\vec{r}) = -\vec{\mu} \cdot \mathbf{B}(\vec{r})$. Les atomes, s'ils sont déjà suffisamment froids, peuvent rester piégés au voisinage du minimum de cette énergie potentielle. Une des multiples façons de produire le champ magnétique requis est d'utiliser 5 bobines disposées comme schématisé sur la figure 2.3. Les bobines Q1 et Q2 produisent un champ magnétique quadrupolaire, utilisé pour le piège magnéto-optique. Si on leur ajoute la contribution de la troisième bobine B3, on obtient un piège QUIC qui produit un champ identique à la configuration de Ioffe-Pritchard, avec un minimum B_0 non

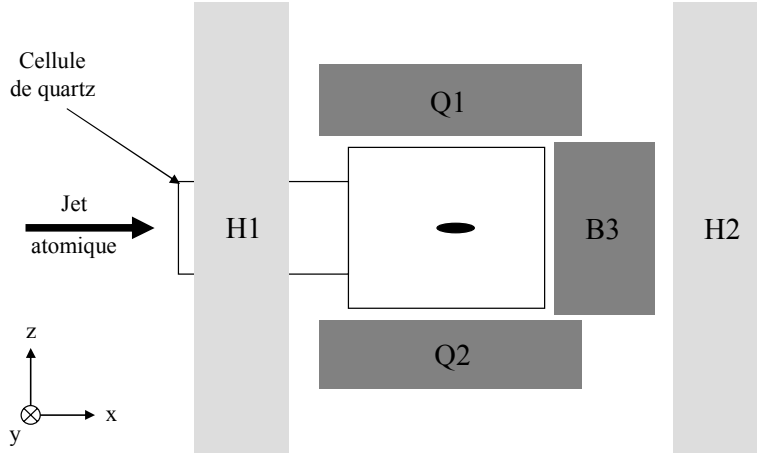


FIG. 2.3 – Schéma des bobines de piégeage magnétique autour de la cellule de quartz. Les bobines $Q1$ et $Q2$ produisent un champ magnétique quadrupolaire, utilisé pour le piège magnéto-optique. Lorsque la contribution de la troisième bobine $B3$ est ajoutée aux deux précédentes, un champ de type Ioffe Pritchard est produit avec un minimum B_0 non nul. Enfin les deux bobines $H1$ et $H2$ produisent un champ homogène qui sert à ajuster la valeur de B_0 .

nul, appelé “biais” ci-après. Enfin, deux bobines $H1$ et $H2$ sont disposées en configuration de Helmholtz pour ajuster la valeur du biais B_0 .

Au voisinage du minimum B_0 du champ magnétique produit par ces 5 bobines, le champ magnétique s’écrit à l’ordre 2 (voir par exemple [75, 76]):

$$\mathbf{B}(x,y,z) = \begin{pmatrix} B_0 \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix} + B' \begin{pmatrix} 0 \\ -y \\ z \end{pmatrix} + \frac{B''}{2} \begin{pmatrix} x^2 - \frac{1}{2}(y^2 + z^2) \\ -xy \\ -xz \end{pmatrix} + O(3) \quad (2.1)$$

où B' et B'' sont le gradient et la courbure du champ, respectivement.

Si la fréquence de Larmor des atomes plongés dans le champ magnétique est plus grande que la fréquence à laquelle les atomes voient le champ varier au cours de leur mouvement, alors les moments magnétiques atomiques restent en tout point alignés au champ. Lorsque cette condition de suivi adiabatique est remplie, l’énergie potentielle $W(\vec{r})$ est proportionnelle au module du champ magnétique. Alors, les atomes ayant un moment magnétique anti-parallèle au champ magnétique (c’est-à-dire dans l’état de spin $m_J = +1$) sont piégés au fond d’une cuvette de potentiel. Les projections $m_J = 0$ et $m_J = -1$ sont respectivement non piégée et expulsée du centre du piège.

De plus, si la taille du nuage est petite devant l’échelle spatiale de variation du champ (B_0/B' et $\sqrt{B_0/B''}$), c’est-à-dire si le nuage est suffisamment froid, alors le développement limité de cette énergie potentielle est quadratique en fonction de l’écart au centre, et on a, pour l’état de spin $m_J = +1$, un piège harmonique dans les trois directions:

$$W(x,y,z) = \mu B_0 + \frac{1}{2} m \omega_{\parallel}^2 x^2 + \frac{1}{2} m \omega_{\perp}^2 (y^2 + z^2) , \quad (2.2)$$

$$\text{avec} \quad \omega_{\parallel} = \sqrt{\frac{\mu B''}{m}} \quad \text{et} \quad \omega_{\perp} = \sqrt{\frac{\mu}{m} \left(\frac{B'^2}{B_0} - \frac{B''}{2} \right)} \quad (2.3)$$

Ce potentiel de piégeage est de symétrie cylindrique, caractérisé par deux fréquences de piégeage $\omega_{\parallel}/2\pi$ (longitudinale) et $\omega_{\perp}/2\pi$ (radiale). Ces fréquences sont déterminées par le module du moment magnétique de l'atome $\mu = -g\mu_B$ ($g = 2$ est le facteur de Landé dans l'état 2^3S , $\mu_B \simeq -1.400$ MHz/G < 0 est le magnéton de Bohr), par la masse de l'atome $m \simeq 6.648 \times 10^{-27}$ kg, et par les caractéristiques B_0 , B' et B'' du champ magnétique. Par la suite on appellera “axes forts” ou “raides” les axes transverses, selon lesquels les fréquences de piégeage sont les plus élevées, et “axe mou” l'axe longitudinal, caractérisé par une fréquence de piégeage (ou une “raideur”) plus faible. Remarquons sur les équations 2.3 que l'ajustement indépendant de B_0 par l'utilisation des bobines de Helmholtz H1 et H2 permet de modifier la raideur du piège dans les directions transverses (*i.e.* $\omega_{\perp}$) tout en laissant invariante la fréquence de piégeage longitudinale $\omega_{\parallel}$. La compensation du biais jusqu'à des valeurs faibles de B_0 permet en particulier de comprimer très fortement le piège dans les directions transverses, conduisant à des nuages piégés de forme très allongée. La possibilité de faire varier la raideur du piège en faisant varier B_0 a été utilisée pour exciter des modes collectifs de vibration du nuage (voir l'annexe B).

Techniquement, les bobines du piège magnétique sont constituées de fil de cuivre de diamètre 1 mm enroulé en 144 spires de diamètre moyen 5 cm pour les bobines Q1 et Q2 et 103 spires de diamètre moyen 3 cm pour la bobine B3. Ces spires sont enfermées dans des boîtes hermétiques de PVC, à l'intérieur desquelles circule de l'eau au débit de 2 L/min par bobine. Initialement parcourues par un courant de 46.6 A, elles ont fini par fondre au bout de 2 années d'utilisation. Depuis leur reconstruction, elles sont parcourues d'un courant de 30 A pour produire le piège magnétique dans lequel est réalisé le refroidissement évaporatif. Lorsque les bobines Helmholtz H1 et H2 sont parcourues du même courant, les caractéristiques du piège magnétique sont celles données par le tableau 2.2. La détermination des paramètres B_0 ,

TAB. 2.2 – Paramètres usuels du piège magnétique constitué des 5 bobines en série. (Ce sont les caractéristiques du piège reconstruit en décembre 2002.)

Courant électrique	30 A
Puissance électrique	1600 W
Biais B_0	3.04 ± 0.05 G
Gradient B'	169 G/cm
Courbure B''	122 G/cm ²
$\omega_{\parallel}/2\pi$	90.8 ± 0.1 Hz
$\omega_{\perp}/2\pi$	807 ± 2 Hz
profondeur du piège	$\simeq 10$ mK ^a

^ala profondeur du puits de potentiel est en réalité de l'ordre de 20 mK, mais la paroi de la cellule de quartz orthogonale à l'axe x est à 15 mm du centre du piège et peut être atteinte par les atomes piégés ayant une énergie cinétique de $\simeq k_B \times 10$ mK.

B' et B'' a pu être obtenu par le calcul, connaissant la géométrie précise des bobines utilisées, ainsi que par la mesure directe du champ sur les trois axes x , y et z . Cette mesure est possible car l'ensemble des bobines du piège sont montées sur une armature qui est ensuite positionnée en bloc autour de la cellule. Les deux méthodes donnent des résultats en bon accord.

Revenons sur les conditions de validité de l'expression 2.2 du champ magnétique. Tout d'abord la condition de suivi adiabatique est en pratique toujours remplie dans notre expérience. Elle s'obtient en comparant la fréquence de Larmor au voisinage du fond du puits $\mu B_0 / \hbar$ à la fréquence de rotation de la direction du champ $\simeq v B' / B_0$, où $v = \sqrt{k_B T / m}$ est la vitesse typique d'un atome dans le piège (voir par exemple [77]). Ainsi pour une température donnée, le suivi adiabatique est assuré, y compris au fond du puits de potentiel, dès lors que

$$B_0^2 \gg \frac{\hbar B'}{\mu} \sqrt{\frac{k_B T}{m}}.$$

Avec les caractéristiques de piégeage données au tableau 2.2, cette condition est très largement vérifiée. Elle reste vérifiée lorsque l'on comprime le piège en compensant B_0 à de faibles valeurs. Ainsi, pour $B_0 = 100$ mG, le suivi adiabatique est assuré pour $T \ll 50$ mK, c'est-à-dire en permanence.

La condition d'harmonicité du piège n'est quant à elle réalisée que pour les nuages les plus froids que nous produisons. En effet, l'expression 2.2 est le résultat d'un développement limité valable lorsque $B_0 \gg B'y$, $B'z$ et $B_0 \gg B''x^2$. En prenant comme valeur de x, y et z les dimensions caractéristiques du nuage à l'équilibre thermodynamique dans le piège, $\sigma_{\perp, \parallel} = \sqrt{\frac{k_B T}{m \omega_{\perp, \parallel}^2}}$, et en exprimant les fréquences de piégeage en fonction de B_0 , B' et B'' , ces trois inégalités deviennent:

$$k_B T \ll \mu B_0.$$

Dans les conditions de piégeage décrites au tableau 2.2, le piège ne peut être considéré comme harmonique que lorsque la température du nuage est petite devant 0.4 mK. En pratique, la validité de la condition d'harmonicité peut être vérifiée expérimentalement, en mesurant la fréquence des oscillations du centre de masse du nuage dans le piège, ainsi que l'amortissement de ces oscillations. Ce type d'expériences et leur intérêt sont présentés au paragraphe 2.3.3. Lorsque cette condition n'est pas vérifiée, et en particulier que $k_B T \gg \mu B_0$, le piège devient "semi-linéaire". En effet, le développement limité du module du champ donnée par la formule 2.1 conduit à un potentiel de piégeage qui reste harmonique le long de son axe mou x , mais qui devient linéaire, dans le plan $x = 0$.

2.3.2 Transfert du MOT vers le piège magnétique

Le passage du nuage froid depuis le MOT par lequel il est initialement piégé vers le piège magnétostatique dans lequel il subit le refroidissement évaporatif se fait en plusieurs étapes. Initialement, le nuage piégé est relativement gros et "chaud" (1 mK), compte tenu du désaccord élevé qui caractérise le MOT (voir le tableau 2.1). De plus, il est décalé du centre du piège quadrupolaire vers les $x < 0$ (voir les axes représentés sur la figure 2.3), sous l'effet du faisceau repompeur. Par ailleurs, le minimum de champ magnétique du piège QUIC est quant à lui décalé vers les $x > 0$, de 5.3 mm, par rapport au centre du piège quadrupolaire

constitué par les seules bobines Q1 et Q2. Ce décalage est dû à l'asymétrie du piège QUIC. En effet la bobine B3 est plus petite que les deux autres, ce qui permet de la positionner plus près du nuage piégé, entre les bobines Q1 et Q2. Le piège ainsi réalisé est plus raide et plus profond, mais son centre est décalé par rapport au centre du quadrupole formé par les seules bobines Q1 et Q2.

Les étapes du transfert

Les étapes du transfert sont donc les suivantes (voir également [78, 28]):

- 1) Après 1 à 2 secondes de chargement du MOT, en présence du faisceau repompeur, on éteint le faisceau ralentisseur de manière à stopper le chargement, ainsi que le faisceau repompeur pour laisser le nuage se positionner au centre du piège magnéto-optique.
- 2) Une bobine d'axe x , non représentée sur la figure 2.3, sert alors à produire un champ magnétique longitudinal qui décale le centre du piège quadrupolaire du MOT, vers le centre du piège QUIC. Simultanément, le désaccord des faisceaux laser du MOT est diminué à -25 MHz de manière à comprimer légèrement le nuage afin d'adapter sa taille à celle du piège magnétostatique. Une compression importante par cette méthode nécessiterait un désaccord laser plus faible encore, mais les pertes par collisions Penning deviennent importantes pendant les quelques millisecondes nécessaires au nuage pour atteindre sa nouvelle position et sa nouvelle forme d'équilibre.
- 3) Ensuite une phase de mélasse optique est appliquée pendant 1 ms dans le but de réduire la température du nuage. Tous les champs magnétiques (piège quadrupolaire et bobine de "décalage") sont coupés subitement, les faisceaux MOT sont désaccordés à -1 MHz, et leur intensité réduite à environ I_{sat} par faisceau. A l'issue de cette mélasse, la température optimale n'est pas inférieure à 200 à 300 μ K (alors que la température Doppler est de 38 μ K). On pense que la densité optique du nuage, de l'ordre de 3, conduit à un déséquilibre de l'intensité des faisceaux contre-propageants qui sont absorbés au sein du nuage, ce qui limite l'efficacité du refroidissement. Cette phase de mélasse optique permet aussi de figer le nuage à l'endroit du centre du piège magnétique. En effet, à l'issue des étapes 1) et 2) au cours desquels le nuage est déplacé, celui-ci oscille sensiblement dans le piège.
- 4) Une impulsion de pompage optique constitué de deux faisceaux contre-propageants polarisés σ^+ permet alors de transférer les spins des atomes, initialement équi-répartis entre les trois sous-niveaux Zeeman, vers le niveau $m_J = +1$ qui est le seul piégé magnétiquement. Ce pompage optique permet au mieux de doubler le nombre d'atomes transférés dans le piège magnétique.
- 5) Le piège magnétique est enfin branché selon la procédure suivante. Un courant de 4 A est branché soudainement dans les bobines Q1, Q2 et B3 qui constituent le piège QUIC. La taille du nuage après le pompage optique correspond sensiblement à la taille d'équilibre du nuage dans le piège produit par ce courant. Le courant est alors augmenté jusqu'à sa valeur maximale de 30 A en 200 ms. Le nuage subit, dans ces conditions, une compression adiabatique. Le courant est ensuite branché de 0 à 30 A dans les bobines Helmholtz en 200 ms également, diminuant le biais B_0 de $\simeq 77$ G à $\simeq 3.0$ G, et comprimant radialement le nuage. Enfin, les 5 bobines Q1, Q2, B3, H1, H2 sont

branchées en séries, afin d'être toutes parcourues par le même courant de 30 A. Le piège produit est alors caractérisé par les paramètres donnés au tableau 2.2. Suite aux compressions successives, le nuage est porté à la température de 1.5 mK, et sa densité moyenne $\bar{n}$ est de l'ordre de $3 \times 10^9 \text{ at.cm}^{-3}$.

La durée de vie du nuage dans le piège magnétique

La proportion d'atomes ainsi transférés depuis le MOT vers le piège magnétique est typiquement de 2/3. Le nombre d'atomes dans le nuage décroît exponentiellement avec le temps, selon une constante de temps appelée durée de vie. Celle-ci est alors limitée par les collisions avec le gaz résiduel [28]. En particulier, elle dépend largement de la pression dans la chambre source. L'essentiel du gaz résiduel est donc de l'hélium dans l'état fondamental, provenant de la source. La fermeture de la vanne à l'entrée du ralentisseur Zeeman, après le chargement du piège magnétique, isole hermétiquement le nuage froid de la source. L'efficacité du pompage est alors suffisante pour évacuer rapidement l'hélium résiduel. On mesure alors des durées de vie maximales voisines de 90 s. Pour une opération routinière de la machine, cette vanne est maintenue ouverte, ce qui limite la durée de vie du nuage entre typiquement 25 et 50 secondes selon la pression dans la chambre source. Diminuer la pression dans la chambre source se fait en diminuant le flux d'hélium au travers de la décharge, ce qui conduit à une diminution du flux d'atomes métastables. Un bon compromis entre le nombre d'atomes piégés et la durée de vie est obtenu pour une pression mesurée entre 2 et 3×10^{-5} mbar dans la chambre source. La durée de vie du nuage est alors d'environ 30 secondes, ce qui est suffisant pour mener à terme le refroidissement évaporatif (voir le paragraphe 3.1).

Compte tenu du taux de pertes attendu dans le cas d'un échantillon d'hélium métastable non polarisé (voir le chapitre 1), la mesure de cette seule durée de vie, a constitué une première mise en évidence de la réduction des collisions Penning pour un échantillon polarisé de spin. Celle-ci est devenue plus spectaculaire lorsque le refroidissement évaporatif a été mis en œuvre, conduisant à des densités plus élevées.

2.3.3 Caractérisation expérimentale du piège

Les fréquences de piégeage sont mesurées en faisant osciller un nuage froid dans le fond du puits. Ces expériences doivent être réalisées sur des nuages refroidis dans la gamme du microKelvin par évaporation (voir le paragraphe 3.1). En effet, le nuage doit être suffisamment froid pour que la condition d'harmonicité soit remplie. Alors, l'oscillation du centre de masse du nuage dans le piège est non amortie. Elle peut être excitée en appliquant, pendant un court instant, un gradient de champ magnétique qui pousse le nuage et le décale du centre. Cette expérience est illustrée par la figure 2.4. La détection optique à l'aide d'une caméra CCD (voir annexe A) permet de repérer la position du centre du nuage et de la tracer en fonction du temps. Les fréquences d'oscillation sont, dans la direction longitudinale: $\omega_{\parallel} = 2\pi \times (90.8 \pm 0.1)$ Hz, et dans la direction transverse: $\omega_{\perp} = 2\pi \times (807 \pm 2)$ Hz. Ces résultats peuvent être comparés aux fréquences attendues, compte tenu des paramètres B_0 , B' et B'' . À l'aide des équations 2.3, on obtient $\omega_{\parallel} = 2\pi \times 93$ Hz et $\omega_{\perp} = 2\pi \times 812$ Hz, en bon accord avec les déterminations expérimentales.

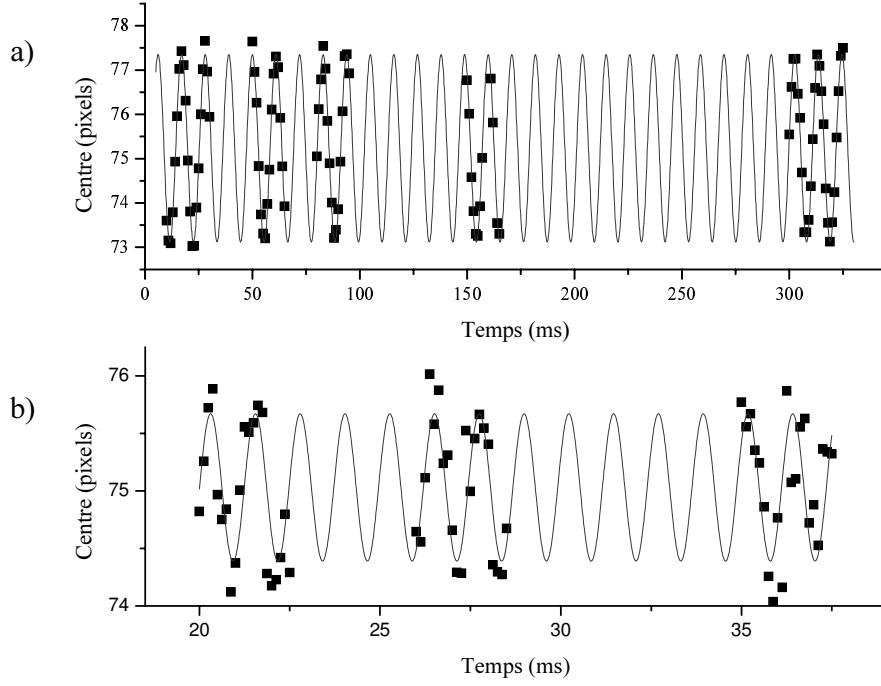


FIG. 2.4 – Oscillations du centre de masse d'un nuage préparé à 5 μK , a) le long de l'axe x (longitudinal): $\omega_{\parallel} = 2\pi \times (90.8 \pm 0.1)$ Hz, et b) le long de l'axe y (transverse): $\omega_{\perp} = 2\pi \times (805 \pm 2)$ Hz

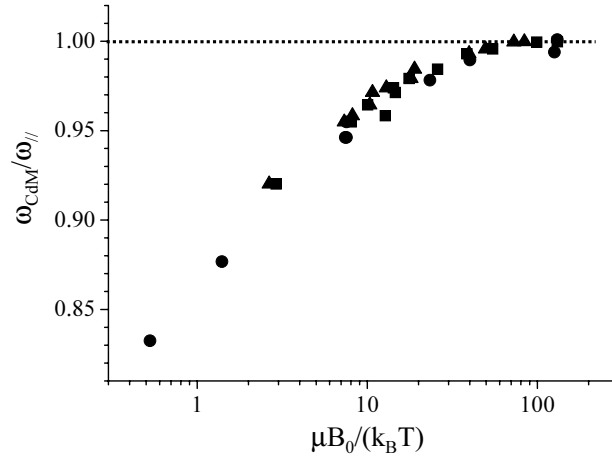


FIG. 2.5 – Fréquence d'oscillation du centre de masse en unité de $\omega_{\parallel}$, en fonction du rapport $\mu B_0/(k_B T)$ qui définit le critère d'harmonicité du piège. Chaque point est le résultat d'une mesure identique à celle présentée sur la figure 2.4-a. Les différentes formes de points représentent diverses séries de mesures dans diverses configurations de piégeage, et réalisées à différentes époques.

Mentionnons que la condition d'harmonicité $k_B T \ll \mu B_0$ doit être remplie pour que les fréquences d'oscillation du nuage correspondent aux fréquences déterminées ci-dessus.

La figure 2.5 illustre cette remarque. La fréquence d'oscillation ω_{CdM} du centre de masse du nuage selon l'axe longitudinal y est représentée en fonction du rapport $\mu B_0/(k_B T)$. On a constaté expérimentalement que ω_{CdM} s'approche de $\omega_{\parallel}$ à mieux que 2% près, lorsque $\mu B_0 > 20k_B T$. Avec $B_0 = 3.04$ G, cette condition impose $T < 20$ μ K. Pour des températures trop élevées, les atomes les plus chauds explorent des régions anharmoniques du potentiel et leur période d'oscillation dans le piège augmente d'autant plus que leur énergie est plus grande. Des fréquences d'oscillation différentes caractérisent des atomes d'énergies différentes. Le mouvement du centre de masse est alors observé à une fréquence moyenne plus basse, et il s'amortit avec une constante de temps qui caractérise la dispersion en fréquence des oscillations des atomes dans le piège.

La vérification de la condition d'harmonicité est devenue primordiale lors de l'étude du mode d'oscillation monopole-quadrupole $m=0$ du nuage. Cette étude est détaillée en annexe B. Elle consiste à sonder les propriétés de collisions élastiques au sein du gaz, en mesurant la dépendance de la fréquence d'oscillation et de l'amortissement de ce mode en fonction du taux de collisions élastiques. Une des difficultés que nous avons rencontrées, est que la fréquence et l'amortissement de cette excitation sont aussi fortement modifiés lorsque le gaz explore des régions anharmoniques du potentiel de piégeage, indépendamment du taux de collision. La mesure présentée par la figure 2.5 a donc été utilisée pour établir un critère d'harmonicité, qui doit être rempli en préliminaire à toute expérience d'excitation de modes collectifs (voir l'annexe B). En particulier, la recherche de taux de collisions élevés nous a conduits à comprimer fortement le piège magnétique, en diminuant B_0 , ce qui augmentait également T . La condition $\mu B_0 > 20k_B T$ devenait donc d'autant plus contraignante.

De manière routinière, quelques 10^8 atomes sont recueillis dans ce piège magnétique à une température voisine de 1.5 mK. Le refroidissement évaporatif permet alors de diminuer la température du gaz dans la gamme du microK, tout en augmentant la densité dans l'espace des phases jusqu'au seuil de dégénérescence quantique. Enfin, la détection du gaz est la dernière étape de l'expérience. Cette détection est rendue délicate par la nécessité de couper suffisamment rapidement le potentiel de piégeage magnétique.

Chapitre 3

Production et caractérisation d'un condensat d'hélium métastable

La très grande énergie électronique de He^* autorise une détection unique de cet atome métastable, puisqu'elle est suffisante pour arracher un électron à une surface quelconque avec une grande probabilité. Le nuage d'atomes d'hélium métastable ultra-froids était ainsi détecté dans l'expérience VSCPT (voir par exemple [37]), dans notre groupe. Cependant, malgré la possibilité d'une détection ionique et/ou électronique très efficace, une détection optique analogue à celle habituellement utilisée pour les alcalins a été mise en œuvre, à l'aide d'une caméra CCD. Ce choix a été initialement dicté par la nécessité d'un excellent vide laissant espérer une grande durée de vie du nuage. Ainsi, aucun détecteur n'a été placé à l'intérieur de l'enceinte pour préserver au maximum le vide. De fait le vide est très bon. Cependant, les caméras CCD usuelles ont une efficacité quantique de détection très faible à 1.083 nm, ce qui rend la détection plus difficile. A tel point que, dans notre expérience, "historiquement", la production d'un condensat de Bose-Einstein a été conditionnée par la possibilité de le détecter. En effet, seule l'acquisition d'une caméra plus performante en février 2001 nous a permis de poursuivre plus avant le refroidissement du nuage, tout en étant capable de le détecter. La description de la détection optique sur notre expérience et de ses difficultés a été reportée en annexe (annexe A). Cependant elle peut être considérée comme un prélude à ce chapitre consacré à la production/caractérisation du condensat.

Le chapitre s'ouvre sur la description du principe et de la réalisation du refroidissement évaporatif, avec pour résultat l'observation de la transition de phase de Bose-Einstein du nuage gazeux, résultat publié dans les références [25, 78]. Ensuite, nous discutons la caractérisation de la transition de phase: la détermination de la température critique, et le nombre d'atomes à la transition. Cette étude constitue également une illustration des possibilités de détection. Elle peut être utilisée pour calibrer le nombre d'atomes piégés, que, dans notre expérience, on ne peut pas mesurer précisément par l'analyse des images d'absorption. Enfin, les conditions d'optimisation de la rampe d'évaporation sont détaillées. En particulier, l'accent est porté sur le déroulement de la fin de la rampe d'évaporation, juste au-dessus de la température critique. Des taux de chauffage élevés ont été mesurés qui peuvent s'expliquer, lorsque la densité du gaz augmente, par un taux croissant de collisions inélastiques de

type Penning, très exothermiques. De plus, un taux de collisions élastiques élevé dans le gaz favorise *a priori* l'absorption par le nuage froid d'une partie conséquente de l'énergie libérée. Dans ces conditions, l'utilisation d'un piège trop raide, conduisant à la production de nuages très denses, dégrade les conditions d'observation de la condensation de Bose-Einstein. En particulier, le nombre maximal d'atomes dans un condensat est probablement limitée, dans notre expérience, par ces processus.

3.1 Refroidissement évaporatif et condensat de Bose-Einstein

3.1.1 Le refroidissement évaporatif

Pour un nuage suffisamment éloigné de la dégénérescence quantique, à l'équilibre thermodynamique dans un piège magnétostatique, la distribution en énergie cinétique des atomes est une maxwellienne caractérisée par une température T . Le refroidissement évaporatif consiste alors à retirer les atomes les plus “chauds”, c'est-à-dire ceux qui ont une énergie cinétique bien supérieure à $k_B T$. L'énergie cinétique moyenne par particule est donc diminuée. Ensuite, si des collisions élastiques se produisent en nombre suffisant entre les atomes, l'équilibre thermodynamique peut être atteint de nouveau, et la distribution en énergie cinétique évolue vers une nouvelle maxwellienne caractérisée par une température plus basse.

Le refroidissement évaporatif a été proposé pour la première fois par Hess en 1986 [79]. Dans notre expérience, une onde radio-fréquence (RF) est utilisée pour réaliser des transitions depuis l'état de spin piégé $m_J = +1$ vers les états $m_J = 0$, puis $m_J = -1$ non piégés. Cette technique, initialement démontrée par Martin *et. al.* en 1988 [80] et largement répandue depuis, est illustrée par la figure 3.1. La fréquence ν_{RF} de cette onde détermine l'énergie

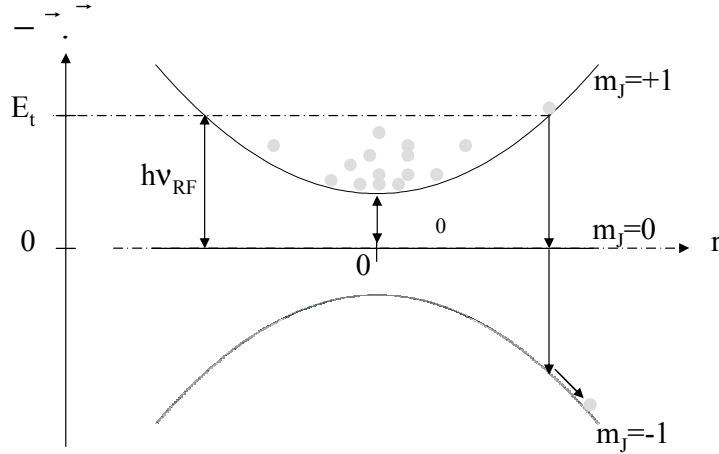


FIG. 3.1 — Illustration schématique de l'évaporation induite par transitions radio-fréquences (RF). Le puits de potentiel est tronqué à une hauteur E_t fixée par la fréquence ν_{RF} . Les atomes d'énergie cinétique supérieure à E_t sont expulsés du piège. Par conséquent, la température du gaz diminue sous réserve que des collisions élastiques en nombre suffisant assurent la thermalisation de l'ensemble du nuage.

cinétique $E_t = h\nu_{RF} = \eta \times k_B T$ des particules qui subissent cette transition et sont donc expulsées du piège. Si des collisions élastiques se produisent entre atomes, elles assurent la re-thermalisation du gaz. La température diminue donc, d'autant plus vite que le taux de collisions élastiques est élevé. En supposant, dans un premier temps, que la fréquence ν_{RF} est maintenue fixe, le paramètre $\eta = \frac{E_t}{k_B T}$ augmente alors, et l'évaporation devient de plus en plus efficace en terme de bilan énergétique, puisque chaque atome expulsé emporte une énergie de plus en plus grande devant l'énergie cinétique moyenne qui diminue. Simultanément, la probabilité pour qu'une particule ait une énergie supérieure à E_t diminue également et le processus de refroidissement ralentit, jusqu'à devenir plus lent que la durée de vie limitée du nuage. L'aspect cinétique est donc primordial.

Pour réaliser un refroidissement évaporatif efficace jusqu'à de très basses températures, il faut donc essentiellement respecter deux critères. Tout d'abord, il est nécessaire que le temps de thermalisation soit suffisamment court devant la durée de vie du nuage, c'est-à-dire que le taux de collisions élastiques Γ_{Coll} soit suffisamment élevé devant le taux de pertes par collisions inélastiques Γ_{in} . Le second impératif est de *forcer* le refroidissement en diminuant continûment la fréquence ν_{RF} , au fur et à mesure que la température diminue. On appellera par la suite "rampe d'évaporation" l'opération qui consiste à diminuer continûment cette "fréquence d'évaporation" ν_{RF} . L'étude théorique de la cinétique de l'évaporation (voir par exemple [75, 76]) montre qu'un procédé efficace consiste à maintenir constant le paramètre η à une valeur voisine de $\eta = 6$, tout au long du refroidissement. La vitesse de la rampe d'évaporation est alors fixée par la rapidité de la thermalisation du nuage. Dans ces conditions, il est possible de montrer qu'il existe une valeur initiale critique au rapport $\Gamma_{Coll}/\Gamma_{in}$ pour que le mécanisme de refroidissement "s'emballe". Lorsque cette valeur critique est dépassée, la densité du nuage et le taux de collisions élastiques augmentent au cours du refroidissement, malgré la perte d'atomes. Le processus de thermalisation s'accélère de façon exponentielle, et l'efficacité du refroidissement augmente : c'est un phénomène d'emballement. Alors la densité dans l'espace des phases augmente exponentiellement également, permettant d'atteindre le seuil de condensation. La valeur critique de $\Gamma_{Coll}/\Gamma_{in}$ dépend en réalité de la géométrie du piège. Elle peut être estimée de l'ordre de 150 dans un piège harmonique, et de 40 dans un piège semi-linéaire (voir par exemple [28], Annexe C, et ses références).

Le rapport $\Gamma_{Coll}/\Gamma_{in}$ des "bonnes" collisions sur les "mauvaises" étant essentiellement inconnu lors de la construction de notre expérience, le succès du refroidissement évaporatif était incertain. Heureusement, dans nos conditions expérimentales, ce rapport s'est révélé favorable¹, ainsi que l'observation du condensat l'a démontré.

3.1.2 Observation de la Condensation de Bose-Einstein

Dans les conditions de piégeage magnétique exposées dans le tableau 2.2, les conditions d'emballement sont réunies pour le refroidissement évaporatif de He*. La densité dans l'espace des phases augmente donc jusqu'au seuil de dégénérescence quantique. Le point critique est atteint lorsque la distance moyenne entre particules devient plus petite que l'extension spatiale des paquets d'ondes associés à chaque particule [9]. Au point critique exactement, la densité au centre du nuage n_C et la température T_C du gaz sont reliées, à l'équilibre thermodynamique,

1. Ce point est discuté dans la thèse de F. Pereira Dos Santos [28], chapitre 7.

par la relation:

$$n_C \Lambda_C^3 \simeq 2.612, \quad (3.1)$$

avec $\Lambda_C = h/\sqrt{2\pi m k_B T_C}$ la longueur d'onde de de Broglie thermique au seuil de condensation. Des phénomènes d'interférences quantiques se manifestent alors par l'émergence d'une nouvelle phase appelée condensat de Bose-Einstein. Ce condensat est constitué de particules qui sont toutes dans l'état fondamental du potentiel de piégeage, bien que la température soit encore bien plus grande que l'écart entre niveaux d'énergie dans le piège.

Plus la fréquence RF finale de refroidissement est basse, plus le nuage d'atomes est froid. Lorsque la température du gaz atteint la température critique, le condensat commence à se former au centre du nuage. En dessous de cette température, le gaz est constitué d'une partie condensée, au centre, en équilibre avec une partie non condensée, appelée le nuage *thermique*. Les images d'absorption mettent alors en évidence une double structure si caractéristique des expériences de condensation de Bose-Einstein de gaz dilués, et observée pour la première fois par Anderson *et al.* en 1995 [3]. La figure 3.2 illustre l'émergence de cette double structure dans le cas du condensat d'hélium métastable produit par notre machine. On reconnaît le condensat à sa forme d'ellipse verticale (selon y , parallèlement à l'axe fort du piège magnétique), alors que la forme d'équilibre du nuage dans le piège est une ellipse horizontale (selon x , parallèlement à l'axe mou du piège). Cette inversion d'ellipticité se produit lors de l'expansion libre du condensat et résulte des interactions de champ moyen au sein du gaz (voir le chapitre 4). À température non nulle, un nuage thermique accompagne le condensat. Le nuage thermique subit une expansion balistique résultant de la dispersion des

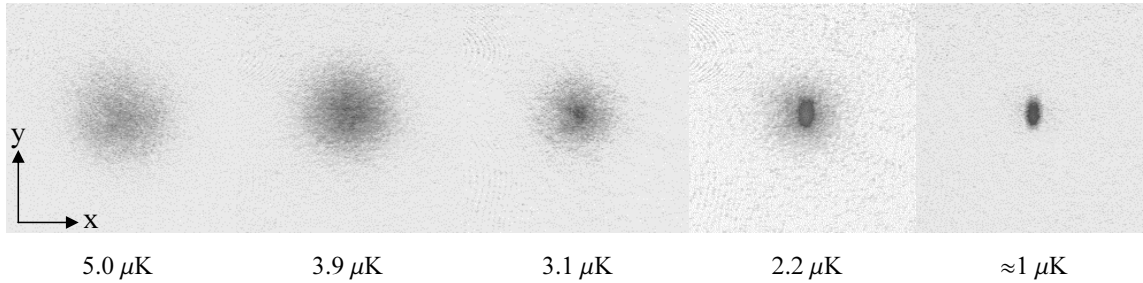


FIG. 3.2 – Images d'absorption d'un nuage d'hélium métastable traversant la transition de phase de Bose-Einstein. Chaque image représente un nuage différent, évaporé jusqu'à des températures décroissantes de gauche à droite, et détecté après une phase d'expansion balistique de 7 ms. La transition de phase est caractérisée par l'émergence d'une structure centrale identifiée comme le condensat de Bose-Einstein. La température du nuage, et en particulier sa température critique $T_C = 3.1 \pm 0.3 \mu\text{K}$, est déterminée selon la méthode exposée au paragraphe 3.2, à partir de la taille du nuage thermique (fraction non condensée), après expansion. De gauche à droite, malgré un temps d'expansion constant, le nuage thermique apparaît de moins en moins étendu, signe d'une température de plus en plus basse. À température non nulle, un condensat est entouré d'un gaz thermique avec lequel il est supposé en équilibre (voir l'image correspondant à $T = 2.2 \mu\text{K}$). Lorsque le gaz est suffisamment froid, le nuage thermique devient indétectable, et la température n'est plus mesurable directement (c'est le cas sur l'image la plus à droite). Dans notre expérience, le nuage thermique n'est plus détectable dès lors que la fraction condensée excède 50 %.

vitesses initiales. Sa taille renseigne donc sur la température du gaz partiellement condensé, supposé à l'équilibre thermodynamique dans le piège.

3.2 Caractérisation de la transition de phase

3.2.1 Ajustement des images d'absorption

La figure 3.3 illustre le résultat de l'ajustement de la densité optique d'un nuage condensé. Nous décrirons en détail l'étude de la forme et de la taille du condensat au chapitre 4.

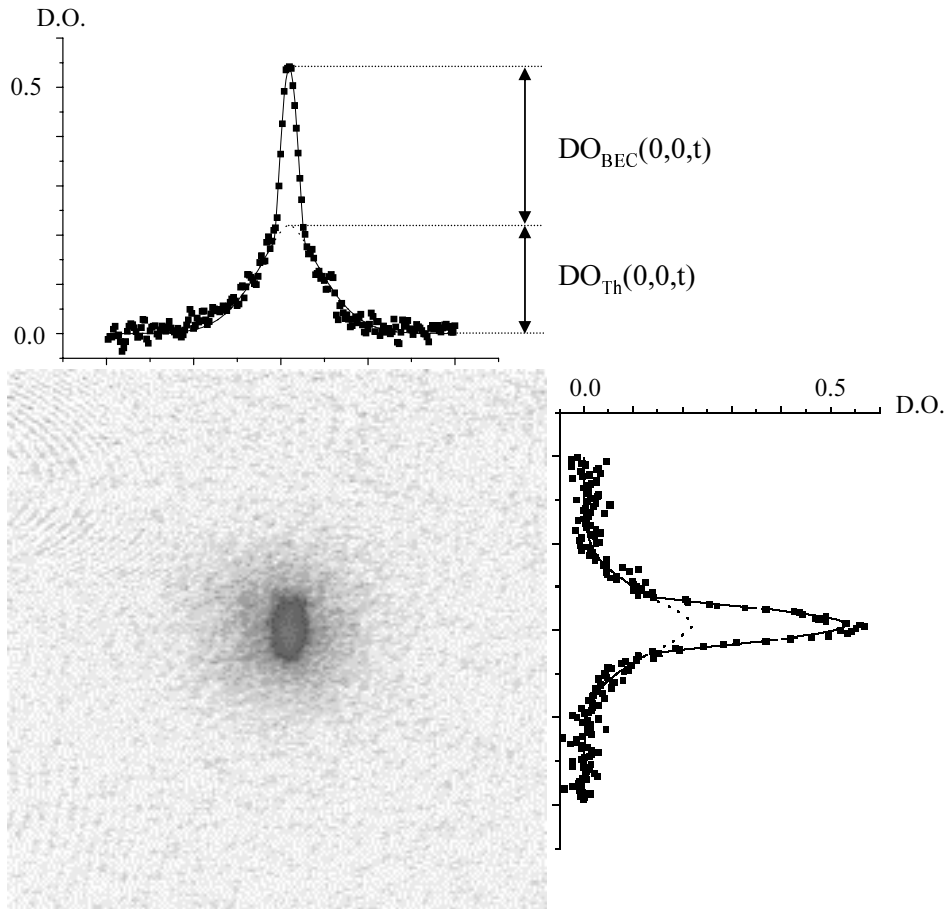


FIG. 3.3 – Image d'absorption d'un condensat de Bose-Einstein à la température de $2.2 \mu K$, avec sa fraction thermique. Le nuage est détecté après une coupure brutale du courant dans les 5 bobines du piège simultanément. Le temps d'expansion avant l'impulsion du laser de détection est de 7 ms. Les coupes horizontale et verticale de la densité optique du nuage sont représentées ainsi que leur ajustement par la fonction appropriée, en trait plein (voir dans le texte). La courbe en traits pointillés représente la fonction de Bose g_2 qui ajuste au mieux la partie non condensée du gaz. Les notations $DO_{BEC}(0,0,t)$ et $DO_{Th}(0,0,t)$ représentent les densités optiques au centre de la partie condensée et de la partie thermique, respectivement.

Mentionnons simplement ici que le profil de densité du condensat présente, dans le régime de Thomas Fermi, une forme de parabole inversée (voir par exemple [9, 81]). L'intégration de la fonction de distribution spatiale du condensat, le long de l'axe du faisceau imageur (z), donne l'expression suivante pour la densité optique DO_{BEC} du condensat après un temps de vol t :

$$DO_{BEC}(x, y, t) = \frac{\sigma_{abs}}{2\pi} \frac{5 N_0}{R_{\perp}(t) R_{\parallel}(t)} \left(1 - \frac{x^2}{R_{\parallel}^2(t)} - \frac{y^2}{R_{\perp}^2(t)} \right)^{3/2}, \quad (3.2)$$

où σ_{abs} est la section efficace d'absorption du faisceau sonde par les atomes, N_0 est le nombre d'atomes dans le condensat et $R_{\perp}(t)$ et $R_{\parallel}(t)$ sont les rayons du condensat après le temps de vol t .

En ce qui concerne la fraction non condensée du gaz, la statistique quantique ne peut plus être ignorée, dès lors que la température du gaz est voisine ou inférieure à la température critique. Le profil de densité de la partie thermique ne peut donc plus être assimilé à une gaussienne. La fonction de distribution spatiale est en réalité décrite par la fonction de Bose $g_{3/2}$ (voir par exemple [82]). La densité optique DO_{Th} s'en déduit également par intégration le long de l'axe z . Elle est alors décrite par la fonction de Bose g_2 et on obtient:

$$DO_{Th}(x, y, t) = \frac{\sigma_{abs}}{2\pi} \left(\frac{k_B T}{\hbar \bar{\omega}} \right)^3 \frac{1}{\sigma_{\perp}(t) \sigma_{\parallel}(t)} \times g_2 \left(\zeta \exp \left(-\frac{x^2}{2\sigma_{\parallel}^2(t)} - \frac{y^2}{2\sigma_{\perp}^2(t)} \right) \right), \quad (3.3)$$

$$\text{avec} \quad \sigma_{\parallel, \perp} = \sqrt{\frac{k_B T}{m \omega_{\parallel, \perp}^2} \left(1 + \omega_{\parallel, \perp}^2 t^2 \right)} \quad \text{et} \quad g_2(X) = \sum_{l=1}^{\infty} \frac{X^l}{l^2}, \quad (3.4)$$

où $\bar{\omega} = (\omega_{\perp}^2 \omega_{\parallel})^{1/3}$ est la moyenne géométrique des fréquences de piégeage, et $\zeta = \exp(\mu/(k_B T))$ est la fugacité du gaz (μ le potentiel chimique). Mentionnons que, contrairement à la formule donnant la densité optique du condensat, celle qui donne la densité optique du nuage thermique ne contient pas explicitement le nombre d'atomes N_{Th} de la composante thermique du gaz. En réalité, le nombre d'atomes est implicitement donné par la fugacité ζ ou le potentiel chimique μ .

Les images sont ajustées par la fonction $DO_{Th}(x, y, t) + DO_{BEC}(x, y, t)$, qui est la somme des contributions associées au gaz thermique d'une part et au condensat d'autre part. La température du gaz se déduit des dimensions $\sigma_{\parallel, \perp}$ de la partie non condensée. En particulier la température du gaz n'est plus mesurable lorsque la partie non condensée n'est plus détectable (c'est le cas pour l'image du condensat le plus froid sur la figure 3.2).

Le nombre d'atomes dans le gaz peut aussi être déduit des fonctions $DO_{Th}(x, y, t)$ et $DO_{BEC}(x, y, t)$ de la façon suivante. La densité optique est proportionnelle à la densité intégrée suivant la direction z . Intégrer les fonctions 3.3 et 3.2 suivant les deux autres directions nous donne donc deux nombres proportionnels au nombre d'atomes dans le nuage thermique et dans le condensat. Cependant, les coefficients de proportionnalité sont inconnus puisqu'ils contiennent σ_{abs} dans les deux cas (voir la discussion de l'annexe A). Une détermination indépendante du nombre d'atomes est nécessaire pour calibrer l'imagerie. En revanche, σ_{abs} disparaît lorsque l'on calcule le rapport des nombres d'atomes. On peut obtenir ainsi une mesure absolue de la fraction condensée N_0/N du gaz, N étant le nombre total d'atomes

dans le nuage:

$$\frac{N_0}{N} = \frac{\int \int DO_{BEC}(x,y,t) dx dy}{\int \int (DO_{BEC}(x,y,t) + DO_{Th}(x,y,t)) dx dy}$$

Remarque sur l'approximation d'une distribution thermique par une gaussienne

La figure 3.4 illustre la différence entre le profil de densité optique pour un nuage thermique au seuil de condensation (fonction de Bose g_2 , avec $\zeta = 1$), et pour un nuage thermique gaussien. La distribution de Bose g_2 est tracée en trait continu noir, et la gaussienne qui l'approche au mieux est tracée en trait continu gris. La température d'un nuage caractérisé par une fonction de Bose est donnée, après temps de vol, par la largeur de la gaussienne en pointillés, qui représente le premier terme de la somme infinie g_2 (se reporter aux expressions données par les formules 3.3 et 3.4). Au seuil de condensation ($T = T_C$ et $\zeta = 1$), la fonction g_2 étant plus "piquée" qu'une gaussienne, son ajustement par une gaussienne est sensiblement moins large que le premier terme de la série infinie. Ainsi, l'ajustement par une gaussienne

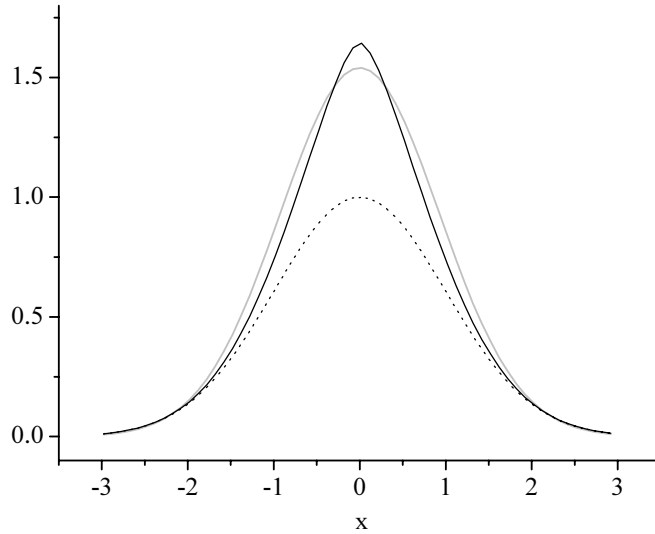


FIG. 3.4 – Comparaison de la distribution de Bose, et de la distribution gaussienne pour un nuage thermique: La courbe en trait noir continu est la fonction de Bose $g_2\{\exp(-x^2/(2\sigma^2))\}$, avec $\sigma = 1$. Compte tenu de la formule 3.3, elle caractérise la densité optique d'un nuage au seuil de condensation ($\zeta = 1$), ayant une température donnée par $T = \sigma^2 = 1$, en unités arbitraires.

La courbe en pointillés noirs est la gaussienne $\exp(-x^2/2)$ qui constitue le premier terme de la somme infinie $g_2(\exp(-x^2/2))$. Cette gaussienne est caractérisée par un écart-type (une largeur) $\sigma = 1$ qui conduit à la température du nuage.

Enfin la courbe en trait continu gris représente le meilleur ajustement (par minimisation des moindres carrés) de la distribution de Bose par une gaussienne $\alpha \exp(-x^2/(2\beta^2))$. L'écart-type de cette gaussienne est alors $\beta = 0.852$. La température $T = \beta^2$ qu'on en déduit est donc sous-estimée d'environ 27 %.

de la densité optique d'un nuage thermique au seuil de condensation, conduit à une sous-estimation de la température du gaz d'environ 27%. Pour des températures supérieures à T_C , la fonction de Bose g_2 tend vers une gaussienne dès que la température atteint quelques T_C , typiquement.

Nous verrons au paragraphe 3.5 que, dans notre expérience, la calibration du nombre d'atomes découle de la mesure de température, et en particulier de la température critique de la transition. Il est donc nécessaire d'ajuster le profil de densité optique des nuages thermiques par une fonction g_2 au voisinage du seuil de condensation. Cela représente néanmoins une difficulté supplémentaire pour le programme d'ajustement des images, puisqu'alors un paramètre supplémentaire intervient dans la fonction modèle: la fugacité ζ . Pour un rapport signal/bruit donné, la qualité de l'ajustement est d'autant moins bonne que le nombre de paramètres à ajuster augmente.

En pratique, nous n'avons utilisé une fonction g_2 que pour ajuster les images enregistrées dans le but de mesurer T_C (cf. paragraphe suivant). Cependant, nous utilisons un ajustement gaussien dès lors qu'une mesure relative de taille suffit (mesures d'oscillations, mesures de taux de chauffage, etc.), ou que la température du gaz dépasse typiquement quelques T_C .

3.2.2 Mesure de la température critique

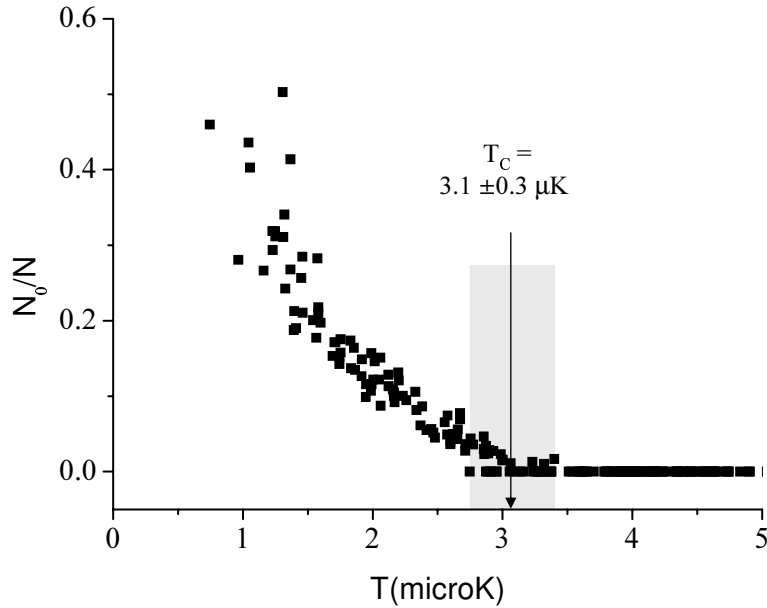


FIG. 3.5 – Mesure de la température critique. Fraction condensée en fonction de la température en μK .

Le tracé de la fraction condensée en fonction de la température est représenté sur la figure 3.5. On mesure, dans les conditions de piégeage données par le tableau 2.2, une température critique de $3.1 \mu\text{K}$, avec une incertitude discutée ci-dessous.

La dispersion des points expérimentaux autour du seuil de condensation constitue l'erreur

“statistique”. Elle a plusieurs origines. Tout d’abord le rapport signal à bruit qui caractérise nos images est au mieux de l’ordre de 10, et le programme d’ajustement des images distingue parfois difficilement un condensat naissant d’un pic de bruit, au voisinage de T_C . De plus les fluctuations expérimentales, d’une réalisation à l’autre, participent à la dispersion des données. Ces fluctuations sont principalement dues aux fluctuations du biais B_0 (de quelques dizaines de mG) et aux fluctuations du jet d’atomes métastables, et donc du nombre d’atomes piégés (de l’ordre de $\pm 5\%$). L’erreur d’origine statistique diminue lorsque l’on augmente le nombre d’images enregistrées. La mise en œuvre de l’automatisation de l’expérience, et en particulier la possibilité de reproduire une séquence donnée en boucle un grand nombre de fois, ont contribué à la stabilisation de l’expérience et à la réduction de l’erreur statistique, que nous estimons à quelques pour cent.

L’erreur systématique sur la détermination de T_C peut provenir d’une mauvaise calibration du grandissement du système d’imagerie, puisque la température se déduit de la mesure de la taille du nuage thermique (formule 3.4). La méthode de calibration exposée en annexe (paragraphe A.4.1) est *a priori* relativement précise, et on estime le grandissement connu à mieux que 5% près. Par ailleurs, la résolution du système d’imagerie est au mieux égale à la taille effective (*i.e.* au niveau du nuage) d’un pixel du détecteur CCD. Compte tenu de la taille caractéristique du nuage thermique à 3 μK après temps de vol dans cette expérience, on peut estimer que l’erreur qui en résulte est de l’ordre de 3 à 5 %.

En définitive, la mesure de température critique illustrée par la figure 3.5 est entachée d’une erreur estimée à 10 %, incluant les erreurs statistiques et systématiques dues à la résolution et à la calibration du grandissement.

3.2.3 Calibration du nombre d’atomes

Pour un gaz parfait de bosons à l’équilibre thermodynamique dans un piège harmonique, la température T_C de transition de phase est reliée au nombre total N_C d’atomes à la transition par la formule suivante (voir, par exemple [9, 82]):

$$N_C \simeq 1.202 \left(\frac{k_B T_C}{\hbar \bar{\omega}} \right)^3 \quad (3.5)$$

Après avoir mesuré la température critique ($T_C = 3.1 \mu\text{K}$ dans l’expérience décrite ci-dessus), on peut utiliser cette formule pour en déduire le nombre d’atomes à la transition. Les fréquences d’oscillation du nuage dans le fond (harmonique) du piège sont mesurées précisément, et on en déduit $N_C = 5.5 \times 10^6$ à 30 % près compte tenu de l’erreur estimée sur T_C .

Cependant les conditions de validité de la formule 3.5 ne sont pas toutes remplies. En particulier, le gaz n’est pas un gaz parfait et les interactions entre atomes peuvent être décrites par un champ moyen, lui même caractérisé par la longueur de diffusion (cf. chapitre 4). Ces interactions sont en moyenne répulsives, et l’extension spatiale du gaz est en réalité plus grande que celle du gaz parfait dans les mêmes conditions de piégeage. Ainsi, pour un même nombre d’atomes, la densité d’atomes au centre est moindre dans le cas réel, et par conséquent, la température critique plus basse, d’après la formule 3.1. Giorgini *et al.* en 1996 [83], puis Arnold *et al.* en 2001 [84], montrent que pour un gaz réel confiné dans un piège

harmonique, l'expression de T_C peut s'écrire, au premier ordre en $N^{1/6} a/a_{OH}$:

$$T_C = T_C^P \left(1 - 1.33 \frac{a}{a_{OH}} N^{1/6} \right), \quad (3.6)$$

avec T_C^P la température critique du gaz parfait pour le même nombre d'atomes, donnée par la formule 3.5. Les longueurs a et a_{OH} représentent respectivement la longueur de diffusion, et la taille caractéristique de l'état fondamental du piège magnétique harmonique. Dans le cadre expérimental de la figure 3.5, on a $a_{OH} = \sqrt{\hbar/(m\bar{\omega})} \simeq 2.55 \mu\text{m}$. Si l'on prend pour a la valeur $a = 16 \text{ nm}$ [25], la correction sur T_C due aux interactions vaut $1.33 N^{1/6} a/a_{OH} \simeq 12\%$.

Inversement, pour une température critique mesurée expérimentalement, le nombre d'atomes est en réalité plus élevé que celui déterminé par la formule 3.5 dans l'hypothèse d'un gaz parfait. La référence [53] présente un calcul approché de l'erreur commise sur N par l'utilisation de la formule 3.5, lorsque les interactions ne sont plus négligeables. Dans notre situation expérimentale, et en supposant toujours $a = 16 \text{ nm}$, le nombre d'atomes serait sous-estimé d'environ 40%. Cette erreur reste proche de 25 % si $a = 8 \text{ nm}$.

Enfin, la discussion précédente sur l'effet (estimé de façon approchée) des interactions suppose que le nuage est à l'équilibre thermodynamique. Or cette hypothèse peut s'avérer, elle aussi, discutable. En effet le groupe de J. T. M. Walraven [85] a récemment mis en évidence la formation de condensats de Rb nettement hors d'équilibre. Partant d'un gaz thermique proche du seuil de condensation, et préparé dans le régime hydrodynamique (voir le paragraphe 3.3.3), l'évaporation rapide du nuage produit des condensats dont les modes collectifs d'oscillation sont excités, ce qui conduit au phénomène de "focalisation de condensat" après expansion. Ainsi que nous le montrons dans le paragraphe suivant, le nuage de He* que nous produisons, est dans un régime collisionnel approchant le régime hydrodynamique. De plus, les collisions inélastiques de type Penning induisent de forts taux de chauffage lorsque l'on approche du seuil de condensation et que la densité atomique augmente, ce qui nous oblige à accélérer fortement la rampe d'évaporation, en fin de refroidissement. Dans ces conditions, la validité de l'hypothèse d'équilibre thermodynamique à la transition reste à démontrer.

En résumé, à défaut d'une autre méthode plus exacte, nous utilisons malgré tout la formule 3.5 pour calibrer l'imagerie à $T = T_C$. Deux sources d'erreurs en découlent. La première vient de l'incertitude qui accompagne la mesure de T_C . L'erreur sur la calibration du nombre d'atomes est 3 fois plus grande puisque $N_C \propto T_C^3$. La seconde provient de l'effet des interactions et des conditions de validité de la formule 3.5 qui ne sont pas toutes respectées. Cependant, la condition d'équilibre thermodynamique peut être approchée en réalisant une rampe d'évaporation lente dans un piège peu raide, limitant ainsi les collisions inélastiques et les taux de chauffage importants mis en évidence. De plus, dans ces conditions, le nuage est moins dense, et l'effet des interactions est minimisé, limitant d'autant l'erreur commise pour la calibration.

3.3 Etude de la fin de rampe d'évaporation

Les observations décrites dans l'ensemble de ce paragraphe sont le résultat d'expériences menées dans un piège magnétique plus raide que celui décrit en détail au chapitre précédent

et actuellement utilisé. Les bobines étaient sensiblement les mêmes, mais le courant était fixé à 46.6 A. Les fréquences de piégeages étaient alors $\omega_{\perp} = 2\pi \times 988$ Hz, avec un biais B_0 de 5.1 G, et $\omega_{\parallel} = 2\pi \times 115$ Hz. La profondeur du piège était de $\simeq 16$ mK. Dans ces conditions, après optimisation de la rampe d'évaporation, la température critique était voisine de $4.5 \mu\text{K}$, et la densité du gaz à la transition, voisine de 4×10^{13} atomes/cm³.

3.3.1 Régime d'emballlement

L'optimisation de la rampe d'évaporation a été réalisée en sectionnant la rampe en 7 segments durant lesquels la fréquence d'évaporation varie linéairement. À chaque étape, la vitesse de la rampe ainsi que la puissance de l'onde radio-fréquence ont été ajustées de manière à optimiser la densité optique du nuage, en fin de segment. Dans un piège harmonique, on montre que pour un nuage thermique, la densité optique au centre est directement proportionnelle au taux de collisions élastiques. Optimiser la densité optique revient donc à optimiser les conditions d'emballlement du refroidissement évaporatif, dans l'espoir de produire le condensat le plus gros possible, en un temps le plus court possible. La rampe d'évaporation optimale, depuis 1.5 mK jusqu'à la transition de phase, dure 8 à 10 secondes. La durée totale de la rampe peut être ajustée selon les conditions de fonctionnement de la source d'atomes. En effet le flux d'atomes métastables peut varier, et par conséquent le nombre d'atomes initialement chargé peut changer, modifiant le taux initial de collisions élastiques dans le gaz et ainsi la rapidité de la thermalisation. D'autre part, une variation de la pression dans la chambre source, entraîne également une modification de la durée de vie du nuage, ce qui influence également la rapidité à laquelle on peut évaporer le nuage.

A priori, le piège magnétique doit être le plus raide possible pour favoriser l'obtention d'une densité élevée, et par conséquent d'un taux de collisions élastiques le plus élevé possible. Nous avons pu constater que cette proposition n'est pas exacte dans notre cas. En particulier, si la raideur du piège magnétique est trop importante, la densité optique cesse d'augmenter en fin de rampe d'évaporation, et peut même diminuer: on quitte le régime d'emballlement.

La figure 3.6-a représente l'évolution de la densité optique du nuage après 3 ms de temps de vol, en fonction de la température du gaz en fin de rampe d'évaporation. Chacun des points expérimentaux est le résultat d'une nouvelle série d'expériences permettant d'optimiser la rampe d'évaporation pour une fréquence finale fixée, en faisant varier la vitesse du dernier segment de la rampe. Les données reportées sont les densités optiques maximales observées au cours de chacune de ces expériences d'optimisation, et les températures correspondantes. On constate une diminution de la densité optique, et donc du taux de collisions élastiques en fin de rampe. Dans ces conditions, cependant, nous pouvons suivre l'évolution de la densité dans l'espace des phases (figure 3.6-b), et constater qu'elle augmente régulièrement comme on s'y attend puisqu'on observe la transition de phase.

Pour un nuage thermique, dans un piège harmonique, le taux de collisions élastiques, tout comme la densité optique au centre, est proportionnel à N/T . La densité dans l'espace des phases est quant à elle proportionnelle à N/T^3 . On est donc dans un régime qui n'est plus le régime d'emballlement, mais où l'évaporation permet encore d'augmenter N/T^3 malgré la diminution de N/T .

Nous avons augmenté davantage la raideur du piège en diminuant le biais B_0 . Nous avons

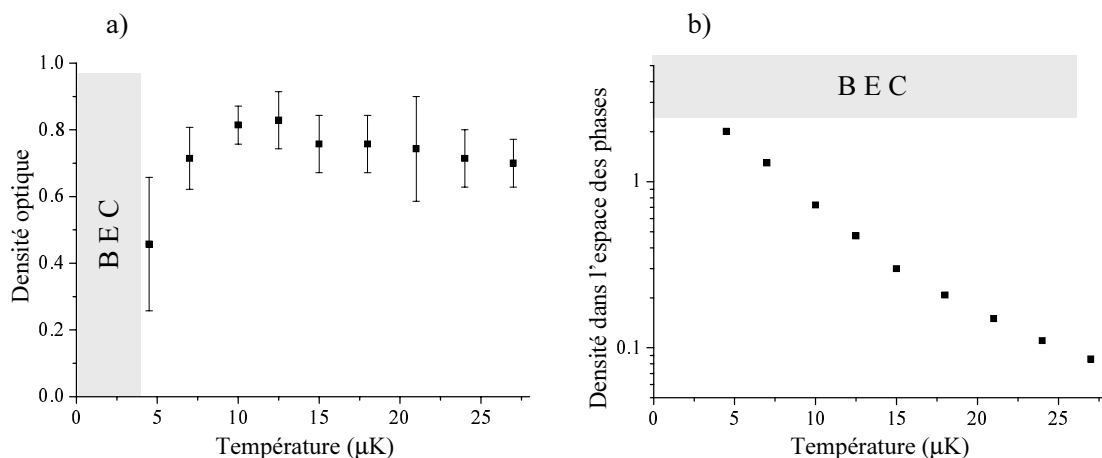


FIG. 3.6 – a) Densité optique au centre du nuage après 3 ms de temps de vol, en fonction de la température du gaz en fin de rampe d'évaporation. La diminution de la densité optique en fin de rampe signifie une diminution du taux de collisions élastiques: le processus de refroidissement quitte le régime d'emballement. b) Cependant, la densité dans l'espace des phases augmente toujours au cours du refroidissement, autorisant l'observation de la transition de phase. Ces données expérimentales ont été obtenues dans le piège parcouru par un courant de 46.6 A (i.e. piège très confinant).

alors constaté que la densité optique du nuage devenait encore plus faible en fin de rampe. Le rapport signal à bruit devenant insuffisant dans ces expériences, nous n'avons pas approfondi l'étude de l'évaporation dans un piège trop raide. Qualitativement, cependant, deux conclusions ont pu être tirées. Tout d'abord, il devient nécessaire d'évaporer très vite pour optimiser le nombre d'atomes dans le condensat en fin de rampe. Ensuite les condensats obtenus contiennent moins d'atomes. Ces deux observations, ainsi que la mise en évidence d'une diminution du taux de collision en fin de rampe d'évaporation peuvent être expliquées par l'hypothèse selon laquelle les processus collisionnels de type Penning redeviennent importants lorsque que la densité du gaz est trop grande, conduisant à des pertes et des taux de chauffages conséquents au sein du nuage froid. L'observation même de la transition de phase pourrait en être menacée dans des pièges trop raides.

3.3.2 Taux de chauffage

Observation expérimentale

Pour tenter d'expliquer la diminution du taux de collisions élastiques en fin de rampe de refroidissement, nous avons mesuré le taux de chauffage du gaz froid selon l'expérience décrite par la figure 3.7.

Nous préparons un nuage vers 11 μK, dans les conditions de la figure 3.6 du paragraphe précédent. Ce nuage est donc celui pour lequel le taux de collisions élastiques est maximal (voir la figure 3.6-a). Sa densité au centre n_0 est voisine de 2×10^{13} atomes/cm³. Puis nous laissons ce nuage évoluer dans le piège magnétique, de profondeur 16 mK en l'absence de

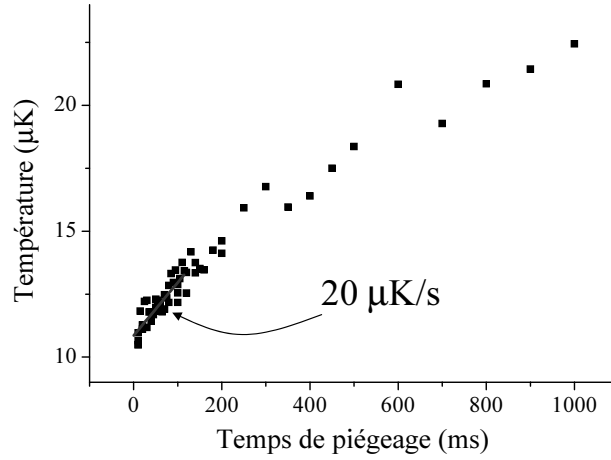


FIG. 3.7 — Mesure du taux de chauffage. Un nuage est préparé vers $11 \mu\text{K}$, ce qui correspond au taux de collision élastique maximal réalisé au cours de l'expérience décrite par la figure 3.6 au paragraphe précédent. L'onde radio-fréquence de refroidissement est ensuite éteinte, et le nuage est maintenu pendant un temps variable dans le piège magnétique, de profondeur $\simeq 16 \text{ mK}$. Le piège est ensuite coupé, et le nuage détecté après expansion. Sa température en est déduite, et tracée en fonction du temps de piégeage. L'augmentation de la température du gaz pendant la durée de piégeage est alors initialement de l'ordre de $20 \mu\text{K/s}$. Le taux de chauffage diminue ensuite, en même temps que la densité du gaz.

toute onde radio-fréquence de refroidissement. Nous mesurons alors un taux de chauffage initial aussi élevé que $20 \mu\text{K/s}$ (voir la figure 3.7). Ce taux de chauffage diminue avec la durée de piégeage, en même temps que la densité du gaz.

Nous avons vérifié que le taux de chauffage diminue également avec la profondeur du piège. En effet on peut réaliser la même expérience en maintenant une onde radio-fréquence qui tronque le potentiel de piégeage à une certaine hauteur. Pour le même nuage vers $11 \mu\text{K}$, le taux de chauffage initial mesuré tombe de 20 à $1.5 \mu\text{K/s}$ lorsque la profondeur du piège est réduite de 16 mK (sans couteau RF) à 0.5 mK (avec couteau RF). Ceci suggère que des atomes “chauds” sont produits au sein du nuage, qui peuvent rester piégés si le piège est suffisamment profond. Ces atomes, en moyenne bien plus rapides que ceux du gaz ultrafroid obtenu en fin de rampe d'évaporation, produisent un nuage piégé connu sous le nom de nuage de Oort (voir par exemple le chapitre 8 de la référence [86]). Il peut échauffer considérablement le gaz ultrafroid par contact thermique.

Origine du chauffage

Un mécanisme de production d'atomes “chauds” au sein d'un nuage de gaz rare métastable a été proposé par Beijerinck *et al.* en 2000 [87]. L'idée initiale consiste à considérer les *collisions élastiques secondaires* entre les atomes ultrafroids piégés, et les produits des collisions Penning, très énergétiques. En effet, malgré l'inhibition des collisions Penning par la polarisation du gaz, les processus inélastiques redeviennent importants lorsque l'on approche de la transition de phase, à cause de la densité élevée du gaz. Les collisions secondaires considérées

sont alors $\text{He}(1^1S_0) + \text{He}^*$, $\text{He}^+ + \text{He}^*$, et $\text{He}_2^+ + \text{He}^*$, avec des énergies moyennes de collision de 500 K pour les deux premières, et 17 K pour la troisième. Lorsque ces collisions se font avec un paramètre d'impact suffisamment élevé, elles communiquent suffisamment peu d'énergie aux atomes froids pour qu'ils puissent rester piégés. La référence [87] donne des expressions approchées pour les sections efficaces de collision pour ces trois processus. En se limitant aux atomes He^* chauffés qui restent piégés, on peut alors estimer l'énergie moyenne communiquée au gaz par chacun des processus. En supposant que toute cette énergie contribue instantanément à échauffer le gaz, on en déduit un taux de chauffage qui dépend de la profondeur du puits, et du taux de collisions Penning $\beta \simeq 10^{-14} \text{ cm}^3/\text{s}$. Nous avons appliqué ce calcul à nos conditions expérimentales: $n_0 = 2 \times 10^{13} \text{ atomes/cm}^3$ à 11 μK dans un piège de profondeur 16 mK et caractérisé par des fréquences d'oscillations longitudinale et transverses de 115 Hz et 988 Hz respectivement. Le taux de chauffage ainsi estimé s'élève à 20 $\mu\text{K/s}$, d'après [87]. L'égalité entre le taux de chauffage mesuré et le taux de chauffage estimé doit être considérée comme fortuite. Cependant, l'ordre de grandeur est bon, ce qui laisse à penser que l'origine du chauffage est bien comprise: les ions produits par les collisions Penning entrent en collision avec des atomes métastables piégés, qui peuvent rester piégés mais acquérir une énergie cinétique élevée. Celle-ci est alors redistribuée à l'ensemble du gaz par les collisions élastiques.

D'autres processus de chauffages ont été envisagés, tel que le chauffage induit par les pertes à trois corps ou par les collisions avec le gaz résiduel, mais les taux de chauffage estimés sont de plusieurs ordres de grandeur inférieurs à ceux observés. Seul l'existence de collisions secondaires avec des produits de collisions Penning conduit à de tels ordres de grandeur. Il apparaît en outre que la contribution dominante à ce chauffage vient du processus $\text{He}^+ + \text{He}^*$.

Conclusion

Un chauffage important a été mis en évidence dans le gaz thermique en fin de rampe d'évaporation. Ce chauffage résulte de collisions secondaires entre produits de collisions Penning et atomes ultra-froids piégés. L'étude quantitative de la dynamique de chauffage est cependant assez largement aléatoire. En effet, deux types de mécanismes peuvent être invoqués, qui participent simultanément à la redistribution d'énergie entre les atomes rapides ("chauds") produits et le gaz ultra-froid. Tout d'abord, lorsque le nuage est suffisamment dense, un atome rapide traversant le nuage froid peut avoir une probabilité plus grande que 0.5 de faire une collision élastique avec un des atomes ultra-froids du gaz. En particulier, lorsque l'on approche du régime hydrodynamique (voir le paragraphe suivant), on approche également de cette situation où le nuage devient "collisionnellement opaque". Alors des phénomènes d'avalanches collisionnelles accélèrent la redistribution d'énergie [88]. Ces phénomènes conduisent à des pertes considérablement accrues au cours du refroidissement évaporatif. Par ailleurs, en l'absence de refroidissement évaporatif, lorsque la profondeur du piège est très grande devant la température du nuage, ce qui est le cas dans l'expérience illustrée par la figure 3.7, la dynamique du processus de chauffage doit tenir compte de l'échange d'énergie entre le gaz ultra-froid et le nuage de Oort, dont la distribution en énergie cinétique est mal caractérisée. Ainsi, l'analyse quantitative est difficile car trop de facteurs

restent mal connus, en particulier la longueur de diffusion qui est un paramètre clé dans la description de ces processus de chauffage.

3.3.3 Vers le régime hydrodynamique ?

Le régime hydrodynamique est atteint pour un gaz dilué piégé, lorsque le libre parcours moyen au sein du gaz devient plus petit que les dimensions du nuage. Alors le taux de collisions élastiques devient grand devant les fréquences d'oscillation dans le piège. Dans la plupart des expériences de condensation de Bose-Einstein réalisées jusqu'alors, le gaz thermique reste dans un régime où le libre parcours moyen est grand devant la taille du nuage. C'est le régime dit "collisionless" (sans collisions), bien que suffisamment de collisions élastiques soient présentes pour assurer la thermalisation du gaz et son refroidissement évaporatif. À notre connaissance, seule la machine construite par le groupe de J. T. M. Walraven [85] (2002) a mis en évidence, dans un gaz de Rb, un comportement profondément hydrodynamique du gaz thermique, avec un libre parcours moyen plus petit que les deux dimensions du nuage, dans un piège en forme de cigare.

Dans les conditions de température, de densité, et de piégeage décrites au paragraphe 3.3.2, le libre parcours moyen est plus petit que la grande dimension du nuage. En effet les tailles du nuage à 11 μK sont 210 μm et 24 μm . En supposant $a = 16$ nm, le libre parcours moyen peut être estimé par $1/(\bar{n}\sigma_0) \simeq 22$ μm , avec $\bar{n} = n_0/2^{3/2} \simeq 0.7 \times 10^{13}$ cm^{-3} la densité moyenne du gaz. Il est équivalent de comparer le taux de collisions élastiques Γ_{Coll} aux fréquences de piégeage. Dans les mêmes conditions on estime $\Gamma_{Coll} \simeq 2\pi \times 2.5$ kHz $\simeq 2.5\omega_{\perp} \simeq 22\omega_{\parallel}$. Il semble donc que notre nuage de He^* soit profondément dans le régime hydrodynamique, au moins le long du grand axe du nuage.

Dans ces conditions expérimentales, les modes collectifs d'excitations du gaz sont fortement affectés. En particulier, D. Guéry-Odelin *et al.* [89] ont prédit en 1999 que les fréquences d'oscillation et l'amortissement des modes monopolaire et quadrupolaires sont modifiés sous l'influence des collisions élastiques. Un mode monopole-quadrupole $m=0$, en particulier, a été étudié expérimentalement dans cette thèse. Cette étude est présentée en annexe B. Elle permet une mesure indépendante du taux de collisions élastiques, en combinant la mesure de la fréquence et de l'amortissement du mode collectif étudié, et la prédiction théorique des auteurs de [89].

La mesure systématique des fréquences d'oscillation et de l'amortissement de ce mode monopole-quadrupole a révélé en particulier deux résultats importants. Tout d'abord, le taux de collisions élastiques Γ_{Coll} mesuré ainsi est également maximal dans un gaz préparé au voisinage de 11 μK , et il diminue si l'on poursuit l'évaporation vers le point critique, confirmant l'étude indépendante présentée sur la figure 3.6. Ensuite, ce taux de collisions élastiques maximal est plus petit d'un facteur 10 que celui que l'on attendait, avec les ordres de grandeur présentés ci-dessus. Ce dernier résultat laisse penser que la longueur de diffusion a est vraisemblablement plus faible que 16 nm.

L'étude des modes d'oscillations du gaz thermique méritera d'être reprise lorsque a sera connue précisément, en vue de vérifier l'accord entre les deux déterminations indépendantes du taux de collisions élastiques et de démontrer expérimentalement les prédictions théoriques de la référence [89].

Chapitre 4

Détermination de la longueur de diffusion

La description des collisions élastiques dans un nuage ultra-froid se fait en introduisant le concept de *longueur de diffusion*, notée a . Au cours du paragraphe 4.1, la discussion est illustrée à l'aide de l'expression analytique approchée du potentiel d'interaction calculé *ab initio* par Stärk et Meyer [54]. En particulier, l'accent est mis sur l'impossibilité actuelle de calculer précisément la longueur de diffusion. Seule une détermination à partir d'une mesure expérimentale peut donner satisfaction. Le paragraphe 4.2 présente une détermination expérimentale de a faite à partir de la mesure de la taille du condensat. On obtient $a \simeq +15$ nm, mais l'incertitude sur a reste importante, et constitue un handicap dans la réalisation de mesures quantitatives dans une expérience de condensation de Bose-Einstein (décalage de la température critique, calibration du nombre d'atomes, étude fine du régime hydrodynamique et confrontation aux prédictions théoriques, contrôle des interactions, *etc.*).

La photo-association, en revanche, est une méthode adaptée à la mesure précise de la longueur de diffusion et des interactions de paires en général. Lorsqu'on l'applique aux atomes froids, la photo-association est un moyen de sonder très précisément les interactions binaires, à la fois dans l'état quasi-moléculaire (non lié) initial et dans l'état lié excité [29, 30, 31, 32]. Le paragraphe 4.3 présente le principe de ce type d'expériences. Signalons cependant dès maintenant, qu'au cours de cette thèse, un travail préliminaire a été effectué, qui n'a pas encore abouti à une mesure précise de la longueur de diffusion.

4.1 Collision élastique de deux atomes ^4He dans l'état 2^3S_1

4.1.1 Etats électroniques d'une paire $2^3S_1 + 2^3S_1$

L'approximation de Born-Oppenheimer consiste à traiter séparément les variables de position et d'impulsion des noyaux d'une part, et les variables électroniques d'autre part. Dans un premier temps, l'énergie propre de chaque état électronique est déterminée en supposant les noyaux fixes, à une distance inter-atomique R . Puis, le mouvement des noyaux est décrit comme dérivant de l'énergie potentielle d'interaction $V(R)$ associée à l'un des

états électroniques. L'état quantique d'une paire d'atomes est alors le produit d'un état ro-vibrationnel $|\phi\rangle$ (mouvement des noyaux), et d'un état électronique $|\chi\rangle$:

$$|\psi\rangle = |\phi\rangle \otimes |\chi\rangle$$

L'état électronique d'une paire d'atomes peut être écrit dans la base des états produits de deux atomes indépendants. En l'absence d'interaction, de tels états produits sont des états propres de l'hamiltonien du système. En revanche, si l'hamiltonien inclut une interaction, ces états produits sont couplés les uns aux autres, et les nouveaux états propres, que l'on appellera états moléculaires, sont alors des *combinaisons linéaires d'orbitales atomiques*. L'annexe C.1.1 présente la construction des 9 états électroniques $^5\Sigma_g^+$ (quintuplet), $^3\Sigma_u^+$ (triplet) et $^1\Sigma_g^+$ (singulet), qui résultent de la combinaison linéaire de deux orbitales atomiques 2^3S_1 . Les trois potentiels d'interaction correspondants ont été calculés par Müller *et al.* en 1991 [90], sur la base de données expérimentales de collisions entre jets croisés, et sont représentés sur la figure 4.1-a. En 1994, Stärck et Meyer [54] publient une expression analytique approchée du potentiel $^5\Sigma_g^+$ calculé *ab initio* et représenté par la figure 4.1-b. Récemment, un calcul plus précis de ce potentiel a été publié par Gadéa *et al.* [91] (2002), mais aucune expression analytique approchée n'en est donnée; c'est pour cette raison "pratique" que nous utiliserons le potentiel de la référence [54] pour illustrer notre propos dans les paragraphes suivants.

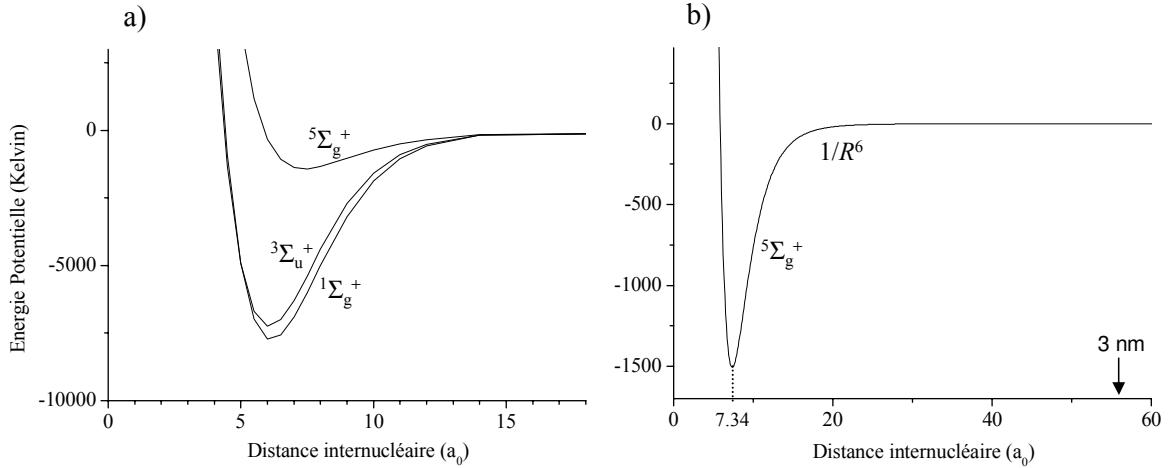


FIG. 4.1 – Potentiels d'interaction intervenant dans une collision entre deux atomes He^* . a) Potentiels tels que publiés par Müller *et al.*, dans le tableau 3 de la référence [90]. b) Potentiel $^5\Sigma_g^+$, d'après l'expression analytique approchée de Stärck et Meyer [54].

La partie répulsive de ces potentiels résulte de l'interaction d'échange qui domine lorsque les fonctions d'ondes électroniques des deux atomes se recouvrent. Les fonctions d'ondes atomiques ayant des dépendances radiales exponentielles, le terme résultant de leur recouvrement est lui aussi exponentiel. La taille du nuage électronique d'un atome d'hélium métastable est de l'ordre de $3a_0$ (c'est la taille moyenne de l'atome d'hydrogène dans l'état électronique ($n = 2, l = 0$)), donc on en déduit que $6a_0$ est l'ordre de grandeur de la portée de l'interaction responsable de la répulsion. On peut comprendre ainsi l'ordre de grandeur de la position du minimum des potentiels.

À grande distance la partie attractive du potentiel provient de l'interaction électrostatique entre les distributions de charges des deux atomes neutres. À l'ordre le plus bas en $1/R$, il s'agit de l'interaction dipôle-dipôle (en $1/R^3$), qui peut être considérée comme une perturbation des deux atomes indépendants. Comme les deux atomes sont dans l'état S , le premier ordre du traitement perturbatif de l'interaction dipôle-dipôle ne contient que des termes proportionnels à l'élément de matrice nul $\langle L=0 | \hat{D} | L=0 \rangle$, où $\hat{D}$ est l'opérateur dipôle électrique de l'atome d'hélium. Il faut donc traiter cette perturbation à l'ordre deux, pour voir apparaître les termes non diagonaux de $\hat{D}$, et la correction apportée à l'énergie des atomes indépendants est alors proportionnelle à $(1/R^3)^2$, si on néglige les effets de retard. Le potentiel d'interaction à longue distance est donc attractif, en $1/R^6$.

Dans le piège magnétique, le nuage d'atomes est polarisé. Le spin total d'une paire d'atomes de He^* entrant en collision est donc nécessairement $S = 2$. Le seul potentiel par lequel les atomes interagissent est alors $^5\Sigma_g^+$. Ce puits de potentiel, tel qu'il est donné par la référence [54], possède un minimum en $R = 7.34$ unités atomiques (l'unité atomique de longueur est le Bohr, $a_0 \sim 0.053$ nm), et contient 15 états liés, repérés par le nombre quantique de vibration $v = 0$ à 14. Cependant, les auteurs de [54] précisent que la profondeur de ce puits de potentiel est accompagnée d'une incertitude de l'ordre de 1%. Comme nous le montrons au paragraphe 4.1.3, il en résulte une incertitude sur le nombre d'états liés dans le potentiel, et la valeur calculée de la longueur de diffusion est, dans ces conditions, assez largement incertaine.

4.1.2 Collisions froides dans l'état électronique $^5\Sigma_g^+$

Ce paragraphe rappelle succinctement le traitement quantique de la collision élastique de deux atomes en interaction [30, 92, 93]. Le propos est appliqué au cas du potentiel (central) $^5\Sigma_g^+$ déterminé par Stärck et Meyer, et que l'on notera ci-dessous $V_0(R)$. La solution recherchée pour l'équation de Schrödinger est donc un état quasi-moléculaire stationnaire (continuum du potentiel électronique), produit de l'état électronique $^5\Sigma_g^+$ ($|\chi\rangle$) discuté au paragraphe 4.1.1, et d'un état de diffusion stationnaire ($|\phi\rangle$) décrivant la dynamique d'une particule "fictive" de masse $m/2$, associée au mouvement relatif des deux noyaux.

En représentation $|\vec{R}\rangle$, l'état de diffusion stationnaire $\phi(\vec{R})$ peut être décomposé en *ondes partielles* sur la base des harmoniques sphériques:

$$\phi(\vec{R}) = \sum_{l=0}^{\infty} \frac{u_{k,l}(R)}{R} Y_l^m(\theta, \varphi) \quad (4.1)$$

et les $u_{k,l}(R)$ sont alors solutions de l'équation de Schrödinger radiale:

$$\left(-\frac{\hbar^2}{m} \frac{d^2}{dR^2} + \frac{\hbar^2 l(l+1)}{mR^2} + V_0(R) - \frac{\hbar^2 k^2}{m} \right) u_{k,l}(R) = 0 \quad (4.2)$$

avec $\hbar^2 k^2/m$ l'énergie de la collision. (Rappelons que l'équation 4.2 décrit la dynamique d'une particule fictive de masse réduite $m/2$.) Le terme en $l(l+1)/R^2$ constitue la barrière centrifuge qui, ajoutée au terme $V_0(R)$, représente un *potentiel effectif* (voir la figure 4.2 b)). Loin de l'origine, chaque onde partielle $u_{k,l}(R)/R$ est la superposition d'une onde sphérique entrante

et d'une onde sphérique sortante. L'effet du potentiel effectif sur cette partie asymptotique est de déphaser l'onde sortante par rapport à l'onde entrante d'une quantité δ_l , de telle sorte que:

$$u_{k,l}(R \rightarrow \infty) \sim \sin(kR - l\pi/2 + \delta_l) . \quad (4.3)$$

Asymptotiquement, un état stationnaire de diffusion s'écrit également comme la somme d'une onde plane incidente, et d'une onde sphérique diffusée:

$$\phi(\vec{R}) \sim e^{ikz} + f(\theta, \varphi) \frac{e^{ikR}}{R} , \quad (4.4)$$

$f(\theta, \varphi)$ étant, par définition, l'amplitude de diffusion dans la direction (θ, φ) par rapport à l'onde incidente. La section efficace totale de collision $\sigma(k)$ s'en déduit alors:

$$\sigma(k) = \int |f(\theta, \varphi)|^2 \sin\theta \, d\theta \, d\varphi .$$

La confrontation des formules 4.1 et 4.3 d'une part, avec la formule 4.4 d'autre part, permet alors d'exprimer $f(\theta, \varphi)$ en fonction de ces seuls déphasages δ_l (voir, par exemple [93]). De plus, la fonction d'onde de deux bosons indiscernables doit être symétrisée, avec comme conséquence que seules les ondes partielles paires interviennent dans le calcul de la section efficace de collision. Ainsi on montre que:

$$\sigma(k) = \sum_{l \text{ pair}} \sigma_l(k), \quad \text{avec} \quad \sigma_l(k) = \frac{8\pi}{k^2} (2l+1) \sin^2(\delta_l) . \quad (4.5)$$

La figure 4.2-a présente le calcul numérique de la section efficace de collision, en prenant pour le potentiel $V_0(R)$, l'expression analytique approchée donnée par [54]. L'équation 4.2 a été résolue numériquement pour $l = 0$ à 8, de manière à déterminer les déphasages $\delta_l(k)$ pour chacune des ondes partielles $l = 0$ à 8. Les potentiels effectifs correspondants sont donnés par la figure 4.2-b. Chaque onde partielle l apporte sa contribution $\sigma_l(k)$ à la section efficace totale $\sigma(k)$ qui est ensuite calculée par la formule 4.5. Ce calcul montre que le nombre d'ondes partielles contribuant à la valeur de la section efficace de collision diminue avec l'énergie de la collision. En effet, pour une énergie de collision en dessous de $\simeq 20$ mK, seul le premier terme ($l = 0$) de la somme 4.5 contribue à la section efficace totale. On est alors dans le régime des collisions "en onde s", dites collisions froides. Enfin, $\sigma(k)$ devient indépendante de k pour des énergies inférieures à quelques dizaines de μ K. Dans ce régime, les collisions élastiques sont complètement déterminées par la donnée d'un seul paramètre, la *longueur de diffusion*.

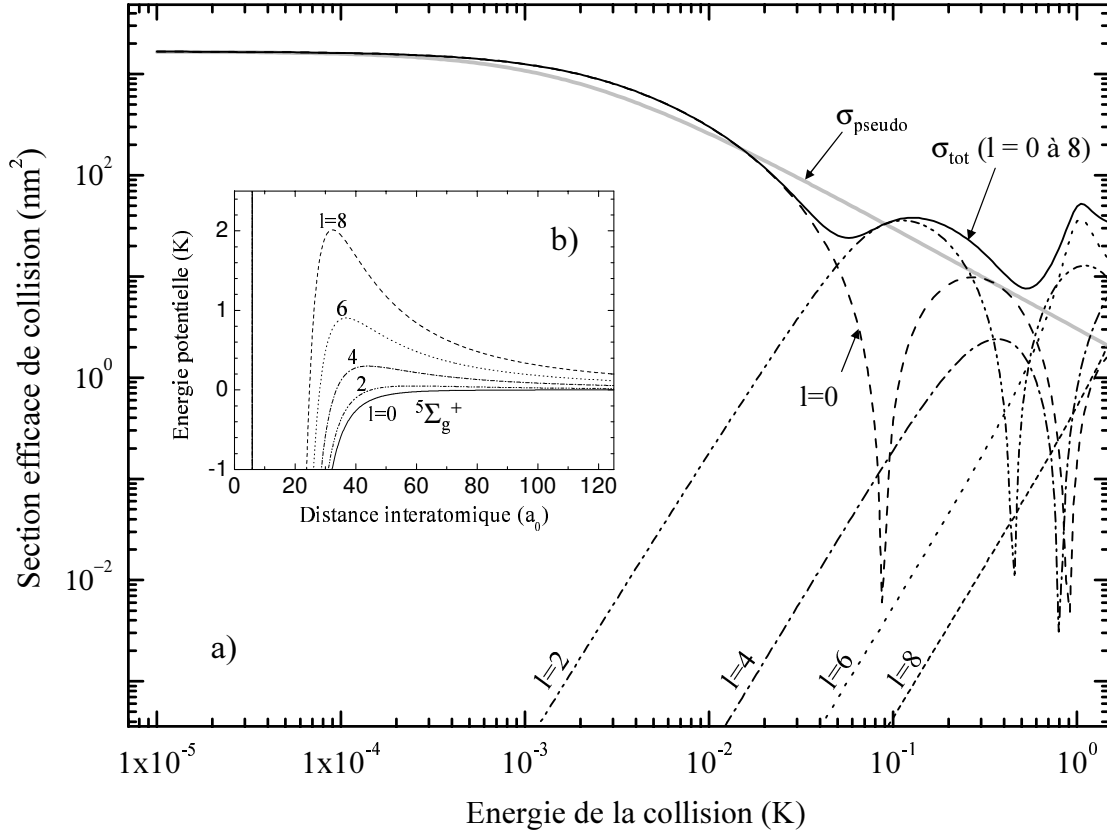


FIG. 4.2 – Illustration du calcul de la section efficace de collision élastique de $\text{He}^* + \text{He}^*$ par la formule 4.5. a) Les “sections efficaces partielles” $\sigma_l(k)$ sont calculées numériquement pour $l = 0$ à 8, à partir du potentiel $^5\Sigma_g^+$, tel qu’il est donné par [54]. Elles sont représentées en courbes pointillées, en fonction de l’énergie de collision $\hbar^2 k^2/m$, exprimée en Kelvin. Leur somme constitue la section efficace totale σ_{tot} tracée en trait noir continu. La courbe grise continue est l’expression approchée $\sigma_{\text{pseudo}}(k)$ de la section efficace dans la limite des basses énergies, donnée par la formule 4.8.

b) Le potentiel effectif $^5\Sigma_g^+$ et la barrière centrifuge sont représentés pour chaque valeur de $l = 0$ à 8.

4.1.3 Longueur de diffusion

Définition

Dans le régime des collisions froides, il est commode de définir la *longueur de diffusion* a de la façon suivante:

$$a = - \lim_{k \rightarrow 0} \frac{\tan \delta_0(k)}{k} \quad (4.6)$$

D’après la formule 4.5, la section efficace de collision tend alors vers une constante σ_0 , lorsque $k \rightarrow 0$:

$$\sigma_0 = 8\pi a^2$$

La donnée du potentiel $V_0(R)$ permet de calculer la valeur correspondante de a , en résolvant numériquement l'équation 4.2, pour $l = 0$ et $k = 0$. La figure 4.3 présente la fonction d'onde $s u_{k,l=0}(R)$ obtenue pour une énergie de collision de $50 \mu\text{K}$. Asymptotiquement, c'est une sinusoïde qui s'écrit, d'après (4.3) et (4.6):

$$u_{k \rightarrow 0, l=0}(R \rightarrow \infty) \simeq \sin(k(R - a)) \quad (4.7)$$

La longueur de diffusion apparaît donc comme la position limite, lorsque k tend vers 0, du premier zéro de la sinusoïde asymptote (point A sur la figure 4.3). Avec le potentiel $V_0(R)$ tel qu'il est donné dans [54], ce calcul conduit à $a \simeq 154 a_0 \simeq 8.15 \text{ nm}$.

Pseudo-potentiel

Dans la limite des basses températures ($k \rightarrow 0$), l'interaction de paire peut être décrite de manière approchée en assimilant les partenaires de la collision à deux sphères dures. Dans ce cas, le potentiel $V_0(R)$ peut être remplacé (dans l'équation 4.2, écrite pour $l = 0$) par un "pseudo-potentiel" $V_{pseudo}(R)$ [94]:

$$V_{pseudo}(R) = g \delta(\vec{R}) \frac{\partial}{\partial R} R.$$

La constante de couplage g est alors choisie de manière à reproduire la section efficace de collisions élastiques réelle, dans la limite $k \rightarrow 0$. On montre qu'il faut alors $g = 4\pi\hbar^2 a/m$, et que la section efficace de collision σ_{pseudo} qui en résulte est, pour k fini:

$$\sigma_{pseudo}(k) = \frac{\sigma_0}{1 + k^2 a^2} \quad (4.8)$$

Toujours à partir du potentiel $V_0(R)$ de [54], le calcul numérique présenté au paragraphe précédent montre que $\sigma_{pseudo}(k)$ (tracée en gris sur la figure 4.2) approche $\sigma(k)$ à mieux que 10 % dès que l'énergie de la collision est inférieure à $600 \mu\text{K}$, et à mieux que 1 % pour des énergies inférieures à $70 \mu\text{K}$.

Potentils "rapidement" décroissants

Signalons enfin que pour des potentiels décroissants "suffisamment" rapidement (c'est le cas des potentiels en $1/R^6$ tel que le $^5\Sigma_g^+$ qui nous intéresse), une expression approchée de la section efficace de collision élastique peut être obtenue à basse température en introduisant la notion de portée effective r_e (voir, par exemple [95] ou [81] et ses références). On obtient alors pour la section efficace de collision en onde s :

$$\sigma_{effective}(k) = \frac{\sigma_0}{(1 - \frac{1}{2}k^2 r_e a)^2 + k^2 a^2} \quad (4.9)$$

La formule 4.9 est, par rapport à la formule 4.8, l'expression approchée de la section efficace de collisions élastique, à l'ordre suivant en k , dans la limite des basses températures. D'après la figure 4.2 et la discussion précédente sur le pseudo-potentiel, on conclut que la correction apportée par l'introduction de la portée effective devient pertinente pour des températures typiquement supérieures à $\sim 70 \mu\text{K}$. En particulier, dans la gamme du μK , on s'attend à ce que l'approximation du pseudo-potentiel soit très bonne si la longueur de diffusion est effectivement voisine de 8 nm .

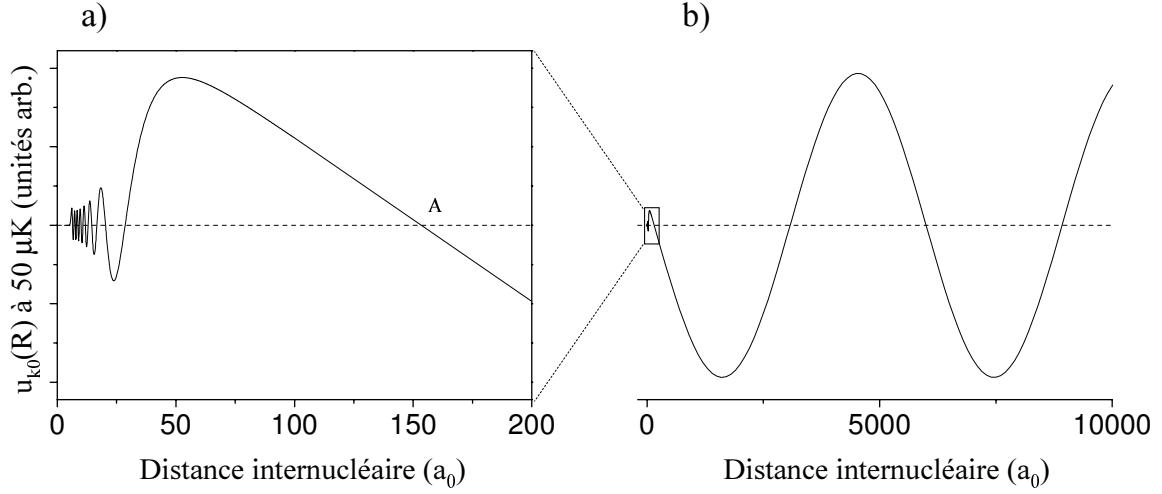


FIG. 4.3 – Illustration graphique du calcul de la longueur de diffusion:

a) Zoom au voisinage de l'origine de l'onde partielle s $u_{k,0}(R)$ pour une énergie de collision $(\hbar k)^2/m$ égale à $k_B \times 50 \mu\text{K}$ dans le potentiel de Stärck et Meyer.

b) Représentation de la même fonction d'onde sur une échelle plus large: $u_{k0}(R)$ devient une sinusoïde à grande distance. La longueur de diffusion a est la position du premier zéro (point A) de cette sinusoïde asymptote, lorsque $k \rightarrow 0$.

Précision du calcul

En réalité, la complexité des calculs permettant la détermination théorique du potentiel d'interaction *ab initio* nécessite des approximations. Stärck et Meyer [54] affirment que leur calcul donne la profondeur du puits de potentiel réel à 1% près. Cependant, une modification faible de la profondeur du puits de potentiel peut changer considérablement la longueur de diffusion, ainsi que l'illustre la figure 4.4. Cette figure présente le calcul numérique de la longueur de diffusion (selon la méthode décrite ci-dessus) en fonction de la profondeur du puits de potentiel. Celle-ci a été modifiée artificiellement en multipliant par un facteur proche de 1 les termes reproduisant la partie attractive du potentiel de Stärck et Meyer (*i.e.* les termes dits “dispersifs” en $1/R^n$ avec $n \geq 6$).

La très grande variation de a induite par un faible changement de la profondeur du puits est due à la position du dernier état lié dans le puits de potentiel (voir par exemple [95]). En effet le niveau $v = 14$ est très proche du seuil de dissociation. Lorsque l'on diminue la profondeur du puits, le quinzième niveau ($v = 14$) s'approche de l'asymptote, et $a \rightarrow +\infty$. Lorsque le puits n'est plus assez profond pour donner lieu à 15 états liés, le niveau vibrationnel $v=14$ disparaît, et a saute brutalement à une valeur infinie négative.

La figure 4.5 illustre la dépendance de la valeur calculée numériquement pour a , en fonction de l'énergie de liaison du dernier état lié, $v = 14$, dans le puits de potentiel $^5\Sigma_g^+$. Ce graphe montre en particulier, que si des méthodes de spectroscopie permettent de mesurer cette énergie de liaison, avec une précision de l'ordre du MHz ou mieux, la valeur de la longueur de diffusion pourra en être déduite avec une grande précision. Cette remarque est à

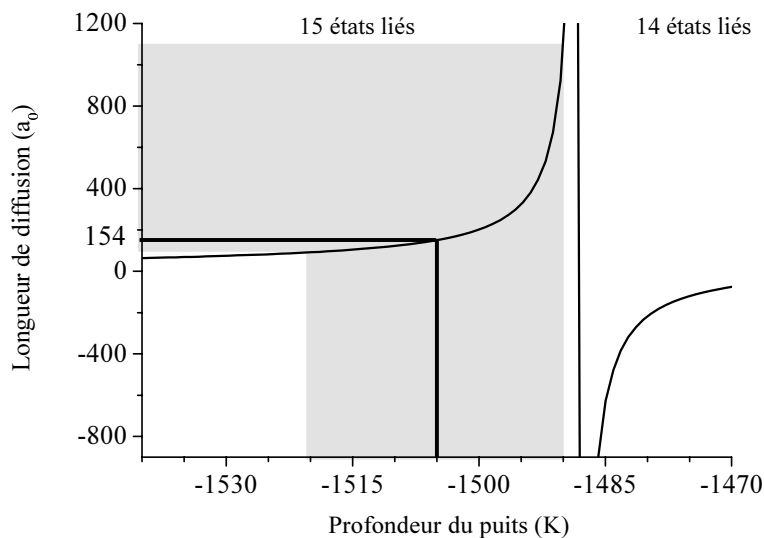


FIG. 4.4 – Variation de la longueur de diffusion a en fonction de la profondeur du puits. La zone grisée représente la barre d'erreur correspondant à la variation de 1% de la profondeur du puits de potentiel. La valeur $a \simeq 154a_0 \simeq 8.15 \text{ nm}$ est celle que l'on obtient avec le potentiel donné par Stürck et Meyer, sans modification.

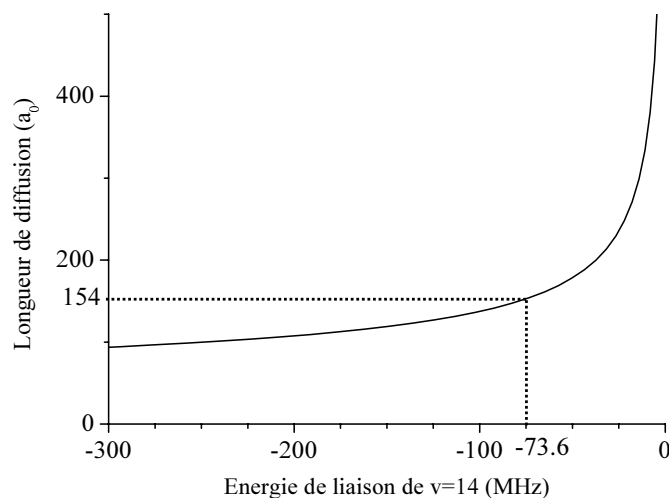


FIG. 4.5 – Variation de la longueur de diffusion a en fonction de la position de l'état vibrationnel de plus proche de l'asymptote, $v = 14$. Utilisant le potentiel de Stürck et Meyer sans modification, on calcule une longueur de diffusion de $154a_0$, et une énergie de liaison de $h \times 73.6 \text{ MHz}$ pour l'état $v=14$.

l'origine des expériences de photo-association démarrées au cours de cette thèse et décrites dans les chapitres suivants.

En définitive, la connaissance théorique du potentiel $^5\Sigma_g^+$ est encore nettement insuffisante pour en déduire une valeur fiable de a . La difficulté est que l'interaction d'échange, responsable de la répulsion à courte distance, se calcule en résolvant un problème à N corps (avec $N=4$

électrons dans le cas présent) dont la solution est nécessairement approchée. Il est impossible aujourd'hui de calculer *ab initio* l'énergie de liaison du niveau $v = 14$ avec une précision du MHz. Venturi *et al.* prédisent en 1999 [46], sur la base du potentiel de Stärck et Meyer, que la longueur de diffusion est comprise entre 5 nm et 25 nm. Plus récemment (2002), Gadéa *et al.* [91] ont proposé un nouveau calcul *ab initio* du potentiel. Ils en déduisent que la valeur de la longueur de diffusion est inférieure ou égale à 16 nm. Aujourd'hui, seule une détermination expérimentale peut conduire à une valeur précise de a .

4.2 Mesure de la longueur de diffusion à partir du condensat

Ce paragraphe présente une méthode expérimentale possible pour déterminer la longueur de diffusion de l'hélium métastable. Cette méthode repose sur le fait que le condensat de Bose-Einstein est obtenu dans un régime où sa taille est fixée par les interactions effectives (répulsives) entre atomes.

4.2.1 L'approximation de champ moyen

A température nulle, le condensat de Bose-Einstein est bien décrit par la résolution d'un problème à 1 corps soumis au champ moyen créé par les autres corps (voir par exemple [81]). Ainsi, la fonction d'onde $\Psi(\vec{r}_1, \dots, \vec{r}_N, t)$ des N bosons condensés est écrite comme un état produit de N fonctions d'ondes $\varphi(\vec{r}_1, t) \times \dots \times \varphi(\vec{r}_N, t)$, et les corrélations quantiques sont négligées. La fonction d'onde $\varphi(\vec{r}, t)$, qui décrit l'état de tous les atomes, est alors solution de l'équation de Schrödinger non linéaire, ou équation de Gross-Pitaevski:

$$i\hbar \frac{\partial \varphi}{\partial t} = -\frac{\hbar}{2m} \Delta \varphi + V_{ext}(\vec{r}, t) \varphi + Ng |\varphi(\vec{r}, t)|^2 \varphi, \quad (4.10)$$

avec $V_{ext}(\vec{r}, t)$ le potentiel extérieur de piégeage, et $g = 4\pi\hbar^2 a/m$ la constante de couplage de champ moyen.

Un état propre de cette équation, $\varphi(\vec{r}, t) = \varphi_0(\vec{r}) e^{-i\mu t/\hbar}$ est caractérisé par une énergie propre μ , commune à tous les atomes, qui est par conséquent *l'énergie par atome* au sein du nuage, c'est-à-dire *le potentiel chimique*. De plus, pour la plupart des condensats produits à partir de gaz dilués, dont le nôtre, le terme d'énergie cinétique est petit devant le terme de champ moyen, dans l'équation (4.10). En effet on peut vérifier que la quantité sans dimension Na/σ_{oh} est grande, avec $\sigma_{oh} = \sqrt{\hbar/(m\omega_0)}$ la taille de l'état fondamental de l'oscillateur harmonique que constitue le potentiel extérieur de piégeage. Typiquement, avec $N \sim 10^5$ atomes dans le condensat, $a \sim 10$ nm, et $\sigma_{oh} \sim 1\mu\text{m}$ (pour une fréquence de piégeage $\omega_0 \sim \pi \times 10^3 \text{Hz}$), on a $Na/\sigma_{oh} \sim 10^3$.

L'approximation de Thomas-Fermi consiste alors à négliger le terme d'énergie cinétique. Dans ce cas, la solution stationnaire de l'équation (4.10) est simple, et donne la densité du nuage condensé:

$$n(\vec{r}) = N |\varphi_0(\vec{r})|^2 = \frac{\mu - V_{ext}(\vec{r})}{g} = \frac{\mu}{g} \left(1 - \frac{x^2}{R_{\parallel}^2} - \frac{y^2}{R_{\perp}^2} - \frac{z^2}{R_{\perp}^2} \right). \quad (4.11)$$

Précisons que l'expression (4.11) est valable pour $x^2/R_{\parallel}^2 + y^2/R_{\perp}^2 + z^2/R_{\perp}^2 < 1$, et que la densité du condensat est nulle à l'extérieur de cet ellipsoïde. (Les axes x , y et z , sont ceux définis sur la figure 2.3). Le condensat a donc un profil de parabole inversée hérité de la forme du potentiel harmonique anisotrope de piégeage. Ses dimensions longitudinale $R_{\parallel}$ et transverse $R_{\perp}$ sont reliées, par définition, au potentiel chimique:

$$\mu = \frac{1}{2} m\omega_{\parallel}^2 R_{\parallel}^2 = \frac{1}{2} m\omega_{\perp}^2 R_{\perp}^2. \quad (4.12)$$

Le potentiel chimique est quant à lui donné par la relation qui fixe le nombre total N de particules condensées [81]:

$$N = \int n(\vec{r}) d\vec{r} = \int \frac{\mu - V_{ext}(\vec{r})}{g} d\vec{r} \quad (4.13)$$

Le calcul de l'intégrale de l'équation 4.13 donne la relation entre N , a et μ :

$$Na = \frac{\bar{\sigma}}{15} \left(\frac{2\mu}{\hbar\bar{\omega}} \right)^{5/2} \quad (4.14)$$

avec $\bar{\omega}$ la moyenne géométrique des fréquences de piégeage, et $\bar{\sigma}$ la taille du fondamental de l'oscillateur harmonique correspondant. Les relations (4.12) et (4.14) montrent que la mesure des deux rayons du condensat *in situ* $R_{\parallel}$ et $R_{\perp}$ constitue deux déterminations du potentiel chimique μ , et donc deux déterminations de la quantité Na . Lorsque a est une grandeur bien connue, ce qui est le cas pour les condensats d'alcalins, ces relations peuvent être utilisées pour calibrer le nombre d'atomes. Dans notre cas, au contraire, on détermine a après avoir indépendamment calibré le nombre d'atomes selon la méthode présentée au chapitre 3.

4.2.2 Mesure des rayons du condensat *in situ*

Le condensat est détecté après temps de vol. Par conséquent il faut connaître les lois d'expansion du nuage pour remonter à sa taille dans le piège. Lorsque le piégeage magnétique est coupé, le champ moyen exerce une force proportionnelle à $-\nabla n(\vec{r})$ qui accélère les particules jusqu'à ce que toute l'énergie de champ moyen se soit convertie en énergie cinétique (dans le régime de Thomas Fermi, l'énergie cinétique initiale est négligeable). Comme le piège est anisotrope, le nuage l'est aussi (cf. paragraphe précédent), et en particulier, $-\nabla n(\vec{r})$ est plus grand dans la direction radiale, où n varie sur une distance typique $R_{\perp}$, que dans la direction longitudinale, où n varie sur une distance typique $R_{\parallel} > R_{\perp}$. Le condensat subit donc une expansion anisotrope gouvernée par le champ moyen. La résolution analytique de l'expansion du condensat a été donnée par Castin et Dum [96] en 1996:

$$R_{\perp}(t) = R_{\perp}(0)\sqrt{1+\tau^2} \quad R_{\parallel}(t) = R_{\parallel}(0) \left\{ 1 + \epsilon^2 \left(\tau \text{Arctan}(\tau) - \ln(\sqrt{1+\tau^2}) \right) \right\} \quad (4.15)$$

où t est le temps de vol à partir de l'instant $t = 0$ auquel le piégeage est coupé, $\tau = \omega_{\perp}t$, et $\epsilon = \omega_{\parallel}/\omega_{\perp}$ est l'ellipticité du condensat à $t = 0$ (c'est-à-dire *in situ*). Il est remarquable que, dans le régime de Thomas-Fermi, l'expansion du condensat, bien que gouvernée par les interactions de champ moyen, soit indépendante de a , et ne dépende que de la géométrie du potentiel de piégeage.

Connaissant le temps de vol t auquel le condensat est détecté, et connaissant les fréquences de piégeage (voir le chapitre 2), la mesure de la taille du condensat après temps de vol permet de déduire la taille du condensat à $t = 0$.

4.2.3 Détermination de a

Trois séries d'expériences ont été menées dans trois configurations de piégeage différentes, dont les fréquences de piégeage ont été mesurées selon la méthode décrite au paragraphe 2.3.3. Chaque série a consisté en la réalisation, en boucle, de 250 images de nuages évaporés jusqu'à des températures finales balayant l'intervalle $[T_C/3; 2T_C]$, dans chacune des configurations de piégeage. Les trois séries ont été analysées, puis les températures critiques déterminées, et enfin les nombres d'atomes à la transition calibrés, selon les méthodes exposées au paragraphe 3.2. Pour chacune des séries A, B et C, la mesure des rayons des condensats les plus purs a permis de réaliser une détermination de Na à l'aide des formules 4.12 et 4.14. Le nombre d'atomes dans le condensat étant déduit de la calibration réalisée à T_C (voir le paragraphe 3.2.3), on peut en déduire une estimation de a . Les résultats sont rassemblés dans le tableau 4.1. Les trois configurations de piégeage différentes conduisent à la production de nuages de densités différentes. Plus le piège est raide (*i.e.* plus $\bar{\omega}$ est grand), plus le nuage est dense à la transition, et la température critique élevée. Chacune des trois situations conduit à un résultat différent pour la longueur de diffusion, et la discussion qui suit tente d'estimer les barres d'erreur qui accompagnent ces résultats.

TAB. 4.1 – *Présentation des trois séries d'expériences A, B, et C, menant à trois déterminations expérimentales de a , dans trois configurations de piégeage magnétique différentes.*

	série A	série B	série C
fréquences de piégeage: $\omega_{\parallel}/2\pi$	91 Hz	91 Hz	64.5 Hz
$\omega_{\perp}/2\pi$	1925 Hz	807 Hz	395 Hz
moyenne algébrique $\bar{\omega}/2\pi$	696 Hz	390 Hz	216 Hz
Température critique	4.8 μK	3.1 μK	1.5 μK
Densité critique / 10^{13} (at/cm ³)	4.1	2.1	0.7
Nombre d'atomes critique / 10^6	3.6	5.5	3.6
Nb. max. d'atomes dans le condensat / 10^5	2.5	4.2	3.5
Longueur de diffusion (nm)	10	17	20

Dans les trois cas, la dispersion statistique sur la longueur de diffusion est caractérisée par un écart-type moyen de typiquement 20 %. Elle vient pour l'essentiel du rapport signal/bruit qui caractérise notre détection, ainsi que des fluctuations d'origine expérimentale.

Un certain nombre d'erreurs systématiques sont à envisager également. Tout d'abord, les formules 4.12 et 4.14 montrent que le produit Na est proportionnel à R^5 . Une erreur sur R conduit donc à une erreur environ 5 fois plus grande sur Na . La détermination du grandissement est donc une opération critique. Elle est décrite dans l'annexe A. Nous pensons que le grandissement est connu à moins de 5 % près. La résolution de notre système d'imagerie,

de l'ordre de 30 microns introduit en revanche une erreur systématique sur a . En effet, l'image du condensat sur le CCD est convoluée par une fonction de $30\ \mu\text{m}$ de large, ce qui conduit à une surestimation de la taille réelle du condensat. Ainsi, l'estimation de a présentée dans le tableau 4.1 est faite à partir de la plus grande des deux tailles du nuage pour laquelle l'erreur qui en résulte, de l'ordre de 5 à 6 % est moins importante que pour l'autre dimension, typiquement deux fois plus faible. La seule incertitude sur la mesure de la taille du condensat, peut donc conduire à une erreur sur a voisine de 50%. De plus l'incertitude sur la calibration du nombre d'atomes, discutée au chapitre précédent, intervient également dans l'incertitude sur a . En particulier, les effets d'interactions (voir la formule 3.6 du chapitre 3) sont susceptibles de conduire à une sous-estimation du nombre réel d'atomes à hauteur de typiquement 40%. Dans ce cas, a serait sur-estimée d'autant.

La discussion précédente montre à quel point la détermination expérimentale de a par cette méthode est imprécise. Très certainement, l'erreur la plus importante, dans notre expérience, réside dans les incertitudes de la calibration du nombre d'atomes et de la résolution du système d'imagerie. De plus la plupart des erreurs recensées œuvrent dans le sens d'une sur-estimation plausible de a . Le résultat de cette étude reste néanmoins $a \simeq 15\ \text{nm}$, à au moins 50 % près.

4.2.4 Conclusion

Depuis l'obtention de la condensation de Bose-Einstein de l'hélium métastable, la nécessité de connaître la longueur de diffusion a est constante. Que ce soit pour étudier les taux de collisions élastiques, les modes d'excitations collectives, les taux de collisions inélastiques, les taux de chauffage, ou encore l'influence des interactions sur la température critique, une connaissance précise de a est requise. La calibration du nombre d'atomes elle-même souffre de l'incertitude sur a .

Les mesures de a basées sur une mesure de la taille du condensat ont montré leur imprécision, que la détection soit électronique (à Orsay) ou optique (dans notre expérience). Une valeur "consensuelle" de $a \simeq 15\ \text{nm}$, entachée d'une erreur de 50%, a été établie à plusieurs reprises (au cours de cette thèse, ainsi que dans l'équipe d'Orsay). Cette valeur est en accord avec les estimations théoriques.

D'autres méthodes de détermination de a sont envisageables. L'une d'elle repose sur l'étude des modes propres d'excitation collective du gaz thermique et la confrontation entre la prédiction théorique [89] et la mesure expérimentale (voir l'annexe B). Cette mesure peut difficilement être très précise, puisqu'elle repose sur la mesure de la densité du gaz, et donc sur la calibration du nombre d'atomes. L'étude menée au cours de cette thèse semble suggérer que la longueur de diffusion est probablement plus faible que 15 nm. Cependant, la démarche inverse, consistant à vérifier ces prédictions théoriques, à partir de la connaissance de a , serait une démarche plus naturelle. Une autre détermination possible de a réside en la confrontation des taux de pertes inélastiques mesurés dans le gaz thermique, et dans le condensat. Cette étude a été menée à Orsay. Elle conduit à la détermination suivante de la longueur de diffusion: $a = 11 \pm 3\ \text{nm}$ [53]. Ce résultat repose sur la prédiction théorique selon laquelle la statistique quantique est responsable d'une diminution d'un facteur 2! du taux de pertes à deux corps, et d'un facteur 3! du taux de pertes à 3 corps dans un condensat, par rapport à ce qu'ils sont

dans un gaz thermique [47]. Là aussi, bien qu'une première preuve expérimentale ait déjà été proposée [48], la connaissance indépendante de a , permettrait une seconde vérification de cette prédiction.

Pour toutes ces raisons il est important d'avoir une mesure précise de a . D'autres méthodes expérimentales que celles exposées ci-dessus y donnent accès, de manière plus précise. La précision des techniques exposées ci-après réside en ce qu'elles reposent sur une mesure de fréquence, plutôt que sur un nombre d'atomes mal calibré. La longueur de diffusion caractérise les interactions de paires, qui peuvent être sondées par des expériences de spectroscopie par photo-association. De telles expériences ont prouvé leur aptitude à sonder très précisément ces interactions, et à produire des mesures précises de a dans le cas des alcalins [29, 30, 31, 32]. Ainsi que le montre la figure 4.5, du paragraphe 4.1.3, il est possible, par exemple, de déterminer a en mesurant l'énergie de liaison de l'état vibrationnel le plus excité dans le potentiel $^5\Sigma_g^+$. Cette mesure peut être obtenue de manière très précise par des expériences de photo-association (voir paragraphe 4.3), et c'est une des motivations premières du travail commencé au cours de cette thèse et présenté dans la suite de ce mémoire. D'autres méthodes permettent aussi d'accéder à une détermination possible de a , en mesurant l'intensité relative des raies de photo-association à un photon; nous y reviendrons ultérieurement. Le paragraphe suivant est une introduction à la photo-association, et aux résultats qu'on peut en espérer.

4.3 La photo-association d'atomes froids

4.3.1 Schéma de principe

La figure 4.6 illustre le principe de la photo-association. Un photon est absorbé par une paire d'atomes libres, entrant en collision. Un état lié est alors formé dans un potentiel moléculaire excité. A température ambiante, l'agitation thermique confère à l'état initial (continuum) une largeur de typiquement quelques 10^3 GHz conduisant à l'observation de spectres de bandes "diffuses" de largeur plusieurs dizaines de nm (voir par exemple [97]). Depuis la possibilité de produire, dans des pièges magnéto-optiques, des nuages gazeux dans la gamme du mK à quelques dizaines de μ K, l'étroitesse de la distribution en énergie de l'état initial a révolutionné les expériences de photo-association. Désormais, aux températures extrêmement basses auxquelles on peut accéder par refroidissement évaporatif (1 à 10 μ Kelvin typiquement dans notre expérience), l'énergie de l'état initial est définie avec une précision de l'ordre de 100 kHz ou moins, c'est-à-dire inférieure à la largeur naturelle typique d'un état atomique excité dans une expérience de refroidissement par laser. Les transitions observées ressemblent ainsi à des transitions entre deux états liés, et on observe des spectres de raies. La photo-association d'atomes froids a été proposée pour la première fois par Thorsheim *et al.* en 1987 [98], et les premières expériences de haute résolution ont été réalisées dans des nuages froids de Na et Rb en 1993 [99, 100].

A très grande distance, l'état moléculaire excité correspond à un atome resté dans l'état initial (S en général) en interaction avec un autre ayant absorbé un photon (état P). Le potentiel d'interaction a alors un comportement asymptotique en $1/R^3$ (voir le chapitre 6) de portée bien plus étendue que le potentiel initial en $1/R^6$. Ainsi, lors d'une collision entre deux atomes, si un photon est absorbé à grande distance, la paire subit une accélération

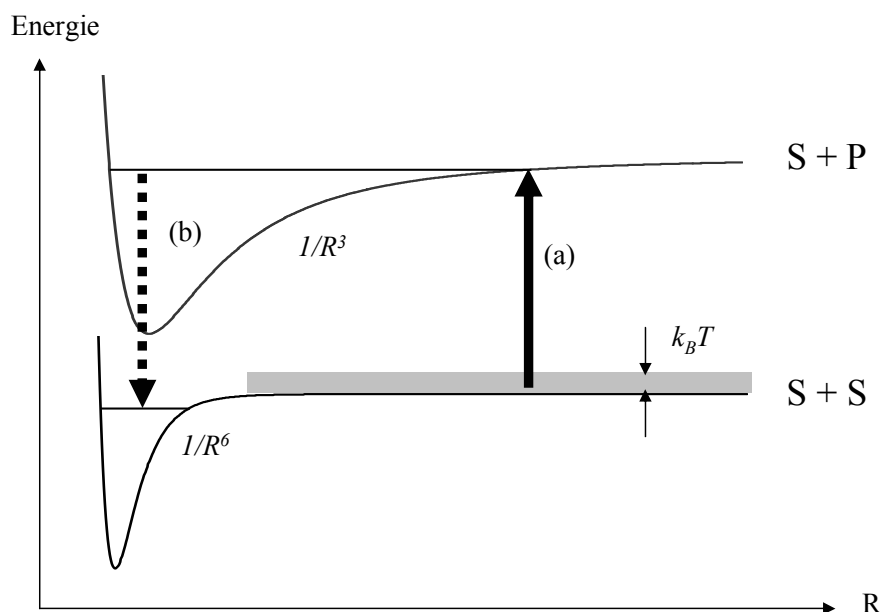


FIG. 4.6 – Schéma de principe d’une expérience de photo-association. Un photon (a) est absorbé lors d’une transition entre un état “quasi-moléculaire” (non lié), et un état moléculaire excité. Un second photon (b) peut éventuellement être émis de manière spontanée ou stimulée pour conduire à un état lié dans le potentiel initial.

bien plus importante que si elle était restée dans l’état $S + S$. Le plus souvent, la paire se désexcite en émettant un second photon conduisant alors à une paire d’atomes libres d’énergie cinétique plus élevée [98]. Ce processus est responsable de pertes observées dans un MOT et initialement décrites par Gallagher *et al.* [101]. Ces pertes sont accentuées lorsque le laser de photo-association est résonant avec une transition de l’état initial de diffusion vers un état moléculaire excité. La visualisation de ces pertes en fonction de la fréquence du laser de photo-association permet alors d’observer des spectres de raies.

La désexcitation de la molécule formée peut aussi conduire vers un état lié dans le potentiel initial. Des molécules froides de Cs_2 ont ainsi été observées pour la première fois en 1998 [102]. Enfin, dans le cas de l’hélium métastable, il existe un mécanisme de désexcitation non radiative et particulièrement efficace, qui est l’ionisation Penning. L’excitation résonante d’états moléculaires produit des ions qui ont été utilisés comme diagnostic pour observer en 2000 les premières raies de photo-association dans un MOT d’hélium métastable [103], sur lesquelles nous reviendrons au paragraphe 5.1.2.

4.3.2 Le principe de Franck-Condon

Dans ce paragraphe, nous nous intéressons à la probabilité de réaliser de telles transitions électroniques entre un état “quasi-moléculaire” libre, et un état moléculaire (lié).

Densité de probabilité de transition

La densité de probabilité de transition entre l'état libre initial $|i\rangle$ et l'état lié final $|f\rangle$ est proportionnelle au carré de l'élément de matrice dipôle électrique entre les états initial et final, par exemple:

$$|\int \psi_f^* D_z \psi_i d\tau|^2,$$

où $d\tau$ est l'élément de volume élémentaire, et $D_z = \sum_i e_i z_i$ est la somme des positions, selon un axe z fixé, de toutes les particules (électrons et noyaux) pondérées par leur charge. D_z peut se décomposer en $D_z^n + D_z^e$, la somme des contributions respectives des noyaux et des électrons. Ainsi qu'on l'a fait au paragraphe 4.1.1, on peut, en première approximation, traiter séparément les parties électronique $\chi_{i,f}$ et ro-vibrationnelle $\phi_{i,f}$ des fonctions d'ondes $\psi_{i,f}$. On obtient donc [104]:

$$\int \psi_f^* D_z \psi_i d\tau = \int D_z^n \phi_f^* \phi_i \int \chi_f^* \chi_i d\tau_e d\tau_n + \int \phi_f^* \phi_i \int D_z^e \chi_f^* \chi_i d\tau_e d\tau_n, \quad (4.16)$$

avec $d\tau_e$ et $d\tau_n$ les volumes élémentaires dans l'espace des coordonnées des électrons et des noyaux respectivement. Or les états propres électroniques $|\chi_i\rangle$ et $|\chi_f\rangle$ sont distincts donc orthogonaux. Dans l'équation 4.16, le premier terme du membre de droite est nul. De plus, on peut encore distinguer dans les fonctions ϕ la partie radiale de la partie angulaire:

$$\phi(\vec{R}) = \frac{u(R)}{R} \cdot Y(\theta, \varphi).$$

Ici, R est la distance inter-atomique, et $Y(\theta, \varphi)$ est une fonction propre de l'opérateur moment cinétique *total*, (*i.e.* mouvement des noyaux plus électrons). En écrivant $D_z^e = D^e \cos \theta$, il vient:

$$\int \psi_f^* D_z \psi_i d\tau = \int u_f(R) u_i(R) \int D^e \chi_f^* \chi_i d\tau_e dR \cdot \int \cos \theta Y_f^* Y_i \sin \theta d\theta d\varphi.$$

En réalité, le mouvement des noyaux influence la dynamique électronique, et les fonctions χ_f et χ_i dépendent *a priori* aussi de R, θ, φ . Cependant, le moment cinétique angulaire associé à la rotation de la molécule peut être inclus dans l'hamiltonien électronique, seule la variable R étant toujours considérée comme un paramètre fixe. On détermine alors des potentiels électroniques *adiabatiques*, et les états propres électroniques χ_f et χ_i ne dépendent explicitement que de R (voir le paragraphe 6).

L'intégrale portant sur les variables angulaires peut être calculée indépendamment. Elle conduit aux règles de sélection habituelles qui sont, pour une transition dipolaire électrique, $\Delta J = 0$ dans la cas présent d'une transition *parallèle* (composante D_z de l'opérateur dipôle électrique), ou $\Delta J = \pm 1$ pour une transition *perpendiculaire* (éléments de matrice des opérateurs D_x, D_y).

L'intégrale sur les variables électroniques conduit à d'autres règles de sélection portant sur les seuls états électroniques. Ainsi, une transition dipolaire électrique n'est possible qu'entre deux états de même spin total: $\Delta S = 0$ (c'est la même règle qu'au sein des atomes). On

peut montrer que de cette intégrale découle aussi la règle de transition *ungerade* $\leftrightarrow$ *gerade*, qui porte sur la propriété des états électroniques vis à vis de la symétrie d'inversion. Cette opération de symétrie est la symétrie centrale des coordonnées spatiales des électrons, par rapport au centre de la molécule (voir le chapitre 6).

L'intégrale portant sur R doit être calculée en dernier. En effet, le terme:

$$\langle D^e \rangle = \int D^e \chi_f^* \chi_i d\tau_e = \langle D^e \rangle(R)$$

dépend de R . Cependant cette dépendance est plus “lente” que celle des fonctions $u_f(R)$ et $u_i(R)$, et on peut faire l'approximation qui consiste à écrire:

$$\int u_f(R) u_i(R) \int D^e \chi_f^* \chi_i d\tau_e dR \sim \langle D^e \rangle(R_C) \int u_f(R) u_i(R) dR, \quad (4.17)$$

où R_C est le rayon de Condon, c'est-à-dire la distance inter-nucléaire la plus probable à laquelle se fait la transition électronique. Cette approximation est valable si le produit $u_f(R) u_i(R)$ ne prend des valeurs non nulles que dans une région étroite autour de R_C et dans laquelle $D^e(R)$ varie peu. La densité de probabilité de transition est donc proportionnelle au carré de l'intégrale de recouvrement des fonctions d'ondes vibrationnelles:

$$| \int u_f(R) u_i(R) dR |^2 ,$$

appelé *facteur de Franck-Condon*.

Illustration graphique

La figure 4.7 présente des fonctions d'ondes typiques pour l'état vibrationnel excité $u_f(R)$ et pour l'état de diffusion initial $u_i(R)$, dans une expérience de photo-association. Les potentiels utilisés ainsi que les fonctions d'ondes représentées n'ont qu'une valeur d'illustration, et pas de réalité physique quantitative. Cette figure permet d'illustrer le fait que le produit $u_f(R) u_i(R)$ prend des valeurs significatives au voisinage de R_C , ce qui justifie l'approximation faite dans l'équation 4.17.

Ainsi, pour que la transition soit possible entre deux états électroniques, il faut que les fonctions d'ondes vibrationnelles correspondantes aient un recouvrement non nul. Ce résultat “mathématique” a une interprétation imagée donnée par le principe de Franck-Condon selon lequel les noyaux n'ont pas le temps de se déplacer pendant le temps que dure la transition électronique [104]. Une transition électronique est donc nécessairement représentée par une flèche *verticale* sur les figures 4.6 et 4.7.

Le rayon de Condon est voisin du point de rebroussement externe classique de l'état lié excité. C'est au voisinage de ce point que l'amplitude de la fonction d'onde vibrationnelle est la plus importante, ce qui correspond à l'image classique du point ou la particule “fictive” de mouvement relatif s'arrête avant de faire demi-tour (voir par exemple le point R_{C1} sur la figure 4.7).

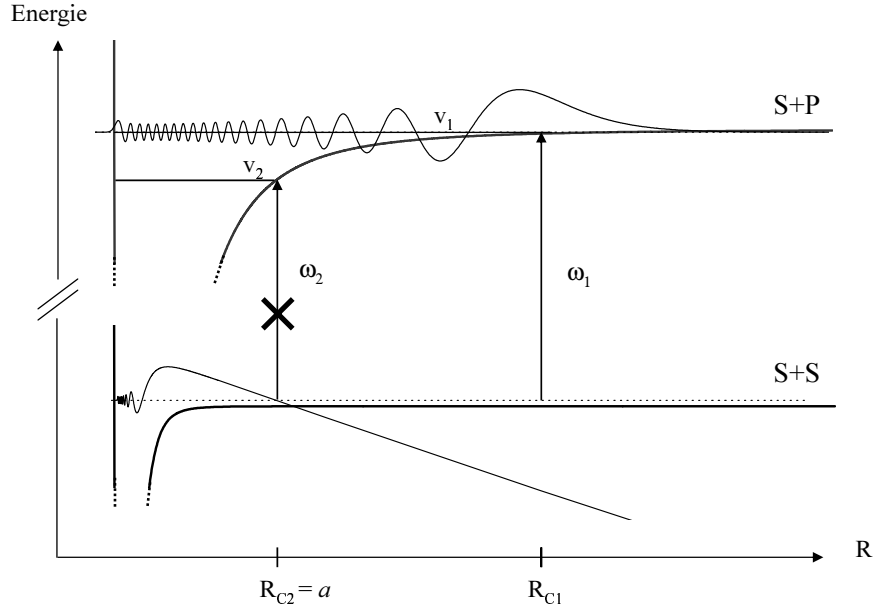


FIG. 4.7 – Illustration du principe de Franck-Condon. Cette figure présente les potentiels électroniques et la partie radiale des fonctions d'ondes dans l'état initial (état stationnaire de diffusion dans l'onde s) et dans un état final excité (état vibrationnel). La probabilité de transition vers l'état v_1 est beaucoup plus élevée que vers l'état v_2 puisque le point de rebroussement externe classique de ce dernier coïncide avec un zéro de la fonction d'onde initiale.

Dans une expérience d'atomes froids, où les densités sont typiquement de l'ordre de 10^{13} at/cm³, la distance moyenne entre deux atomes est de l'ordre de 500 nm (soit environ $10^4 a_0$). Or la discussion précédente a montré que le principe de Franck-Condon favorise des transitions entre états électroniques initial et final ayant des extensions spatiales semblables. C'est pourquoi, lors d'une expérience de photo-association, ce principe favorise des transitions vers les états finals les plus étendus possibles, c'est-à-dire les plus proches de la limite de dissociation. Les états vibrationnels accessibles par photo-association explorent donc leur potentiel d'interaction jusqu'à des distances bien plus grandes que la distance habituelle d'une liaison chimique. La grande avancée apportée par l'utilisation d'atomes froids pour réaliser des expériences de photo-association réside en la possibilité de sonder très précisément des états moléculaires très peu liés et extrêmement étendus. De plus, l'état initial étant un état de diffusion en onde s , les spectres rotationnels observés sont réduits à l'extrême (voir les règles de sélection sur J rappelées ci-dessus). La très haute résolution des mesures spectroscopiques réalisées par la photo-association d'atomes froids autorise une connaissance et une compréhension très fine des interactions moléculaires.

4.3.3 Mesure de la longueur de diffusion

Pour qu'une transition vers un état électronique excité soit possible, le principe de Franck-Condon impose également que l'amplitude de la fonction d'onde de l'état *initial* soit non

nulle au voisinage du point de Condon (voir l'exemple du photon ω_2 sur la figure 4.7). Ainsi, l'intensité des raies de transitions vers les potentiels électroniques excités est modulée par les variations de la fonction d'onde dans l'état initial de diffusion. Or la position des zéros de cette dernière représente une mesure directe du déphasage $\delta_0(k)$ de l'onde s diffusée donc de la longueur de diffusion dans l'état initial (voir le paragraphe 4.1.1). L'analyse de l'intensité et de la forme des raies de photo-association a permis la mesure précise des longueurs de diffusion des espèces Li, Na, Rb, K et Cs (voir par exemple l'article de revue [30] et ses références, ainsi que [105, 106]).

La longueur de diffusion est aussi accessible par une seconde méthode qui tire profit de la remarque suivante : au cours d'une expérience de photo-association, après absorption d'un photon, la paire excitée peut se désexciter radiativement en une paire liée dans l'état fondamental (photon (b) sur la figure 4.6). Cette transition est possible sous réserve que le recouvrement entre les deux états vibrationnels considérés soit non nul. Le facteur de Franck-Condon correspondant n'est pas toujours très favorable, puisque l'extension spatiale de l'état lié dans le potentiel fondamental en $1/R^6$ est réduite. Cependant, la désexcitation vers un niveau lié peut être stimulée par l'utilisation d'un second laser désaccordé vers le bleu par rapport au laser de photo-association. Une transition Raman stimulée à deux photons permet alors de transférer une partie de la population d'atomes de l'état de diffusion vers un état lié dans le potentiel fondamental. Cette technique de production de molécules dans l'état électronique fondamental a été appliquée avec succès dans plusieurs équipes [107, 108, 109]. Dans le groupe de Heinzen [108], par exemple, une spectroscopie extrêmement fine de molécules produites à partir d'un condensat de ^{87}Rb a permis de mettre en évidence l'influence de l'environnement des molécules sur leur énergie de liaison. Des effets très fins (dans la gamme du kHz), interprétés dans le cadre d'une théorie de champ moyen, ont démontré l'existence d'interactions atomes-molécules et/ou molécules-molécules. Cette technique permet de mesurer très précisément l'énergie de liaison du dernier état lié du potentiel fondamental, et donc, en particulier d'en déduire la longueur de diffusion (voir paragraphe 4.1.3).

Le groupe de R. Hulet [109] a utilisé un dispositif expérimental constitué de deux lasers, pour mesurer la longueur de diffusion du lithium, dans une approche cependant sensiblement différente. Dans leur expérience, le laser de photo-association (premier photon) est résonant avec la transition entre l'état de diffusion et l'état lié excité, causant des pertes dans le nuage d'atomes. Le second laser est balayé au voisinage de la transition entre les états liés excité et fondamental. Lorsque celui-ci est résonant, une *diminution* des pertes est observée. Si le second laser est suffisamment intense, il habille l'état moléculaire excité et le sépare en deux niveaux décalés. Le premier laser sort donc de résonance. Il s'agit de photo-association *frustrée* par l'effet Autler-Townes.

Par ce type de mesures, la longueur de diffusion de He^* peut *a priori* être mesurée avec une grande précision, sous réserve que le recouvrement entre l'état $v = 14$ du potentiel $^5\Sigma_g^+$ et les niveaux vibrationnels excités accessibles soit bon. Indépendamment de la longueur de diffusion, la réalisation de cette transition à deux photons permettrait d'observer pour la première fois un état lié dans le potentiel électronique $^5\Sigma_g^+$. Est-ce un dimère *métastable*, de 40 eV d'énergie interne? Compte tenu du processus d'auto-ionisation de type Penning, auquel on peut s'attendre *a priori* pour cette molécule, quelle est sa durée de vie?

On comprend également que l'étude préliminaire à cette transition à deux photons consiste

à sonder les niveaux ro-vibrationnels dans les états électroniques excités. C'est pourquoi nous avons réalisé une série d'expériences de photo-association à un photon, dans le but de faire la spectroscopie des états excités $2^3S + 2^3P$.

Chapitre 5

Expériences de photo-association à un photon

Ce chapitre décrit les expériences de photo-association (PA) à un photon qui ont été réalisées pour sonder les états liés dans les potentiels électroniques excités, connectés aux asymptotes $2^3S_1 + 2^3P_J$. Deux séries d'expériences ont été menées qui diffèrent par les potentiels électroniques sondés et par les méthodes expérimentales et la précision des spectres mesurés.

La première série a consisté à sonder les potentiels moléculaires avec un laser de photo-association désaccordé dans le rouge de la transition atomique D_2 ($2^3S_1 \leftrightarrow 2^3P_2$), dont la fréquence était mesurée à environ 15 MHz près. Certaines des raies obtenues ont pu être identifiées sur la base de potentiels électroniques adiabatiques, calculés selon la démarche exposée au chapitre 6, en utilisant la méthode dite de la “phase accumulée” (voir le chapitre 8).

La seconde série d'expériences de photo-association a été menée à l'aide d'un laser asservi à quelques centaines de kHz près et désaccordé dans le rouge de la transition atomique D_0 ($2^3S_1 \leftrightarrow 2^3P_0$). Le spectre obtenu a nécessité une description théorique fine et a pu être très précisément interprété. En particulier, il a conduit à la mise en évidence d'un type de molécules tout à fait particulières que nous avons appelées des “dimères géants”. Ces molécules nous ont conduits à des développements expérimentaux et théoriques décrits en détail au chapitre 7, et non envisagés initialement.

5.1 Introduction à la photo-association de He^*

5.1.1 Les différents types de potentiels accessibles

La figure 5.1 présente la partie “longue distance” de l'ensemble des potentiels électroniques résultant de l'interaction d'un atome 2^3S_1 et d'un atome 2^3P . Ces courbes ont été calculées au cours de cette thèse selon la méthode décrite en détail au chapitre suivant.

On distingue 3 types de potentiels. Tout d'abord un certain nombre d'entre eux sont répulsifs, et ne contiennent pas d'états liés. Ils peuvent être responsables d'un phénomène

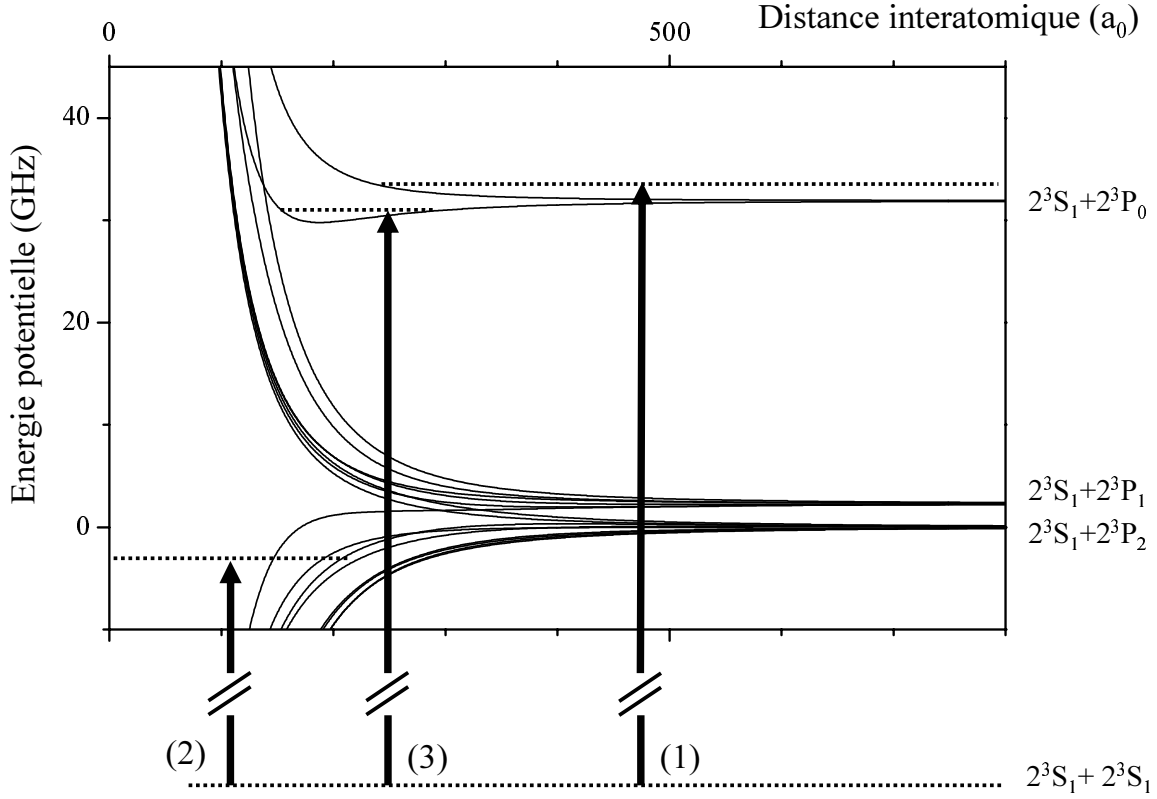


FIG. 5.1 – Courbes d'énergie potentielle par lesquelles une paire d'atomes interagit après avoir absorbé un photon. Trois types de potentiels peuvent être distingués: les potentiels répulsifs (le photon 1 conduit à l'un d'entre eux), les potentiels attractifs dont la partie répulsive est à courte distance (photon 2), et enfin les puits de potentiels à purement longue portée (photon 3). Ces courbes de potentiel ont été calculées, dans le cadre de cette thèse, selon la démarche présentée au chapitre 6. Les asymptotes représentent la structure fine atomique.

d'inhibition des collisions inélastiques déjà mis en évidence par Walhout *et al.* [110], lorsque le nuage atomique est illuminé par un laser désaccordé vers le bleu de la transition atomique. En effet, une paire d'atomes entrant en collision qui absorbe un tel photon (voir, par exemple, le photon (1) sur la figure 5.1) est soudain soumise à un potentiel répulsif qui empêche alors les deux partenaires de s'approcher davantage. Ainsi, les collisions inélastiques (de type Penning), qui surviennent à plus petite distance inter-atomique (typiquement en dessous de quelques $10a_0$), sont évitées. Ce mécanisme n'a pas été étudié au cours de cette thèse, cependant, il peut être intéressant de l'étudier dans une expérience ultérieure.

Ensuite, la plupart des potentiels attractifs possèdent une partie répulsive à très courte distance (typiquement quelques a_0 , de manière analogue aux potentiels d'interaction entre deux atomes dans l'état 2^3S_1). C'est le cas des potentiels attractifs connectés à l'asymptote $2^3S_1 + 2^3P_2$. Ceux-ci ont déjà été sondés par deux équipes hollandaises [103], dans des conditions différentes (voir paragraphe 5.1.2). C'est en partie la raison pour laquelle nous avons, en tout premier lieu recherché ces raies moléculaires également. Les spectres obtenus avec

notre expérience sont présentés au paragraphe 5.2. Ils sont assez différents, et dans une large mesure complémentaires de ceux observés aux Pays-Bas. L'interprétation théorique des raies moléculaires observées n'est pas simple, car la partie interne de ces potentiels, à courte distance, est très mal connue. Dans certains cas, des méthodes d'identification des raies existent, pour lesquelles la connaissance de la seule partie asymptotique des potentiels est suffisante. Ainsi, le chapitre 8 présente les résultats préliminaires de l'interprétation du spectre observé dans le rouge de D_2 , à l'aide de la méthode de la phase accumulée [33, 111]. Cette méthode s'appuie sur une description semi-classique des niveaux ro-vibrationnels dans les potentiels à longue portée, initialement développée par LeRoy et Bernstein [112] (1970).

Enfin, la figure 5.1 présente des courbes de potentiels attractifs aux très grandes distances mais dont la partie répulsive apparaît également à grande distance. Ces puits de potentiels sont appelés “puits de potentiel à purement longue portée”, car ils sont entièrement décrits par une approche asymptotique, *y compris leur partie répulsive*. Pour ces potentiels, un calcul perturbatif relativement simple suffit pour prédire très précisément la structure ro-vibrationnelle des états liés correspondants. En particulier le puits de potentiel connecté à l'asymptote $2^S_1 + 2^3P_0$ a fait l'objet d'études expérimentales présentées au paragraphe 5.2.4, et d'études théoriques détaillées au chapitre 7. Le photon (3) sur la figure 5.1 conduit à ce puits de potentiel. Ainsi nous avons mis en évidence l'existence de “dimères géants” d'hélium, jamais observés jusqu'alors, ce qui a motivé notre étude approfondie de ces molécules. Deux autres potentiels à purement longue portée sont connectés à l'asymptote $2^S_1 + 2^3P_1$, mais ils sont encore moins profonds (voir le chapitre 6), et pas visibles sur la figure 5.1.

5.1.2 Mesures précédemment réalisées dans $^4\text{He}^*$

Avant le travail effectué au cours de cette thèse, deux expériences de photo-association sur l'hélium métastable ont été réalisées par les groupes hollandais de W. Vassen et W. Hogervorst (Amsterdam) et de P. van der Straten et A. Niehaus (Utrecht) (voir en particulier le travail de thèse de G. Woestenenk [33]). Un article a été publié conjointement en 2000 [103] (Herschbach *et al.*), dans lequel les auteurs sondent, dans le rouge de la raie atomique D_2 , les états moléculaires connectés à l'asymptote $2^3S_1 + 2^3P_2$. Les deux groupes réalisent ces expériences sur un MOT d'hélium métastable, à une température de $\sim 1\text{mK}$ et une densité de $\sim 5 \times 10^9 \text{ cm}^{-3}$. Lorsque la fréquence du laser de photo-association est balayée vers le rouge de la raie atomique D_2 , à des désaccords variant de 0 à -20 GHz, le signal d'ions émis en continu par le nuage atomique augmente ponctuellement pour certaines fréquences laser, laissant apparaître un spectre de raies. Ce spectre est interprété comme étant la signature de niveaux vibrationnels dans des états électroniques excités. Les molécules, produites à grande distance inter-nucléaire, ont une énergie interne de 40 eV et se dés excitent principalement par le processus d'ionisation Penning. Ainsi, les états moléculaires singulets et triplets s'auto-ionisent avec une probabilité qui atteint 1 lorsque les noyaux explorent la partie interne de leur potentiel d'interaction (en deçà de quelques $10 a_0$, typiquement). En revanche, pour les états quintuplets, l'argument d'inhibition du processus de dés excitation Penning par la règle de conservation du spin est valable, et ces états moléculaires peuvent survivre à courte distance. En réalité, cependant, la structure fine atomique couple les états singulets, triplets et quintuplets entre eux, et les états électroniques sondés sont en général une combinaison,

variable avec la distance interatomique, des différents états de spins (voir le chapitre 6). Ainsi, la plupart des états électroniques sondés produisent des ions qui sont détectés dans les expériences décrites par Herschbach *et al.*.

Les auteurs de [103] calculent le comportement asymptotique des potentiels électroniques, en tenant compte de l'interaction dipôle-dipôle et du couplage de structure fine atomique. À l'aide de cette analyse, ils proposent une identification de la plupart des 25 raies moléculaires observées. L'identification n'est cependant pas univoque pour plusieurs raisons, dont une est probablement la méconnaissance de la partie à moyenne et courte distance (i.e. $\leq 50 a_0$) des potentiels d'interaction.

La première raison pour laquelle il est intéressant de reprendre l'étude de la photo-association de l'hélium métastable, est la possibilité nouvelle de la réaliser sur un nuage refroidi par évaporation. Dans le régime de température et de densité obtenu dans notre expérience, la densité dans l'espace des phases est typiquement 6 à 7 ordres de grandeurs plus élevée que dans un MOT. Or, le taux de photo-association est proportionnel à la densité dans l'espace des phases [113] du nuage atomique. Ainsi, les pertes d'atomes occasionnées par la photo-association, qui n'ont pas pu être détectées dans les expériences hollandaises, peuvent l'être dans notre expérience pour cette raison. De plus, certaines raies moléculaires, trop faibles, ou ne produisant pas d'ions peuvent désormais être détectées. En particulier, les molécules He_2 à purement longue portée n'ont jamais été observées dans les expériences précédentes. Une explication possible est que, dans ces états moléculaires très atypiques, les noyaux ne s'approchent jamais suffisamment pour conduire à l'ionisation de la molécule, qui se désexcite alors radiativement. La détection d'ions utilisée par Herschbach *et al.* est donc inefficace dans ce cas.

Une autre raison pour reprendre des mesures de photo-association, est que les mesures précédentes, évoquées ci-dessus, n'ont conduit à aucune mesure de la longueur de diffusion. En effet, les expériences de PA à un seul photon produisent des spectres de raies dont les intensités relatives sont modulées en fonction du facteur de Franck-Condon. Mais ceci ne permet de remonter à la fonction d'onde de l'état initial, et donc à la longueur de diffusion, que si les états excités sont eux mêmes parfaitement identifiés et connus. Il faut donc améliorer l'identification des raies déjà observées, ou sonder des puits de potentiels entièrement connus, comme les potentiels à purement grande portée. Une dernière possibilité est de réaliser des expériences de PA à deux photons.

5.1.3 Molécules à purement longue portée

En vertu du principe de Franck-Condon, les états vibrationnels accessibles par photo-association de gaz dilués d'atomes froids sont extrêmement étendus. Au voisinage de leur point de rebroussement externe, ces niveaux vibrationnels explorent la région asymptotique à longue distance du potentiel d'interaction électronique correspondant. Pour les "molécules à purement longue portée", la partie *répulsive* du potentiel d'interaction apparaît également à de très grandes distances inter-nucléaires, qui appartiennent aussi à la région asymptotique des grandes distances pour le potentiel d'interaction. L'existence de ces puits de potentiels à des distances asymptotiquement longues a été proposée pour la première fois par Stwalley *et al.* [114] en 1978, dans le cas du sodium. Ces puits sont le résultat d'anti-croisements, à très

grande distance inter-nucléaire, entre des potentiels d'interaction dipôle-dipôle attractifs et répulsifs, provoqués par le couplage de structure fine au sein des atomes (voir chapitre 6).

La description théorique de ces molécules résultant d'interactions à des distances asymptotiquement grandes présente des simplifications considérables, par rapport aux cas des molécules résultant d'une liaison chimique ordinaire. En effet l'interaction d'échange responsable de la liaison chimique, et le potentiel d'interaction à distance intermédiaire si difficile à calculer (voir, par exemple, le cas du potentiel $^5\Sigma_g^+$ discuté précédemment), sont dans ce cas complètement négligeables. Le calcul perturbatif est parfaitement adapté et de précision suffisante pour être confronté avec succès aux mesures de spectroscopie de très haute résolution qui peuvent être réalisées par photo-association.

Pour les dimères d'alcalins, deux potentiels électroniques connectés aux asymptotes $S+P$ présentent cette particularité d'un puits exclusivement à longue portée, nommés 0_g^- et 1_u . Leur spectroscopie, confrontée à des calculs théoriques perturbatifs, a permis de mesurer précisément (à typiquement 10^{-4} près en valeur relative) les durées de vies radiatives *atomiques* correspondantes [30], qui seules interviennent dans la description de l'interaction dipôle-dipôle au premier ordre (voir le chapitre 6).

Les molécules à purement longue portée sont aussi des systèmes qui permettent de mettre en évidence l'effet de retard dans l'interaction dipôle-dipôle. Cet effet intervient lorsque la distance entre les deux dipôles devient suffisamment grande, comparée à la longueur d'onde de l'onde électromagnétique responsable de l'interaction, pour que la vitesse de propagation de la lumière ne puissent plus être considérée comme infinie.

L'effet de retard a été prédit pour l'interaction de van der Waals entre dipôles *induits* par Casimir et Polder en 1948 [115]. Cette interaction est en $1/R^6$ aux courtes distances, pour lesquelles la vitesse de propagation de la lumière peut être considérée comme infinie, mais en $1/R^7$ aux distances plus grandes à cause de l'effet de retard. Cet effet a été observé entre un atome et une surface (voir, par exemple [116]), mais il semble qu'il n'ait jamais encore été observé sur l'énergie de liaison d'une molécule dont la cohésion est assurée par l'interaction de Van der Waals. La molécule 4He_2 , *dans son état fondamental*, est une bonne candidate. Cette molécule résulte de l'existence d'un puits de potentiel de profondeur 11 Kelvin, ne possédant qu'un seul état lié ($v=0, J=0$) dont l'énergie de liaison n'est que de l'ordre du milliKelvin. Cette très faible énergie de liaison est la raison pour laquelle cet état lié n'a été observé qu'en 1993 par Luo *et al.* [117], après qu'on eut longtemps pensé qu'il n'existait pas. Le dimère est observé dans un jet de 4He pulsé produit par l'ouverture pendant 250 μs d'un orifice de 0.15 mm de diamètre entre une chambre à vide et une chambre source contenant de l'hélium à température ambiante et à 125 bar. Dans ces conditions, la distribution de vitesse dans le jet correspond à une température de 0.3 mK, et des dimères sont observés par spectrométrie de masse après ionisation. Lorsque la pression dans la chambre source diminue, la température du jet augmente, et pour des températures supérieures à 1 mK, le signal de dimères disparaît, permettant de conclure que l'énergie de liaison est voisine du mK. Parce que cette molécule est très peu liée, sa fonction d'onde radiale s'étend à grande distance, et la distance inter-nucléaire moyenne est voisine de $105 a_0$. Dans la référence [118], les mêmes auteurs prédisent que l'effet de retard représente une correction de 10 % sur l'énergie de l'état lié, par rapport au calcul non retardé utilisant un potentiel d'interaction en $1/R^6$. Cela correspond à une variation d'au maximum 3 MHz ($\simeq 150 \mu K$) de l'énergie de liaison, et cette précision est

restée jusqu'ici inaccessible par la méthode expérimentale décrite ci-dessus.

Un effet de retard est aussi attendu pour l'interaction dipôle-dipôle *résonante* en $1/R^3$. Ce calcul a été fait en 1964 [119, 120], il prédit une correction en $1/R$ (voir le chapitre 6). La photo-association d'atomes froids, a permis de mettre en évidence cet effet, grâce à la spectroscopie des molécules à purement grande distance. Le groupe du NIST (Gaithersburg, USA), par exemple, a réalisé en 1996, la spectroscopie du potentiel 0_g^- du sodium avec une incertitude expérimentale de l'ordre de 5 MHz. Leur calcul montre que l'effet de retard contribue à hauteur de 100 MHz à l'énergie de liaison des états vibrationnels observés, et sa prise en compte est nécessaire pour reproduire le spectre mesuré [121].

Au cours de cette thèse, nous avons démontré l'existence de tels puits de potentiels à purement longue portée dans les dimères d'hélium électroniquement excités, et que leur description nécessite la prise en compte des effets de retard. Aussi, la durée de vie radiative du triplet 2^3P a pu être confirmée expérimentalement. Ces molécules sont caractérisées par des distances inter-nucléaires encore plus importantes que dans le cas des alcalins [121, 122]; on les a donc baptisées de “dimères géants” (voir le chapitre 7).

5.1.4 Acquisition des spectres de photo-association

Au cours de cette thèse, les expériences de photo-association ont été réalisées sur un nuage de $^4\text{He}^*$ piégé magnétiquement, et refroidi par évaporation forcée. Chacun des spectres présentés ci-dessous, est le résultat d'une même séquence expérimentale répétée en boucle entre 50 et 500 fois selon les cas. Cette séquence expérimentale est illustrée par la figure 5.2 et détaillée ci-dessous.

Tout d'abord, des atomes sont piégés dans le MOT, transférés dans le piège magnétique, puis détectés en mesurant leur fluorescence à saturation après avoir coupé le piège magnétique. Cette première mesure constitue un signal de référence qui témoigne de la dérive à long terme du nombre d'atomes piégés. Après cette mesure préliminaire qui prend environ 2 secondes, le piège magnétique est chargé de nouveau. Les atomes sont alors évaporés en 8 à 10 secondes jusqu'à une température comprise entre T_C et $30\ \mu\text{K}$. Le cas-échéant, le champ magnétique B_0 est alors modifié, pour éviter, ou étudier, l'effet Zeeman sur les raies mesurées. Puis le laser de photo-association illumine le nuage *in situ* pendant une durée comprise typiquement entre $50\ \mu\text{s}$ et $500\ \text{ms}$, à des intensités comprises entre $5\ \text{mW}/\text{cm}^2$ et $50\ \text{nW}/\text{cm}^2$, respectivement. Ce faisceau est aligné perpendiculairement à l'axe défini par le champ magnétique de piégeage, et contient par conséquent toutes les polarisations. Ensuite, le piégeage magnétique est coupé en deux étapes, afin d'éviter les courants de Foucault qui détériorent la qualité de l'imagerie (voir l'annexe A). Tout d'abord, le courant dans les bobines de compensation du biais est réduit jusqu'à zéro en $200\ \text{ms}$. Puis, le piège de Ioffe constitué des trois seules petites bobines est coupé quasiment instantanément. Le nuage est alors détecté par imagerie d'absorption après un temps d'expansion de typiquement 5 à $8\ \text{ms}$, selon la température de l'échantillon. L'ensemble de cette séquence, incluant l'acquisition des trois images nécessaires à la détection par absorption (voir l'annexe A), l'enregistrement des données, et l'ajustement du profil de densité optique, dure environ 30 secondes. L'image de densité optique du nuage est ajustée par une gaussienne 2D (au dessus de T_C), dont la largeur, après expansion du gaz, renseigne sur la température du nuage. Le volume sous cette gaussienne 2D est proportionnel au nombre

d'atomes, que l'on peut calibrer en absolu de manière indépendante, d'après la discussion du chapitre 3).

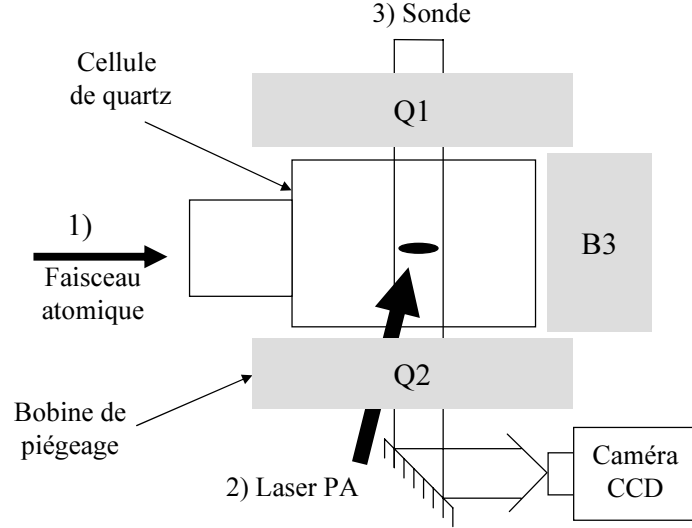


FIG. 5.2 – Illustration de la séquence expérimentale reproduite en boucle pour l'acquisition d'un spectre de photo-association. Le nuage est représenté par une ellipse au centre des trois petites bobines de piégeage.

- 1) Le gaz de He^* est piégé puis évaporé jusqu'à une température inférieure à $30 \mu\text{K}$.
- 2) l'impulsion du laser de photo-association (PA) illumine le nuage pendant un temps d'exposition typique de quelques millisecondes, et une intensité typique de l'ordre de quelques I_{sat} ou inférieure. Ce faisceau est quasiment parallèle au faisceau de détection, orthogonal à l'axe du champ magnétique B_0 au fond du piège. Il contient toutes les polarisations par rapport à cet axe.
- 3) les bobines de Helmholtz (non représentées, voir figure 2.3) sont éteintes progressivement en 200 ms, puis le courant dans les trois bobines Q1, Q2 et B3 est subitement coupé. Le nuage subit alors une phase d'expansion ballistique de typiquement 5 ms, après laquelle il est détecté optiquement (un seul des deux faisceaux sondes a été représenté ici, voir l'annexe A).

Au début de chaque nouvelle séquence, la fréquence du laser de photo-association est changée par l'une des deux méthodes détaillées ci-dessous, et le spectre de photo-association est obtenu en traçant, en fonction de cette fréquence, la densité optique au centre du nuage photo-associé, normalisée par la mesure de fluorescence de référence correspondante.

Le laser de photo-association est produit par une diode DBR identique à celle qui produit le laser principal de manipulation, refroidissement et détection des atomes. Cette diode a été utilisée selon deux configurations différentes. La première permet un balayage continu en fréquence sur une large plage (3 nm au maximum), mais n'autorise la mesure de la fréquence du laser, et donc de l'énergie de liaison des molécules produites, qu'à 10 MHz près au mieux. La seconde configuration n'autorise qu'un balayage restreint permettant, par exemple, de "zoomer" sur une raie moléculaire proche de la raie atomique D_0 , mais avec une précision de mesure de la fréquence laser de l'ordre de 0.5 MHz. Ces deux configurations laser seront décrites dans les paragraphes suivants.

Remarques sur la photo-association à un photon dans un condensat

La quasi-totalité de nos expériences a été réalisée sur des nuages thermiques, vers $2 T_C$ à $3 T_C$. La réalisation de ces expériences sur des condensats a conduit à des spectres ayant un rapport signal/bruit sensiblement moins bon. En effet, si l'on choisit de détecter un condensat après avoir éteint le piège en deux étapes comme ci-dessus, un taux de chauffage important entre en jeu pendant la période de décompression lente qui vise à éviter l'induction de courants de Foucault (voir les expériences décrites au paragraphe 3.3.2). Ainsi, un condensat initialement quasi-pur *in situ* est détecté avec une fraction thermique considérablement accrue, et une densité optique diminuée d'autant, sous l'effet du chauffage. La détection la plus "propre" que nous puissions faire d'un condensat, est donc celle que l'on obtient après la coupure brutale et simultanée des 5 bobines du piège. Ce sont alors les courants de Foucault qui détériorent la sensibilité de la détection.

Quelle que soit la méthode de détection, la densité optique maximale que l'on observe dans un condensat quasi-pur est typiquement deux fois moindre que celle d'un nuage thermique détecté vers $3T_C$, en l'absence de courants de Foucault. Pour cette raison les spectres de photo-association que nous avons enregistrés à partir d'un condensat présentaient des rapports signal/bruit nettement moins bons. Aucune amélioration sensible n'a été apportée par l'augmentation probable du taux de photo-association dans un condensat, par rapport à un nuage thermique proche de T_C .

De plus, les molécules produites par ces expériences de photo-association à un seul photon ont des durées de vie extrêmement courtes de typiquement 50 ns ou moins. En effet, elles se désexcitent par des processus non cohérents d'émission spontanée (voir le chapitre 7) ou d'auto-ionisation. Aussi, les propriétés de cohérence du condensat, avec en particulier la possibilité éventuelle de former un condensat moléculaire à partir d'un condensat atomique, n'ont pas été exploitées durant ces travaux. L'investigation de ces phénomènes deviendra éventuellement pertinente, si la possibilité de produire des molécules suffisamment stables (par un processus à deux photons éventuellement) est démontrée.

5.2 Spectres préliminaires de photo-association

5.2.1 Balayage en fréquence du laser de PA

La source laser accordable

Pour nos premières expériences de photo-association, la diode laser, émettant un spectre de largeur 3 MHz n'était asservie qu'en température et n'était pas placée dans une cavité étendue. Cette méthode permet, en balayant la consigne de température de la diode entre 0°C et 30°C , de varier continûment, *i.e.* sans saut de mode, la fréquence de l'émission laser de $+280$ GHz à -400 GHz autour de la raie D_2 ($2^3S_1 \leftrightarrow 2^3P_2$). En l'absence de rétroaction sur le courant de la diode, la principale source de bruit sur la fréquence du laser provient des fluctuations thermiques résiduelles qui sont de l'ordre du mK. La fréquence du laser fluctue alors avec une amplitude de typiquement 40 MHz avec un temps caractéristique de l'ordre de quelques secondes, fixé par la rapidité de réaction de la boucle d'asservissement en

température de la jonction $n-p$ qui produit l'émission laser à l'intérieur de la diode. À ce bruit s'ajoute une dérive lente de la fréquence d'émission laser, qui peut atteindre typiquement 100 à 300 MHz en quelques dizaines de minutes. Cette constante de temps est proche de celle qui régit la thermalisation de l'ensemble du socle métallique qui supporte la diode. En définitive, la calibration de la fréquence du laser, en fonction de la tension de consigne de l'asservissement en température, est stable à mieux que 50 MHz sur une échelle de temps égale à la durée de la séquence expérimentale depuis le chargement du MOT, jusqu'à la détection des atomes restant après photo-association (environ 20 secondes).

Mesure de la fréquence du laser de PA

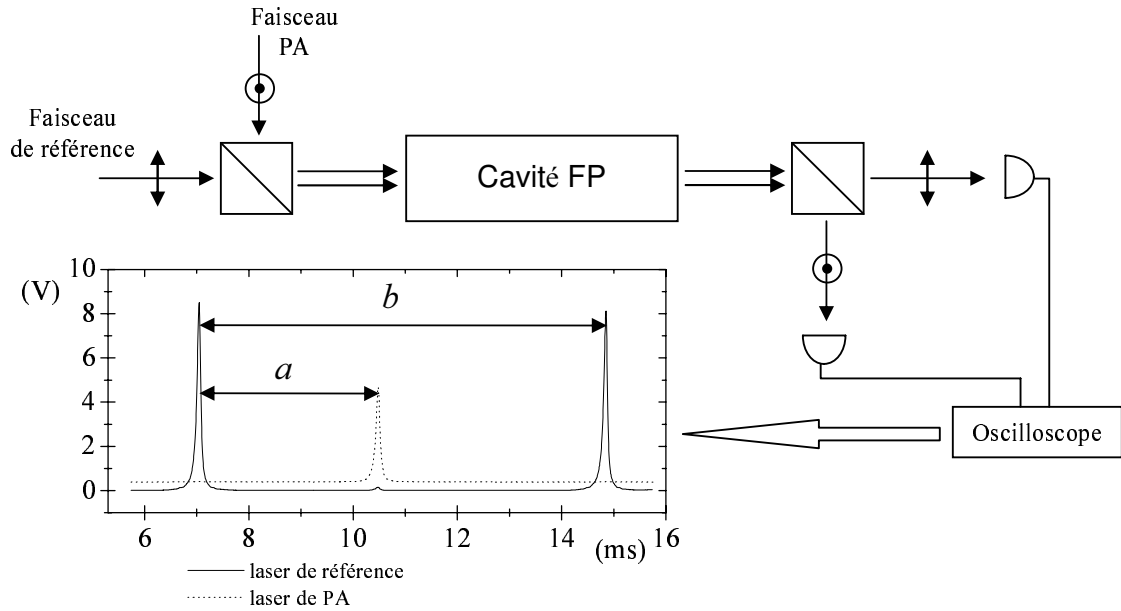


FIG. 5.3 – Mesure de la fréquence ν_{PA} du laser de photo-association à l'aide d'une cavité Fabry-Perot: $\nu_{PA} = \nu_{ref} + (a/b + N) \times ISL$. ISL est l'intervalle spectral libre de la cavité Fabry-Perot. Le rapport a/b est mesuré à l'oscilloscope, et l'entier N peut être déduit à l'aide de la calibration préliminaire et plus grossière de ν_{PA} en fonction de la consigne de température de la diode laser. La fréquence du laser est ainsi déterminée, dans l'absolu, à environ 10 à 15 MHz près.

Pour mesurer la fréquence du laser, on utilise alors une cavité Fabry-Perot, stabilisée en température vers 30 °C. Cette cavité est injectée par le laser de photo-association ainsi que par un laser de référence asservi sur la transition atomique D_2 ($2^3S_1 \leftrightarrow 2^3P_2$). Quelques mW de puissance sont en réalité prélevés sur le laser principal et sont injectés, en guise de référence, dans la cavité Fabry-Perot. Une cale piézo-électrique permet de moduler en continu la longueur de la cavité, sur un peu plus d'un intervalle spectral libre (ISL). L'asservissement du laser de PA sur la raie D_0 , distante de 31.908125 GHz de la raie de référence D_2 , permet de mesurer l'ISL à 748.6(2) MHz.

La figure 5.3 présente un schéma du montage ainsi que le signal transmis par la cavité, et

mesuré à l'oscilloscope. La finesse de la cavité est voisine de 80. Les durées a et b représentées sur cette figure sont mesurées, et le rapport a/b constitue une détermination, *modulo* l'ISL, de l'écart de fréquence entre le laser de PA et le laser de référence. La mesure de fréquence ν_{PA} du laser de photo-association est donc donnée, en fonction de la fréquence ν_{ref} du laser de référence, par :

$$\nu_{PA} = \nu_{ref} + (a/b + N) \times ISL \quad (5.1)$$

L'entier N peut être déterminé à l'aide d'une calibration préliminaire grossière de ν_{PA} en fonction de la tension U^T qui fixe la consigne de température de la diode. On peut vérifier que la relation est quasiment linéaire sur un intervalle de fréquence de plusieurs centaines de GHz, avec une pente voisine de 98 MHz/mV. Initialement le laser de PA est réglé sur la raie D_2 , tout comme le laser de référence, et on fixe $N = 0$. Une première mesure de a/b est effectuée déterminant précisément la fréquence du laser de PA. Puis, la consigne de température est changée. Connaissant la variation de tension ΔU^T appliquée, et donc la variation de fréquence attendue, on peut en déduire les nouvelles valeurs attendues pour N et pour a/b . Puis, on réalise la nouvelle mesure de a/b . Si le saut de température est suffisamment modéré, et si le laser n'a pas trop dérivé entre les deux mesures, alors l'écart entre les valeurs attendues et mesurées de a/b est suffisamment faible pour que la détermination de la nouvelle valeur de N soit non ambiguë.

Lors de l'acquisition d'un spectre, la séquence expérimentale est répétée en boucle, avec à chaque fois une fréquence différente pour le laser PA. La mesure de la fréquence du laser de PA est réalisée une première fois juste avant d'illuminer le nuage, et une seconde fois juste après. La fréquence retenue est la moyenne des deux mesures, qui sont en général distinctes de moins de 3 MHz. Les mesures de a et b sont acquises par l'ordinateur qui met à jour et conserve en mémoire la valeur de N . D'une séquence expérimentale à la suivante, c'est-à-dire sur un intervalle de temps voisin de 30 secondes, la dérive du laser de PA est suffisamment faible pour qu'en permanence N puisse être déterminé sans erreur.

Exactitude de la mesure de fréquence

L'erreur systématique due à l'erreur sur la fréquence ν_{ref} du laser de référence, provient de la qualité de son asservissement discuté au chapitre 2. Cette erreur est de l'ordre de 0.3 MHz, et s'avère négligeable devant les autres sources d'erreurs. En effet, un phénomène d'hystérésis important sur le déplacement de la cale piézo-électrique limite l'exactitude de la mesure de fréquence. Selon que le balayage de la cavité se fait en augmentant ou en diminuant la tension aux bornes du cristal, les deux mesures de a/b résultantes sont différentes de 2% au maximum. On suppose donc que la valeur exacte de a/b est entre les deux. Ainsi la détermination de a/b conduit à une erreur d'au plus 1% d'ISL, à savoir 8 MHz, sur la fréquence du laser de PA. De même, la précision de la calibration de l'ISL est limitée à $\simeq 0.03\%$. Compte tenu de la formule 5.1, l'erreur relative qui en résulte sur la mesure de la fréquence est de $N \times 0.03\%$. Enfin, une asymétrie résiduelle des pics transmis par la cavité Fabry-Perot introduit une erreur systématique dans la comparaison des fréquences. Ces pics étant d'une largeur à mi-hauteur de l'ordre de 8 MHz, on peut estimer l'erreur résultante à quelques MHz.

En définitive, la mesure de fréquence ainsi effectuée est exacte à environ:

$$(10 + 0.2 \times N) \text{ MHz près ,} \quad (5.2)$$

où N est la partie entière de $|\delta/ISL|$, où δ est le désaccord du laser de PA par rapport à la raie D_2 .

5.2.2 Signal détecté

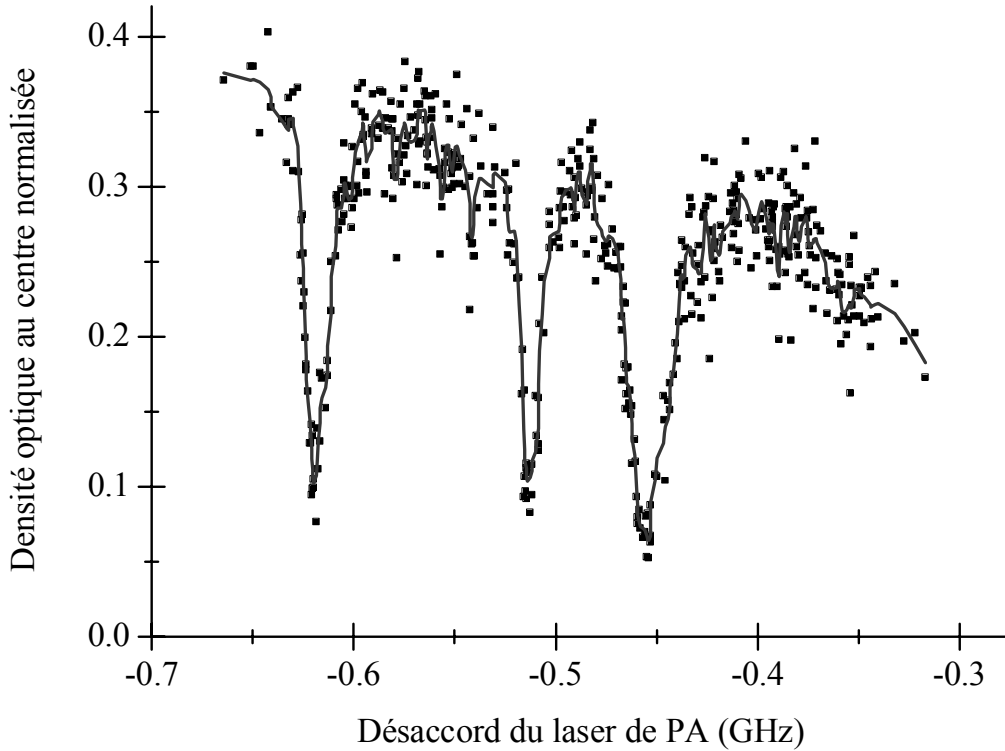


FIG. 5.4 — Exemple de spectre obtenu en mesurant la fréquence du laser de PA à l'aide d'une cavité Fabry-Perot, par rapport à la raie atomique D_2 . La densité optique au centre est normalisée par la mesure de fluorescence de référence, et tracée en fonction du désaccord du laser de PA par rapport à la raie D_2 . Ce spectre est construit par l'accumulation de 500 points de mesures réalisés en 4 heures. Chaque point représente un nouveau nuage évaporé, illuminé par le laser de PA, puis détecté optiquement. La température du nuage est de $\sim 15 \mu K$, sa densité voisine de 10^{13} at/cm^3 . Le temps d'exposition du laser est de 70 ms, et son intensité est $\sim I_{\text{sat}}$. La courbe continue est une moyenne glissante sur 5 points adjacents, pour guider l'oeil.

La figure 5.4 présente un exemple typique de spectre mesuré lorsque le laser de PA est désaccordé dans le rouge de la raie atomique D_2 . Le spectre est obtenu en traçant la densité optique au centre du nuage, après qu'il a été illuminé par le laser de PA, en fonction de sa fréquence, mesurée à l'aide de la cavité Fabry-Perot. Le signal est maximal lorsque le laser de PA n'a aucun effet sur le nuage. L'existence de raies moléculaires se traduit par la

diminution, par un facteur voisin de 5 ou plus, de la densité optique au centre du gaz d'atomes, pour certaines fréquences du laser de PA. La largeur des raies observées est typiquement de quelques MHz à quelques 10 MHz, à la limite des faibles intensités d'exposition.

Les raies de photo-association sont observées au dessus d'un "fond" de pertes "non résonantes" d'autant plus importantes que la transition atomique est plus proche (c'est-à-dire vers le désaccord nul, sur la figure 5.4). Ces pertes non résonantes, observées dans le rouge de la transition atomique, ont été interprétées par le groupe de P. van der Straten comme des collisions Penning assistées par lumière. Nous reviendrons sur l'interprétation de ces pertes au chapitre 8.

5.2.3 Dans le rouge de la raie atomique D_2

Spectres expérimentaux

Pour tous les spectres présentés ici, le champ magnétique B_0 a été compensé à $\simeq 0.5$ Gauss, au moment de l'impulsion laser de PA. Ainsi, l'effet Zeeman d'une paire d'atomes libres produit un décalage en énergie de $2 \times \mu B_0 \simeq 2.8$ MHz, et l'effet Zeeman des molécules produites est au plus du même ordre de grandeur. L'influence du champ magnétique de piégeage sur la position des raies est, dans ces conditions, petit devant l'incertitude qui accompagne la

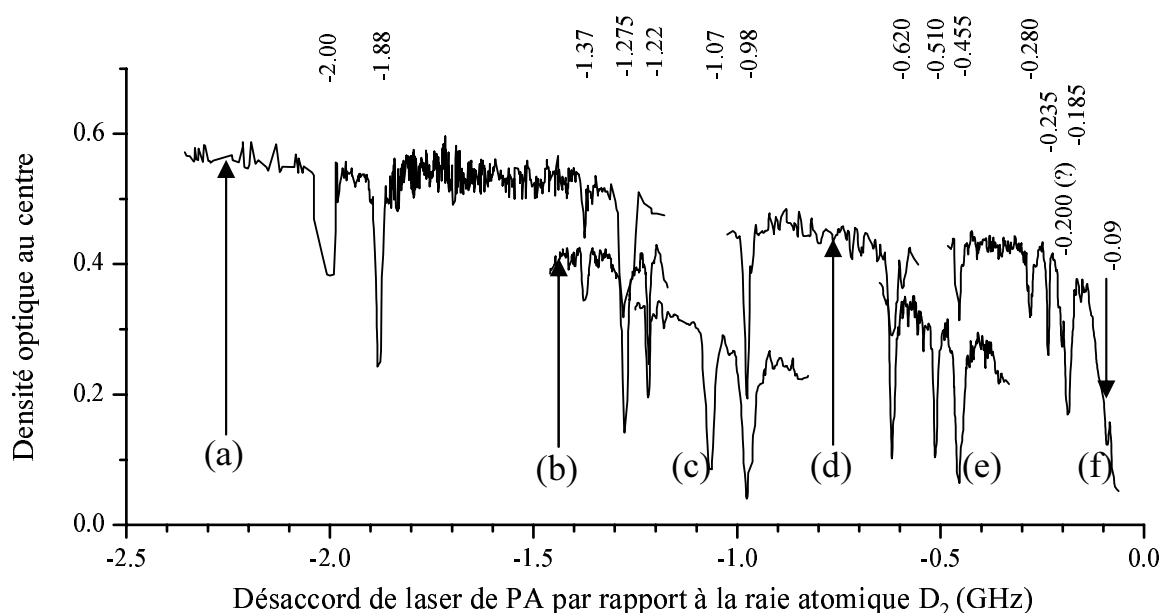


FIG. 5.5 – Spectres obtenus dans le rouge de la transition atomique D_2 . Six séries d'expériences, réalisées sur plusieurs jours et notées (a) à (f), sont rassemblées. Chaque série est obtenue en accumulant plusieurs centaines de points; les spectres présentés sont le résultat d'une moyenne glissante sur 5 points expérimentaux adjacents. Chaque série diffère par l'intensité et le temps d'exposition du laser de photo-association: a) et b) $2 I_{\text{sat}}$ et 50 ms, c) $3 I_{\text{sat}}$ et 150 ms, d) I_{sat} et 30 ms, e) I_{sat} et 70 ms, f) $I_{\text{sat}}/10$ et 30 ms. (Les intensités données sont indicatives) Le spectre (e) est celui déjà présenté sur la figure 5.4

mesure de la fréquence du laser de PA (10 à 15 MHz). De même, l'intensité du laser de PA a été maintenue suffisamment faible (imposant un temps d'exposition suffisamment long) pour que les décalages lumineux éventuels soient également inférieurs à l'incertitude sur la mesure de fréquence du laser de PA.

La figure 5.5 résume l'ensemble des spectres accumulés dans le rouge de la transition D_2 , entre 0 et -2.5 GHz. Dans cette gamme de fréquence, nous sommes dans la situation schématisée par le photon (2) sur la figure 5.1. *A priori*, 8 potentiels électroniques distincts sont accessibles. Les raies moléculaires observées représentent des états ro-vibrationnels qui peuvent appartenir à chacun de ces potentiels.

Le spectre de raies a été mesuré continûment (par morceaux) jusqu'à un désaccord de -6 GHz. Au delà, les raies sont beaucoup plus espacées, et comme on accumule typiquement un point tous les 15 MHz en 30 secondes, un balayage systématique en fréquence prend beaucoup trop de temps. Néanmoins, à l'aide du spectre accumulé entre 0 et -6 GHz, il a été possible d'identifier une série de 5 raies comme étant une série d'états vibrationnels appartenant à un même potentiel électronique 2_u (voir le chapitre 8). Une fois cette série identifiée, la position des raies suivantes appartenant au même puits de potentiel a pu être déterminée par le calcul. Nous avons pu, par la suite, observer 2 de ces raies expérimentalement, aux désaccords plus élevés de -8.95 MHz et -13.67 MHz. En effet, nous sommes allés explorer une petite plage de fréquence au voisinage des fréquences prédites. L'observation expérimentale de ces deux raies a donc été la première validation des calculs que nous avons menés et qui sont développés au chapitre suivant.

Conclusion

La liste des raies observées dans le rouge de D_2 est dressée ci-dessous dans l'ordre croissant. Leur fréquence est donnée en GHz, par rapport à la raie D_2 , avec une barre d'erreur de 10 à 15 MHz :

-0.09; -0.185; -0.200(?); -0.235; -0.280; -0.455; -0.51; -0.62; -0.98; -1.07;
 -1.22; -1.275; -1.37; -1.88; -2.00(?); -2.42; -2.59; -3.37; -3.57; -4.25;
 -4.53; -5.64; -5.90; -7.45; -8.95*; -11.70; -13.67*;

Les fréquences notées d'une astérisque correspondent aux raies mesurées après avoir été prédites. La raie mesurée à -11.70 GHz a été observée fortuitement, en explorant une petite gamme de fréquence "au hasard" dans cette région.

Nous avons initialement été très surpris de constater que ce spectre était en désaccord sensible avec celui publié en 2000 par Herschbach *et al.* [103], compte tenu des incertitudes annoncées pour les deux spectres. Suite à la communication de nos résultats au groupe de P. van der Straten, il est apparu qu'une erreur de calibration de la cavité Fabry-Perot utilisée par le groupe de Utrecht était responsable de ces désaccords. Depuis, nos collègues hollandais ont ré-interprété leurs données après avoir correctement calibré l'ISL de leur cavité, et les spectres sont désormais en excellent accord. Notre expérience a donc montré que le spectre publié en 2000 par le groupe hollandais était erroné. Une collaboration est désormais en cours avec le groupe de Utrecht pour tenter d'interpréter l'ensemble du spectre.

L'identification des raies observées est discutée au chapitre 8. En particulier, nous montrons que la connaissance de la seule partie asymptotique des potentiels électroniques permet une interprétation préliminaire de ce spectre.

5.2.4 Dans le rouge de la raie atomique D_0

Dans le rouge de D_0 , les seuls états moléculaires accessibles dans notre expérience, appartiennent à un unique puits de potentiel, à purement longue portée (voir le chapitre 6), et n'avaient jamais été observés. Nous avons désaccordé le laser de PA dans le rouge de D_0 pour réaliser, dans un premier temps, un balayage "grossier", selon le protocole exposé au paragraphe 5.2.1. La figure 5.6 présente les spectres obtenus: 5 raies sont détectées. Remarquons dès maintenant que la mesure de raies moléculaires dans le rouge de D_0 par cette méthode est accompagnée d'une barre d'erreur systématique voisine de 20 MHz, selon l'estimation donnée par la formule 5.2, puisqu'alors N est voisin de 40. La largeur des raies observée sur la figure 5.6 est voisine de 15 MHz. Des mesures ultérieures nous permettent de conclure que cette largeur est due au bruit qui accompagne la détermination de la fréquence du laser de PA par la méthode exposée précédemment.

Les 5 raies observées ici ont été identifiées avec une grande précision comme étant la

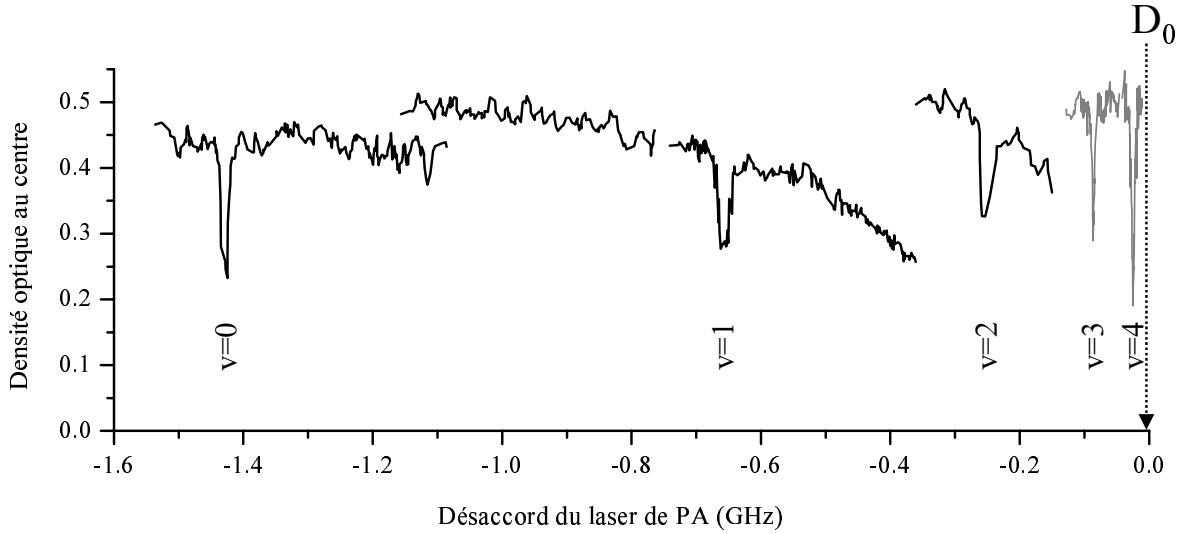


FIG. 5.6 – Spectre obtenu dans le rouge de la transition atomique D_0 . Cette figure est constituée de la mise bout à bout d'une sélection de spectres obtenus séparément, de manière analogue à la figure 5.5. Nous verrons au chapitre 7 que ces raies correspondent aux niveaux ro-vibrationnels $\{J = 1, v = 0 \text{ à } 4\}$ dans le puits de potentiel 0_u^+ . Le désaccord nul correspond ici à la raie atomique D_0 . Chaque raie est observée sur un fond de pertes non résonantes qui deviennent de plus en plus importantes lorsqu'on s'approche de la raie atomique D_0 , ce qui oblige à diminuer d'autant l'intensité du faisceau laser de PA pour les séries les plus proches de D_0 . L'intensité relative de toutes ces raies n'est donc pas comparable sur ce graphe. De plus, pour les deux courbes tracées en gris ($v = 3$ et $v = 4$), le fond de pertes non résonantes, initialement très important, a été corrigé pour faire ressortir la présence des raies. L'échelle verticale est en unité arbitraire pour ces deux raies.

signature de l'existence de molécules à purement longue portée, que nous avons appelées “dimères géants”, et qui semblent se désexciter radiativement plutôt que par auto-ionisation. Contrairement aux raies observées dans le rouge de D_2 , la possibilité de calculer précisément l'énergie de liaison des dimères géants nous a amenés à effectuer une mesure plus précise de la position de ces raies, en asservissant le laser de PA, et en le désaccordant avec des modulateurs acousto-optiques. Le paragraphe suivant décrit la méthode employée.

5.3 Spectroscopie de haute résolution au voisinage de D_0

5.3.1 Mesure précise de la fréquence du laser de photo-association

Une mesure plus précise de la fréquence du laser de photo-association est nécessaire pour la confronter au calcul des énergies de liaison des dimères géants, et en particulier pour mettre en évidence l'influence de l'effet de retard sur cette énergie de liaison (voir le chapitre 7). La méthode consiste à asservir le laser de photo-association sur une raie atomique, puis à le désaccorder à l'aide de modulateurs acousto-optiques (AOM).

La diode produisant le laser de photo-association est alors utilisée dans une configuration en tout point identique à celle du laser principal de ralentissement, refroidissement et détection des atomes. Ainsi, le laser de PA est caractérisé par un spectre d'émission de largeur environ 300 kHz. Son asservissement est réalisé, de la même manière que pour le laser principal, en rétro-agissant sur le courant d'alimentation, ainsi que sur la longueur de la cavité étendue. La précision avec laquelle on peut pointer la résonance atomique est limitée par la pression de gaz dans la cellule d'absorption saturée, ainsi que par la stabilité de l'intensité de la décharge RF qui produit des métastables dans cette cellule (voir le chapitre 2). Nous estimons que la fréquence du laser de photo-association est stable, et que sa mesure est exacte, à environ 0.3 MHz près.

Les fréquences accessibles sont limitées par la plage totale de fonctionnement des modulateurs acousto-optiques. Les cristaux utilisés (Crystal Technology) présentent une efficacité de diffraction non nulle dans la gamme [60 MHz; 150 MHz] avec un maximum au voisinage de 120 MHz. Montés en double passage, l'utilisation successive de trois d'entre eux permet d'atteindre toute fréquence entre + 800 et - 800 MHz autour d'une résonance atomique. Cependant le balayage ne peut être continu que “par morceaux” sur des plages d'au plus 50 MHz. Les ondes RF utilisées dans les AOM sont produites par des oscillateurs commandés en tension (VCO) d'une stabilité de l'ordre de 10 kHz. Leur fréquence peut être déterminée très précisément à l'aide d'un analyseur de spectre. La seule incertitude sur la mesure de fréquence réside dans la précision à laquelle la raie atomique est pointée dans la boucle d'asservissement du laser.

Nous avons ainsi pu mesurer très précisément la position des raies moléculaires $v = 1$ à $v = 4$ dans le puits 0_u^+ . Le niveau $v = 0$ de ce puits est quant à lui trop éloigné de l'asymptote ($\simeq -1.42$ GHz) pour être accessible par cette méthode, et il n'a pu être observé que par la méthode moins précise utilisant la cavité Fabry-Perot.

5.3.2 Détection calorimétrique des spectres

Signal de densité optique

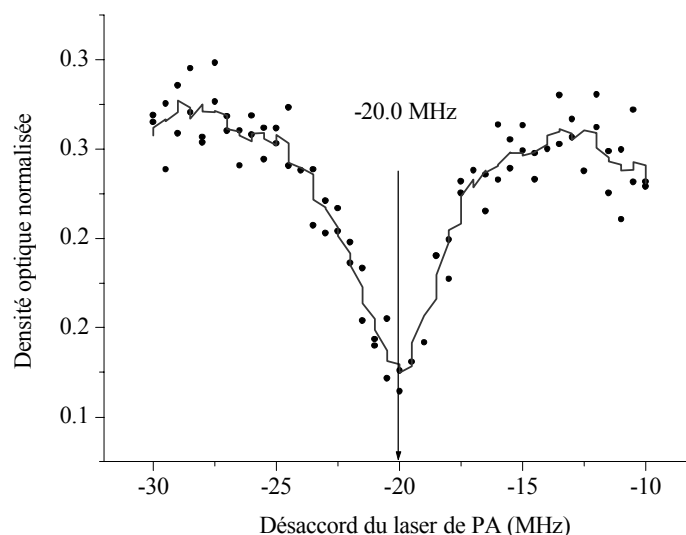


FIG. 5.7 — Exemple de spectre obtenu pour la raie correspondant à l'état lié $0_u^+, J=1, v=4$ en asservissant le laser de photo-association sur la raie atomique D_0 et en le désaccordant à l'aide de modulateurs acousto-optiques. La densité optique au centre du nuage est tracée en fonction du désaccord du laser de PA, par rapport à la raie D_0 . Chaque point est un nouveau nuage évaporé, illuminé par le laser de PA, puis détecté. La ligne continue est une moyenne glissante sur 5 points adjacents. La raie observée est de largeur 3 MHz, son centre peut être pointé à 0.1 MHz près, et l'erreur systématique estimée sur la fréquence mesurée est de moins de 0.3 MHz (voir le texte).

L'asservissement du laser de photo-association et l'utilisation d'AOM pour modifier sa fréquence permettent de réduire considérablement l'erreur systématique ainsi que les fluctuations sur le pointage des raies de photo-association. La figure 5.7 présente un exemple de raie observée par cette seconde méthode, dans le rouge de la raie atomique D_0 . En comparaison avec la figure 5.6, le balayage en fréquence est beaucoup plus étroit, mais la dispersion en fréquence est considérablement réduite, autorisant la détection de raies plus fines et le repérage de leur centre avec une précision de 0.1 MHz.

Ce second type de résultat expérimental permet une spectroscopie de haute résolution des états vibrationnels les plus proches des transitions atomiques. La stabilisation du laser de PA a permis d'augmenter notablement le rapport signal/bruit des spectres obtenus. En particulier, les raies moléculaires $v=1$ à 4 dans le rouge de D_0 (voir la figure 5.6) ont été abondamment étudiées par cette méthode. Une étude détaillée des spectres observés dans le rouge de D_0 est présentée au chapitre 7. En effet, la grande précision expérimentale obtenue par l'asservissement du laser de PA impose désormais de tenir compte de décalages produits par l'effet Zeeman au sein du piège magnétique, et par la température non nulle du gaz. Une étude systématique fine est alors nécessaire pour reproduire par le calcul les énergies de liaisons déterminées expérimentalement.

Mise en évidence du chauffage du nuage atomique

En réalité, les plus beaux signaux de détection sont obtenus en visualisant non pas la densité optique du nuage, ni même le nombre d’atomes dans le gaz, mais sa température. En effet, nous avons constaté que la chute de densité optique signalant l’existence d’un état lié moléculaire pouvait être engendrée essentiellement par une élévation de température du nuage plutôt que par une chute du nombre d’atomes dans le nuage. La figure 5.8 illustre ce propos. Sur cet exemple la densité optique chute de plus d’un facteur 2 lorsque le laser de PA a un désaccord voisin de -20 MHz (figure 5.8-a), bien que le nombre d’atomes soit en réalité peu affecté (figure 5.8-b). En revanche, la température du gaz est doublée (figure 5.8-c).

Ces signaux peuvent être interprétés de la façon suivante. La faible variation du nombre d’atomes indique que peu de molécules sont produites. En revanche, ces quelques molécules libèrent une énergie suffisante pour conduire à un chauffage spectaculaire du nuage. Des atomes piégés “chauds” produits par l’impulsion de PA peuvent échauffer le nuage pendant les quelques centaines de millisecondes que dure la décompression, juste avant la détection (voir le protocole expérimental, paragraphe 5.1.4). Ce chauffage a pour conséquence de diluer le gaz, et donc de diminuer sa densité optique. La mesure de température de gaz comme moyen de détection de la raie moléculaire constitue ce que nous avons appelé une détection “calorimétrique” des spectres de photo-association. Ce phénomène sera discuté quantitati-

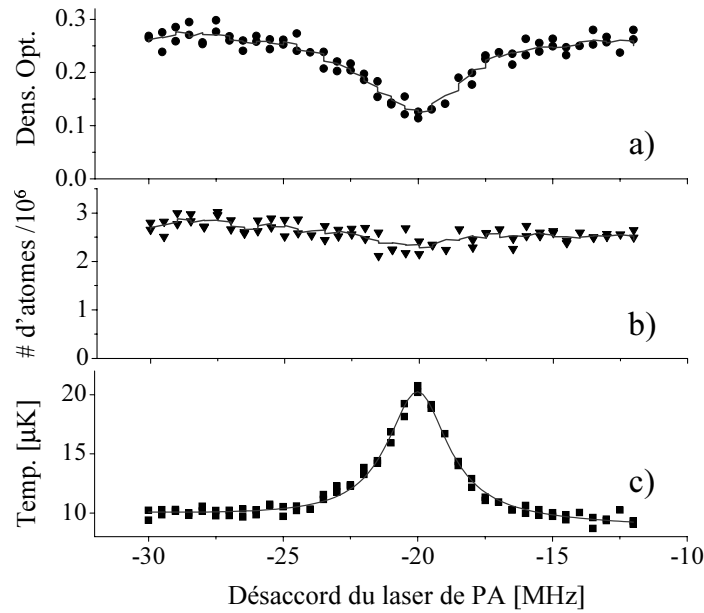


FIG. 5.8 – Exemple de signaux détectés après une impulsion de photo-association dans le rouge de D_0 , en fonction de la fréquence du laser de PA. Pour ce spectre, l’intensité de l’impulsion laser est de $\simeq I_{\text{sat}}/10$ et sa durée de 10 ms. La fréquence est donnée en MHz, par rapport à la raie atomique D_0 . a) Densité optique au centre du nuage, b) nombre total d’atomes, c) température du nuage en μK . Les courbes en traits continus sur les figures a et b sont des moyennes glissantes pour guider l’œil. Sur la figure c, les données sont ajustées par une lorentzienne de largeur 2.7 ± 0.3 MHz, présentée en trait continu.

vement au chapitre 7. Cette détection est beaucoup plus sensible, dans notre cas, qu'une détection plus classique de pertes d'atomes ou "trap loss".

Cependant, si l'intensité et/ou le temps d'exposition du laser de PA sont augmentés, des pertes d'atomes plus importantes peuvent être détectées. Alors, il est nécessaire de réduire le temps alloué à la décompression qui précède la détection, pour éviter que le nuage ne chauffe trop, et ne se dilue trop jusqu'à n'être quasiment plus détectable. Enfin, si l'intensité et/ou le temps d'exposition du laser de PA sont trop importants, les pertes non résonantes réduisent considérablement la densité optique du gaz en plus des pertes résonantes. Le rapport signal/bruit du spectre obtenu peut en être considérablement dégradé. Les pertes d'atomes maximales mesurées avec un rapport signal/bruit "acceptable" (*i.e.* de l'ordre de 5), avoisinent les 70 %.

Signalons enfin que ces signaux de chauffage ont été aussi observés dans le rouge de D_2 . En effet, les chutes de densité optique observées sur la figure 5.4 sont également accompagnées d'une élévation simultanée de la température de gaz.

Chapitre 6

Potentiels adiabatiques liés à $2^3S + 2^3P$

Lorsque le nuage d'atomes de He^* froids est illuminé par un laser à $1.083 \mu\text{m}$, des chutes importantes de densité optique peuvent être observées pour des fréquences bien déterminées du laser. Des spectres de raies ont ainsi été obtenus dans le rouge des transitions atomiques D_2 et D_0 . Nous n'avons tenté aucune expérience dans le rouge de D_1 où le même type de spectre est attendu, par manque de temps.

Cependant, aucune molécule n'a été observée directement dans notre expérience. En effet, aucun spectromètre de masse n'est présent qui puisse détecter avec certitude la présence de particules de masse double de celle de l'hélium. Aussi, l'interprétation de ces spectres repose uniquement sur la possibilité de les reproduire par le calcul. Parallèlement au travail expérimental, nous avons donc commencé de calculer les potentiels d'interaction entre un atome métastable et un atome excité 2^3P . Ces calculs sont exposés dans ce chapitre.

Dans le cadre de cette thèse, la description théorique des potentiels moléculaires se limite à la région des distances inter-nucléaires asymptotiquement grandes. Le chapitre s'ouvre sur une présentation d'ensemble du cadre théorique, qui consiste en un calcul perturbatif. L'hamiltonien électronique est décrit en détail. Il est écrit comme la contribution simultanée de l'interaction dipôle-dipôle résonante entre un atome métastable et un atome porté dans l'état 2^3P , ainsi que de la structure fine atomique. Cette approche asymptotique a été introduite par Movre et Pichler [123] en 1977, et appliquée depuis avec succès à l'étude de l'ensemble des molécules produites par photo-association d'atomes d'alcalins ultrafroids.

Les courbes de potentiel issues de la diagonalisation de l'hamiltonien électronique sont ensuite présentées. On remarque en particulier l'émergence de puits de potentiels "à purement longue portée", dont on illustre l'origine physique. Ces puits ont une partie répulsive qui se situe également dans la région des distances asymptotiquement grandes. Ils sont donc complètement déterminés dans le cadre de notre approche, et on peut calculer précisément les énergies propres des états liés qui s'y trouvent. Cependant, ils sont en nombre limité, et la plupart des puits de potentiels ne sont répulsifs qu'à courte distance.

La résolution précise de l'hamiltonien moléculaire à longue portée nécessite de tenir compte du couplage entre le mouvement des noyaux, et les degrés de liberté électroniques.

Dans le cadre d’une approche “adiabatique”, nous détaillons ensuite l’effet du mouvement des noyaux sur les courbes de potentiel précédemment déterminées. Des potentiels effectifs sont alors calculés.

L’ensemble de ces calculs, réalisés numériquement avec le logiciel *Mathematica 4.0*, permet d’interpréter très précisément les spectres de raies attribuées à des molécules à purement longue portée (chapitre 7). Il permet également d’identifier les raies observées dans le rouge de D_2 (chapitre 8), et attribuées à des molécules dont la partie répulsive du potentiel est à courte distance, c’est-à-dire, inconnue dans le cadre de cette thèse.

6.1 Cadre de la description théorique

6.1.1 Approche perturbative du problème

Position du problème

Le système étudié est la molécule diatomique d’hélium 4 constituée de deux noyaux sans spin et de quatre électrons. Il s’agit donc de déterminer les solutions stationnaires $|\psi_\alpha\rangle$ de l’équation de Schrödinger suivante:

$$\hat{H}|\psi_\alpha\rangle = (\hat{T}_n + \hat{T}_e + \hat{V} + \hat{H}_{rel})|\psi_\alpha\rangle = E_\alpha|\psi_\alpha\rangle \quad (6.1)$$

avec $\hat{T}_n = \sum_{k=1}^2 \frac{\hat{\mathbf{p}}_k^2}{2M}$, $\hat{T}_e = \sum_{i=1}^4 \frac{\hat{\mathbf{p}}_i^2}{2m}$, $\hat{V} = \hat{V}(\hat{\mathbf{r}}_k, \hat{\mathbf{r}}_i)$, et $\hat{H}_{rel} = \hat{H}_{rel}(\hat{\mathbf{r}}_i, \hat{\mathbf{s}}_i)$

L’hamiltonien ainsi écrit est la somme de quatre termes $\hat{T}_n$, $\hat{T}_e$, $\hat{V}$ et $\hat{H}_{rel}$ qui représentent respectivement, l’énergie cinétique des 2 noyaux, celle des 4 électrons, l’énergie potentielle d’interaction non relativiste de l’ensemble des 6 particules chargées, et les termes relativistes de l’hamiltonien, en fonction des positions $\hat{\mathbf{r}}_k$ des noyaux, $\hat{\mathbf{r}}_i$ des électrons, et des coordonnées de spin $\hat{\mathbf{s}}_i$ des 4 électrons.

Il s’agit d’un problème à 6 corps. Des méthodes de chimie quantique élaborées (voir par exemple [91]) permettent de résoudre ce problème de manière approchée. Cependant, la précision des résultats obtenus reste insuffisante pour, par exemple, en déduire une valeur précise de la longueur de diffusion a qui caractérise la collision froide de deux He^* , et qui dépend de manière très sensible de la profondeur du puits de potentiel (voir le chapitre 4).

Approche asymptotique

Lorsque la distance R séparant les deux noyaux est très grande, le système peut être considéré comme deux atomes quasiment indépendants, perturbés par l’interaction électrostatique $U(R)$ entre les distributions de charges associées aux deux atomes neutres. Cette interaction peut être décrite par son développement multi-polaire en puissances croissantes de $1/R$. Aux distances suffisamment grandes, on peut se limiter à l’ordre le plus bas en $1/R$, et $U(R)$ est alors l’interaction dipôle-dipôle en C_3/R^3 (voir le paragraphe 6.3). Cette approche perturbative consiste à écrire:

$$\hat{T}_e + \hat{V} \simeq \hat{H}_0(A) + \hat{H}_0(B) + \hat{U}(R),$$

où $\hat{H}_0(A)$ et $\hat{H}_0(B)$ sont les hamiltoniens non relativistes des atomes A et B indépendants non perturbés. Dans cette formulation, le terme $\hat{V}$ est séparé en deux contributions, l'une d'origine intra-atomique, qui décrit l'interaction électrons/noyau au sein de chacun des deux atomes, l'autre d'origine inter-atomique. La première est incluse dans $\hat{H}_0(A)$ et $\hat{H}_0(B)$, avec le terme d'énergie cinétique des électrons, et la seconde est $U(R)$. La description complète des atomes doit inclure leur structure fine $\hat{H}_{sf}(A)$ et $\hat{H}_{sf}(B)$. Elle constitue le terme $\hat{H}_{rel}$ de l'hamiltonien 6.1, qui peut alors être réécrit :

$$\hat{H} = \hat{T}_n + \hat{H}_0(A) + \hat{H}_0(B) + \hat{H}_{sf}(A) + \hat{H}_{sf}(B) + \hat{U}(R) \quad (6.2)$$

Signalons que cette description d'un système de deux atomes (avec chacun sa paire d'électrons) quasiment indépendants suppose que l'opérateur $\hat{T}_e$ de l'équation 6.1 a lui aussi été séparé en deux contributions. En effet, les 4 électrons de la molécule sont ici décrits comme deux paires d'électrons autour de leur propre noyau. Aussi l'opérateur $\hat{T}_e$ d'énergie cinétique des 4 électrons dans le centre de masse de la molécule a été séparé en : 1) l'énergie cinétique des deux paires d'électrons dans le repère lié au centre de masse de leur atome respectif, incluse dans $\hat{H}_0(A)$ et $\hat{H}_0(B)$, et 2) la contribution des électrons à l'énergie cinétique relative des deux atomes, ajoutée à $\hat{T}_n$. Ainsi, bien que la notation soit identique à celle de l'équation 6.1, l'opérateur $\hat{T}_n$ représente désormais l'énergie cinétique relative des deux centres de masses des atomes en interaction, et non plus des seuls noyaux.

Sous l'effet de l'interaction entre les deux atomes, les centres de masse des atomes ne sont plus des référentiels galiléens, et leur mouvement relatif va influencer l'état électronique. Cependant, en raison de leur grande différence de masse, la dynamique des électrons est beaucoup plus rapide que celle des noyaux. Cet effet peut donc être négligé en première approche. C'est l'approximation de Born-Oppenheimer¹. Cependant, compte tenu de la précision des spectres expérimentaux que nous souhaitons interpréter, cette approximation sera insuffisante, et l'influence du mouvement relatif des centres de masse devra être incluse dans les calculs.

Malgré l'importance de cette remarque, qui doit donc rester présente en mémoire, nous écrirons désormais "noyaux" pour désigner les centres de masses atomiques.

6.1.2 Le mouvement des noyaux

L'énergie cinétique des noyaux est écrite dans le référentiel associé au centre de masse de la molécule, assimilé au centre de masse des deux noyaux. En coordonnées sphérique, elle s'écrit :

$$\hat{T}_n(R, \theta, \varphi) = -\frac{\hbar^2}{m} \left(\frac{1}{R} \frac{\partial^2}{\partial R^2} R - \frac{\vec{\ell}^2}{\hbar^2 R^2} \right). \quad (6.3)$$

où m est la masse d'un atome d'hélium (noyau plus 2 électrons), et $\vec{\ell}$ le moment cinétique de rotation des noyaux. Signalons également que la masse réduite du système étant $m/2$, le

1. En toute rigueur la masse des électrons n'est pas incluse dans le mouvement relatif des noyaux dans le cadre usuel de l'approximation de Born-Oppenheimer. Ici, cependant, les molécules que nous décrivons sont particulières puisqu'elles sont en réalité des paires d'atomes quasiment indépendants. Il est donc naturel d'inclure la masse des électrons dans le mouvement relatif de ces atomes.

facteur $1/2$ apparaissant habituellement dans l'expression de l'énergie cinétique se simplifie ici.

Compte tenu du couplage, évoqué ci-dessus, entre les degrés de liberté électroniques et la rotation des noyaux, ℓ n'est pas un "bon" nombre quantique. En revanche, le moment cinétique total $\vec{J}$ de la molécule, somme de $\vec{\ell}$ et des moments cinétiques électroniques, est un bon nombre quantique, puisque la molécule est un système isolé, donc conserve son moment cinétique total. En écrivant $\hat{\ell}^2 = \hat{\mathbf{J}}^2 + (\hat{\ell}^2 - \hat{\mathbf{J}}^2)$, l'énergie cinétique des noyaux prend la forme (voir, par exemple [124]):

$$\hat{T}_n = -\frac{\hbar^2}{m} \left(\frac{1}{R} \frac{\partial^2}{\partial R^2} R \right) + \frac{\hat{\mathbf{J}}^2}{mR^2} + \hat{H}_C, \quad \text{avec} \quad \hat{H}_C = \frac{\hat{\ell}^2 - \hat{\mathbf{J}}^2}{mR^2}. \quad (6.4)$$

L'opérateur $\hat{H}_C$ regroupe les termes dit de "Coriolis" qui réalisent le couplage (négligé dans l'approximation de Born-Oppenheimer) entre la rotation des noyaux et les degrés de liberté électroniques.

6.1.3 Résolution de l'équation de Schrödinger

Puisque l'on considère le système de deux atomes perturbés par leur interaction, on choisit comme origine des énergies la valeur propre de $\hat{H}_0(A) + \hat{H}_0(B)$ qui correspond à un atome dans l'état 2^3S et l'autre dans l'état 2^3P . L'équation de Schrödinger s'écrit alors dans le référentiel moléculaire :

$$\left\{ -\frac{\hbar^2}{m} \left(\frac{1}{R} \frac{\partial^2}{\partial R^2} R \right) + \frac{\hat{\mathbf{J}}^2}{mR^2} + \hat{H}_C + \hat{H}_{sf}(A) + \hat{H}_{sf}(B) + \hat{U}(R) - E \right\} |\Psi_\alpha\rangle = 0. \quad (6.5)$$

La faible influence du mouvement des noyaux sur les degrés de liberté électroniques incite à traiter séparément les variables électroniques. De plus, la forme de l'opérateur $\hat{T}_n$ suggère également de séparer la variable R des variables orbitales. Ainsi, on recherche des solutions qui s'écrivent, en représentation $\{\vec{R}\}$ comme des sommes de produits de fonctions d'ondes électroniques $\Phi_\beta(R)$, vibrationnelles $u_\beta(R)/R$, et rotationnelles $\mathcal{R}_\beta(\theta, \phi)$, l'indice β représente un ensemble de nombres quantiques qu'on ne détaille pas pour l'instant.

Une base de fonctions d'ondes électroniques $\Phi_\beta(R)$ peut être obtenue en diagonalisant séparément la partie électronique $\hat{H}_e$ de l'hamiltonien:

$$\hat{H}_e |\Phi_\beta\rangle = \left(\hat{H}_{sf}(A) + \hat{H}_{sf}(B) + \hat{U}(R) \right) |\Phi_\beta\rangle = V_\beta(R) |\Phi_\beta\rangle \quad (6.6)$$

Les $V_\beta(R)$ sont alors les courbes de potentiel du problème où les noyaux sont considérés comme fixes. (L'équation 6.6 est la même que l'équation 6.5 où l'on pose $\hat{T}_n = \hat{0}$). Dans le cas qui nous intéresse, ces courbes de potentiel sont au nombre de 34, dont 20 sont dégénérées deux fois, soit 54. Le paragraphe 6.2 est consacré à la détermination de ces courbes de potentiel.

Nous écrivons alors la solution la plus générale de 6.5 sous la forme:

$$\langle \vec{R} | \Psi_\alpha \rangle = \sum_{\beta} \frac{u_{\beta}(R)}{R} \mathcal{R}_{\beta}(\theta, \phi) \Phi_{\beta}(R)$$

En multipliant 6.5 à gauche par les états propres électroniques $\langle \Phi_\alpha |$, on obtient, en représentation $\{\vec{R}\}$ le système d'équations couplées:

$$\left(-\frac{\hbar^2}{m} \frac{\partial^2}{\partial R^2} + \frac{\langle \Phi_\alpha | \hat{\mathbf{J}}^2 | \Phi_\alpha \rangle}{mR^2} + V_\alpha(R) - E \right) u_\alpha(R) \mathcal{R}_\alpha(\theta, \varphi) = \sum_\beta \left(\frac{2\hbar^2}{m} \langle \Phi_\alpha | \frac{\partial \Phi_\beta}{\partial R} \rangle \frac{\partial}{\partial R} + \frac{\hbar^2}{m} \langle \Phi_\alpha | \frac{\partial^2 \Phi_\beta}{\partial R^2} \rangle - \langle \Phi_\alpha | \hat{H}_C | \Phi_\beta \rangle \right) u_\beta(R) \mathcal{R}_\beta(\theta, \varphi) \quad (6.7)$$

Le membre de droite est une somme de termes sur toutes les valeurs possibles de β , incluant $\beta = \alpha$, qui décrit l'ensemble des couplages ro-vibrationnels. Ces termes rendent compte d'une transition possible d'un état électronique $V_\beta(R)$ à un autre, sous l'effet de la rotation et/ou vibration des noyaux. Le nombre d'équations est infini puisque la somme sur β s'étend *a priori* sur l'ensemble des spectres continu et discret: les fonctions $u(R)$ désignent aussi bien des états liés que des états de diffusion. Par exemple, la pré-dissociation désigne le couplage entre un état lié dans un potentiel $V_\alpha(R)$, et le continuum d'un ou plusieurs autres potentiels $V_\beta(R)$, sous l'effet des termes non diagonaux du membre de droite.

Nous présentons ci-dessous trois méthodes pour résoudre les équations (6.7), qui constituent trois degrés d'approximation différents.

L'approximation de Born-Oppenheimer

L'approximation de Born-Oppenheimer consiste à négliger tous les termes du membre de droite de (6.7). On détermine les énergies potentielles électroniques à noyaux fixes, puis le mouvement des noyaux est décrit dans les courbes de potentiel ainsi déterminées. Aucun couplage ro-vibrationnel ne traduit l'effet du mouvement des noyaux sur l'état électronique. Remarquons qu'en toute rigueur, l'approximation de Born-Oppenheimer consiste à calculer les potentiels électroniques en maintenant les noyaux fixes (et non les centres de masse des atomes comme ici, voir la discussion de la fin du paragraphe 6.1.1).

L'approximation adiabatique

L'approximation adiabatique consiste à ne conserver que les termes diagonaux du membre de droite. Le mouvement des noyaux et des électrons est toujours découplé, et l'état moléculaire est un état factorisé:

$$\langle \vec{R} | \Psi_\alpha \rangle = \frac{u_\alpha(R)}{R} \mathcal{R}_\alpha(\theta, \phi) \Phi_\alpha(R)$$

Par rapport à l'approximation de Born-Oppenheimer, le mouvement des noyaux est décrit par le même système d'équations radiales non couplées, mais le potentiel électronique $V_\alpha(R)$ est remplacé par le potentiel effectif:

$$V_\alpha^{eff}(R) = V_\alpha(R) - \frac{\hbar^2}{2\mu} \langle \Phi_\alpha | \frac{\partial^2 \Phi_\alpha}{\partial R^2} \rangle + \langle \Phi_\alpha | \hat{H}_C | \Phi_\alpha \rangle. \quad (6.8)$$

On remarque, en dérivant par rapport à R la relation $\langle \phi_\alpha | \phi_\alpha \rangle = 1$, que les termes diagonaux $\langle \Phi_\alpha | \frac{\partial \Phi_\alpha}{\partial R} \rangle$ sont nuls, ce qui justifie l'expression 6.8 donnée pour le potentiel effectif.

L'approche adiabatique donne des résultats satisfaisant lorsque la courbe de potentiel $V_\alpha^{eff}(R)$ considérée est suffisamment distante des autres courbes de potentiel correspondant aux autres états propres de l'hamiltonien électronique. À l'inverse si ces courbes se croisent en certaines valeurs de R , ou s'approchent suffisamment pour que la différence d'énergie entre deux états électroniques devienne comparable aux couplages ro-vibrationnels, alors ces couplages non diagonaux peuvent devenir importants et induire des transitions entre états électroniques adiabatiques. Dans ce cas, un calcul "multi-voie" est nécessaire.

Au cours de cette thèse, les calculs ont été menés dans le cadre de l'approximation adiabatique ("mono-voie"). C'est, tout d'abord, la façon la plus simple d'aborder le problème. De plus, dans le cas particulier de l'interprétation des dimères géants, elle donne des résultats excellents (voir le chapitre 7).

Le calcul multi-voie

Des méthodes numériques existent qui permettent de résoudre le système complet d'équations couplées (6.7) de manière systématique. La "méthode de grille" en est une [125, 126]. Ce type de calcul tient compte des termes non-diagonaux ou "non-adiabatiques" du membre de droite dans l'équation (6.7). Nous reviendrons au chapitre 7 sur la comparaison entre calcul multi-voie et approximation adiabatique, à propos de l'étude des dimères géants.

6.2 États électroniques moléculaires

6.2.1 Introduction

En physique moléculaire, la structure fine est habituellement une perturbation de l'état électronique. Ici, parce qu'on se limite aux distances asymptotiquement grandes, on ne s'intéresse pas à une molécule à proprement parler, mais plutôt à une paire d'atomes en interaction. Dans ce cas, la structure fine doit être considérée au même degré d'approximation que l'interaction entre les deux atomes, conformément au calcul mené initialement par Movre et Pichler [123] dans le cas d'alcalins.

Le point de départ des calculs développés ci-après est donc de considérer la somme $\hat{H}_{sf}(A) + \hat{H}_{sf}(B) + \hat{U}(R)$ comme une perturbation de $\hat{H}_0(A) + \hat{H}_0(B)$. Ainsi, les paragraphes 6.3.1 et 6.3.2 sont consacrés à l'écriture explicite de $\hat{U}(R)$ et de $\hat{H}_{sf}$, dans la base des états produits²:

$$\{|A : L, M_L, S, M_S\rangle \otimes |B : L', M_{L'}, S', M_{S'}\rangle\} \quad (6.9)$$

constituée par les états propres de $\hat{H}_0(A) + \hat{H}_0(B)$. Les états propres de l'hamiltonien électronique 6.6 sont des états moléculaire construits comme des combinaisons linéaires d'orbitales atomiques.

2. Les lettres majuscules apparaissant dans la formule 6.9 désignent les nombres quantiques atomiques.

6.2.2 Espace des états électroniques

Nous restreignons notre étude à une paire d'atomes asymptotiquement connectée à l'état produit $2^3S_1 + 2^3P_J$, où l'un des deux atomes vient d'absorber un photon. Désignons par (I) la situation asymptotique où le photon a été absorbé par l'atome A, qui est donc dans l'état P , alors que l'atome B est resté dans l'état S . L'espace des états électroniques peut être considéré comme l'espace produit de 3 moments cinétiques de norme 1, ayant chacun trois projections possibles. En effet, l'atome A (état P) est représenté par un spin 1, et un moment cinétique orbital 1, et l'atome B (état S) par un spin 1. L'espace produit est donc de dimension $3 \times 3 \times 3 = 27$. Cependant, il faut également considérer la situation (II) où le photon a été absorbé par l'atome B, laissant l'atome A dans l'état S . On dénombre également 27 possibilités pour l'état des trois moments cinétiques de la situation (II). Comme les deux situations existent, l'espace des états à considérer est de dimension $27+27=54$. Si les deux atomes étaient différents (molécule hétéronucléaire), on en resterait là. Mais comme les noyaux sont identiques, l'hamiltonien de la paire est invariant lorsqu'on réalise la symétrie centrale des électrons dans le centre de masse des noyaux. Ainsi, les états électroniques à considérer vont être des combinaisons linéaires des situations (I) et (II), qui seront désignées par u ou g selon que la fonction d'onde électronique change ou non de signe par cette opération de symétrie. Les situations (I) et (II), ainsi que leur combinaison linéaire sont illustrées schématiquement sur la figure 6.1.

L'espace des états électroniques est donc de dimension 54. Il peut être décrit par une base de 27 états u , et 27 états g . La construction des états propres moléculaires, à partir des produits d'orbitales atomiques est détaillée dans l'annexe C.

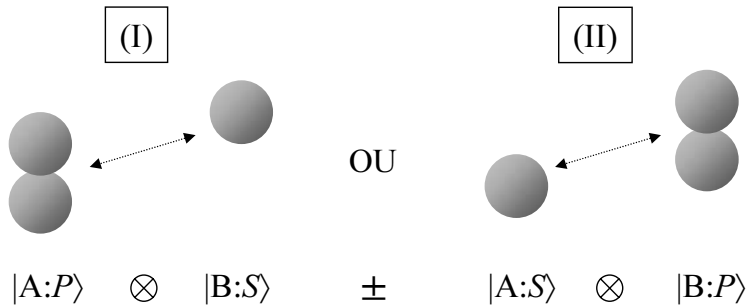


FIG. 6.1 – Illustration de la propriété u/g d'un état électronique moléculaire connecté asymptotiquement à $2^3S + 2^3P$. Les sphères constituent la représentation usuelle des orbitales électroniques S et P . Les situations asymptotiques (I) et (II) sont également possibles après l'absorption du photon par l'un des deux atomes. L'hamiltonien étant invariant selon l'inversion i (symétrie centrale des électrons par rapport au centre de masse des noyaux), ses états propres sont construits comme des combinaison linéaires de (I) et (II) pour être aussi des états propres de i avec les valeurs propres ± 1 qui définissent le nombre quantique moléculaire g/u .

6.2.3 Nombres quantiques moléculaires

Dans un ensemble diatomique [104] en l'absence de rotation, le moment cinétique $\vec{L}$ de l'ensemble des électrons, supposés sans spin pour l'instant, n'est pas une constante du mouvement. En effet, le champ électrique internucléaire possède une symétrie axiale. Dans ce champ, seule la projection M_L de $\vec{L}$ sur l'axe moléculaire est conservée. De plus, dans un champ électrique, inverser le mouvement de tous les électrons ne change pas l'énergie du système, mais change M_L en $-M_L$. Pour caractériser les états électroniques d'une molécule diatomique, on introduit donc le nombre quantique $\Lambda = |M_L|$. Ce nombre peut prendre toute valeur entière entre 0 et L , chaque valeur étant dégénérée deux fois ($-\Lambda$ et $+\Lambda$), exceptée $\Lambda = 0$.

Si l'on inclut maintenant le spin des électrons à la description moléculaire, on est amené à introduire le moment cinétique de spin total $\vec{S}$ des électrons. Pour les états moléculaires tels que $\Lambda \neq 0$, le mouvement orbital des électrons produit un champ magnétique non nul le long de l'axe moléculaire, et $\vec{S}$ acquiert un mouvement de précession autour de cet axe. On peut alors définir sa projection Σ sur l'axe moléculaire, qui peut prendre $2S + 1$ valeurs : $-S, -S + 1, \dots, S - 1, S$. En revanche, le cas d'un état orbital $\Lambda = 0$ est particulier. L'axe moléculaire ne représente *a priori* rien de particulier pour $\vec{S}$, et Σ n'est pas un nombre quantique pertinent.

Les états moléculaires électroniques sont aussi caractérisés par leurs propriétés de symétrie. En effet, l'hamiltonien décrivant l'énergie d'un système diatomique constitué de deux noyaux identiques est invariant sous chacune des deux opérations suivantes:

- 1) Inversion i ou symétrie centrale par rapport au centre du segment reliant les deux noyaux, dont les valeurs propres $+1$ et -1 sont notées g (*gerade*) et u (*ungerade*), respectivement.
- 2) Réflexion σ ou symétrie par rapport à tout plan contenant l'axe moléculaire, dont les valeurs propres $+1$ et -1 sont notées $+$ et $-$, respectivement, et désignent la *parité* de l'état électronique.

Les deux nombres quantiques u/g et $\pm$ vont donc être utilisés pour désigner les états propres du système. Nous avons déjà discuté la symétrie u/g au paragraphe 6.2.2, et mentionné la règle de sélection $g \leftrightarrow u$ au chapitre 4, paragraphe 4.3.2. Cette règle de sélection est capitale dans nos expériences. En effet, dans le piège magnétique, le nuage est polarisé de spin, et l'état électronique initial ($S + S$) est l'état $^5\Sigma_g^+$. Donc, les seuls états accessibles par photo-association sont des états u .

La réflexion σ (dans un plan contenant l'axe moléculaire) d'un état $\Lambda \neq 0$, change Λ en $-\Lambda$. Comme l'hamiltonien est invariant par cette symétrie, ces deux états ont la même énergie. Toutes les valeurs propres caractérisées par $\Lambda \neq 0$ sont donc dégénérées deux fois. En revanche, un état électronique Σ est inchangé dans cette symétrie et il est noté Σ^+ ou Σ^- selon que la fonction d'onde correspondante est multipliée par $+1$ ou par -1 par cette opération.

6.2.4 États propres électroniques dans les cas limites de Hund

Les cas de Hund désignent des cas limites où un couplage domine sur les autres au sein de la molécule [104]. Selon les cas, les “bons” nombres quantiques sont différents, ainsi que les états propres de l’hamiltonien électronique correspondant.

Le cas (a) de Hund

Le cas (a) de Hund désigne un type de couplage pour lequel le moment cinétique orbital électronique $\vec{L}$ est très faiblement couplé aux autres moments cinétiques $\vec{S}$ (interaction de structure fine), ou $\vec{\ell}$ (rotation des noyaux). Par conséquent, la dynamique des électrons est essentiellement gouvernée par le champ électrique des noyaux, et $\vec{L}$ est fortement couplé à l’axe moléculaire. Le nombre quantique Λ est alors un “bon nombre quantique”. Il s’agit d’un couplage analogue au couplage $(\vec{L}, \vec{S})$ décrit au sein des atomes. La convention établie pour désigner ces états moléculaires est $^{2S+1}\Lambda_{u/g}^{\pm}$, les valeurs de $\Lambda = 0, 1, 2, \dots$ étant notées par les lettres $\Sigma, \Pi, \Delta, \dots$ de manière analogue à la convention établie pour les atomes.

Remarquons que dans le cas d’une molécule sans rotation, la projection Ω de $\vec{J}_e = \vec{L} + \vec{S}$ sur l’axe moléculaire est aussi un bon nombre quantique, puisque $\vec{S}$ est conservé.

Dans le cadre de notre approche perturbative, le cas (a) de Hund est le cas limite où la partie relativiste de l’hamiltonien défini par l’équation 6.6 est négligeable:

$$\hat{H}_e \approx \hat{U}(R)$$

Cette limite est approchée aux petites distances où l’interaction dipôle-dipôle en $1/R^3$ domine devant l’interaction de structure fine. La construction de la base des états propres du cas (a) de Hund $\{^{2S+1}\Lambda_{u/g}^{\pm}\}$, à partir des états produits d’une paire d’atomes $2^3S + 2^3P$ est détaillée dans l’annexe C.

Le cas (c) de Hund

Par définition, le cas (c) de Hund désigne une situation où le couplage spin-orbite est plus important que le couplage de $\vec{L}$ à l’axe moléculaire, ou à $\vec{\ell}$. Les projections sur l’axe moléculaire de $\vec{L}$ et $\vec{S}$ ne sont donc plus des bons nombres quantiques. On introduit alors $\vec{J}_e = \vec{L} + \vec{S}$, le moment cinétique total de l’ensemble des électrons. Intervient ensuite le couplage de $\vec{J}_e$ avec l’axe moléculaire, et Ω est défini comme la projection de $\vec{J}_e$ sur l’axe moléculaire. Là aussi les valeurs opposées de Ω conduisent à des configurations de même énergie, et on ne retient que sa valeur absolue. Chaque état $\Omega \neq 0$ est donc dégénéré deux fois. Dans le cas (c) de Hund, Ω est un bon nombre quantique, et les états moléculaires sont alors désignés $\{\Omega_{u/g}^{\pm}\}$ et Ω est noté $0, 1, 2, \dots$

Dans la situation qui nous occupe, à très grande distance interatomique, l’interaction électrostatique inter-atomique devient négligeable devant l’interaction de structure fine au sein des atomes, et l’hamiltonien défini par l’équation 6.6 peut s’écrire :

$$\hat{H}_e \approx \hat{H}_{sf}(A) + \hat{H}_{sf}(B) .$$

Les états propres de cet hamiltonien constituent la base du cas (c) de Hund.

6.2.5 Récapitulatif

TAB. 6.1 – Récapitulatif des notations utilisées pour la construction des états électroniques. Les vecteurs sont donnés avec leur projection sur l'axe moléculaire. Les valeurs sont données pour deux atomes dans l'état $2^3S + 2^3P$. Remarquons que la notation Σ est utilisée avec deux significations différentes: elle représente la projection de $\vec{S}$ sur l'axe moléculaire et elle définit aussi les états caractérisés par une projection $\Lambda = 0$ de $\vec{L}$.

moment cinétique angulaire électronique	$\vec{L} = 1, \quad \Lambda = 0, \pm 1 $
moment cinétique de spin électronique	$\vec{S} = 0, 1, 2, \quad \Sigma = 0, \pm 1, \pm 2$
moment cinétique électronique total	$\vec{J}_e = \vec{S} + \vec{L}, \quad \Omega = 0, \pm 1 , \pm 2 , \pm 3 $
moment cinétique orbital des noyaux	$\vec{\ell}, \quad 0^a$
moment cinétique total	$\vec{J} = \vec{J}_e + \vec{\ell}, \quad \Omega^a$
Propriété vis à vis de la réflexion σ	$\pm$
Propriété vis à vis de l'inversion i	u, g
Base du cas (a) de Hund ($\hat{U}(R)$ dominant)	$2S+1 \Lambda_{g,u}^{\pm}, \quad \Lambda = \Sigma, \Pi$
Base du cas (c) de Hund ($\hat{H}_{sf}$ dominant)	$\Omega_{g,u}^{\pm}, \quad \Omega = 0, 1, 2, 3$

^a Par définition $\vec{\ell}$ est orthogonal à l'axe moléculaire, et n'a donc pas de projection sur cet axe.

6.3 Écriture explicite de l'hamiltonien électronique

La première étape du calcul consiste à diagonaliser la seule partie électronique de l'hamiltonien:

$$\hat{H}_e = \hat{H}_{sf}(A) + \hat{H}_{sf}(B) + \hat{U}(R)$$

Nous devons tout d'abord donner l'expression explicite des différents termes.

6.3.1 L'interaction dipôle-dipôle résonante

L'interaction à grande distance $U(R)$ entre deux atomes d'hélium est une interaction électrostatique entre les deux distributions de charges associées aux deux atomes électriquement neutres. À l'ordre le plus bas en $1/R$, il s'agit de l'interaction dipôle-dipôle en $1/R^3$. Si l'un des deux atomes est porté dans son état excité P , l'autre restant dans l'état métastable S , l'interaction dipôle-dipôle est non nulle au premier ordre, puisque le photon réémis par l'atome P peut être absorbé de manière résonante par l'atome S . Il s'agit de l'interaction dipôle-dipôle résonante.

Le calcul quantique complet de l'interaction dipôle-dipôle résonante (incluant la quantification du champ électro-magnétique) est dû à McLone et Power [119] (1964), et à Stephen [120] (1964). $\hat{U}(R)$ s'écrit en fonction des opérateurs dipôles électriques $\hat{D}_1$ et $\hat{D}_2$, en notant

z l'axe moléculaire:

$$\hat{U}(R) = \frac{1}{4\pi\epsilon_0 R^3} \{ f(R) (\hat{D}_{1x}\hat{D}_{2x} + \hat{D}_{1y}\hat{D}_{2y}) - 2g(R) \hat{D}_{1z}\hat{D}_{2z} \}, \quad (6.10)$$

$$\text{avec } \begin{cases} f(R) = (1 - k^2 R^2) \cos(kR) + kR \sin(kR) \\ g(R) = \cos(kR) + kR \sin(kR) \end{cases} \quad (6.11)$$

L'expression 6.10 est identique à la formulation classique qui peut être obtenue par un calcul simple reporté à l'annexe C. Les facteurs $f(R)$ et $g(R)$ rendent compte des effets de retard, dus à la vitesse finie de propagation de la lumière. Ils tendent vers 1 lorsque les effets de retard deviennent négligeables, c'est-à-dire pour $kR \rightarrow 0$, ce qui correspond à des distances inter-atomiques petites devant la longueur d'onde réduite $\lambda/2\pi \simeq 3 \times 10^3 a_0$. Nous verrons que les molécules qui nous intéressent peuvent avoir des distances inter-nucléaires moyennes de quelques centaines de a_0 à $1000 a_0$, pour lesquelles, compte tenu de la précision requise pour interpréter les spectres expérimentaux, les effets de retard ne sont plus négligeables.

Nous avons reporté en annexe C le calcul explicite des éléments de matrice de $\hat{U}(R)$. Il est alors facile de vérifier que l'opérateur $\hat{U}(R)$ est diagonal dans la base $\{|^{2S+1}\Lambda_{u/g}\rangle\}$ du cas (a) de Hund (voir l'annexe C). En effet, ces états sont des combinaisons linéaires *gerade* et *ungerade* des états produits $|\text{atome A: } S\rangle \otimes |\text{atome B: } P\rangle$ et $|\text{atome A: } P\rangle \otimes |\text{atome B: } S\rangle$. L'opérateur $\hat{U}(R)$ "transporte" l'excitation de l'atome B à l'atome A . Cette notion de symétrie par "échange d'excitation" a été introduite par Dashevskaya *et al.* [127] (1969) et conduit à une représentation imagée qui donne une interprétation physique simple des états propres de $\hat{U}(R)$. En effet, les états propres de $\hat{U}(R)$ se comportent comme deux dipôles en interaction suivant le schéma du tableau 6.2. Il existe quatre énergies propres possibles correspondant à deux dipôles en répulsion ou en attraction, selon qu'ils sont disposés de façon symétrique ou antisymétrique par rapport au centre de masse de la paire.

TAB. 6.2 – Représentation schématique des états propres de l'opérateur $\hat{U}(R)$ sous forme d'une paire de dipôles en interaction.

États électroniques $^{2S+1}\Lambda_{u/g}$	Représentation schématique des dipôles	Valeur propre correspondante
$^1\Sigma_g^+, ^3\Sigma_u^+$ et $^5\Sigma_g^+$	$\rightarrow \quad \leftarrow$	$+2g(R)C_3/R^3$
$^1\Sigma_u^+, ^3\Sigma_g^+$ et $^5\Sigma_u^+$	$\rightarrow \quad \rightarrow$	$-2g(R)C_3/R^3$
$^1\Pi_g, ^3\Pi_u$ et $^5\Pi_g$	$\uparrow \quad \downarrow$	$-f(R)C_3/R^3$
$^1\Pi_u, ^3\Pi_g$ et $^5\Pi_u$	$\uparrow \quad \uparrow$	$+f(R)C_3/R^3$

Les courbes de potentiels de l'interaction dipôle-dipôle résonante sont donc proportionnelles à $\pm C_3/R^3$. Le coefficient C_3 s'exprime simplement en fonction de l'élément de matrice $d = \langle 2^3P | \hat{D}_z | 2^3S \rangle$ de l'opérateur moment dipolaire électrique $\hat{D}_z$ de l'atome isolé (voir l'annexe C):

$$C_3 = \frac{|d|^2}{4\pi\epsilon_0} = \frac{3}{4} \hbar\Gamma \left(\frac{\lambda}{2\pi} \right)^3, \quad (6.12)$$

avec ϵ_0 la permittivité du vide, Γ le taux de désexcitation radiative de l'état 2^3P , et λ la longueur d'onde.

La valeur exacte de λ pour la transition $2^3S \leftrightarrow 2^3P$ dépend du sous niveau de structure fine considéré pour le multiplet 2^3P . Compte tenu du faible écart de structure fine ($\simeq 30$ GHz) qui caractérise ce multiplet, nous choisissons pour λ une valeur moyenne $\lambda = 1083.3$ nm. Cette valeur est égale à la longueur d'onde de chacune des trois transitions D_0 , D_1 et D_2 dans le vide à moins de 0.1 nm près. D'autre part, la valeur numérique de Γ peut être déduite des calculs théoriques très précis réalisés pour la force d'oscillateur de la transition $2^3S \leftrightarrow 2^3P$, ainsi que de λ^2 [40]. Compte tenu de la barre d'erreur de 0.1 nm sur λ , on en déduit $\Gamma = 2\pi \times (1.6248 \pm 0.0003)$ MHz. Enfin, la formule 6.12 donne pour C_3 la valeur: $C_3 = 6,405$ en unités atomiques³. C'est cette valeur que nous utilisons dans les calculs présentés ci-après. Compte tenu de l'erreur sur λ , l'erreur relative sur la valeur théorique de C_3 est de 5×10^{-4} . En toute rigueur, l'écart de longueur d'onde entre les différents niveaux de structure fine devrait être pris en compte (voir par exemple [128], pour le cas du Césium). Cependant, le faible écart entre les niveaux de structure fine pour He 2^3P rend notre approximation suffisamment bonne pour interpréter nos données, ainsi que le montre le chapitre 7.

6.3.2 Description de la structure fine

Ce paragraphe décrit l'expression utilisée pour $\hat{H}_{sf}$ qui désigne la structure fine *atomique*.

Les différents termes que l'on peut identifier dans l'hamiltonien relativiste de l'atome d'hélium sont décrits par Bethe et Salpeter [129]. Parmi ces termes, seule l'interaction spin-orbite (de chaque électron) et l'interaction magnétique dipôle-dipôle entre les spins des deux électrons contribuent à lever la dégénérescence associée aux différents termes spectraux obtenus par une description non relativiste. Les écarts de structure fine sont donc entièrement décrits par ces deux interactions.

Des calculs *ab initio* approchés montrent qu'en première approximation, ces deux termes s'écrivent simplement en fonction du moment cinétique orbital total $\vec{L}$ et du spin total $\vec{S}$ des deux électrons [129]. Ici, $\vec{L}$ et $\vec{S}$ désignent donc les nombres quantiques atomiques. Alors l'interaction spin-orbite est proportionnelle à $\vec{L} \cdot \vec{S}$. De même, la contribution de l'interaction spin-spin à la position relative des niveaux de structure fine ne s'écrit qu'en fonction de L^2 , S^2 , $\vec{L} \cdot \vec{S}$ et $(\vec{L} \cdot \vec{S})^2$. Ainsi, pour un terme spectral donné, en l'occurrence 2^3P , on peut rendre compte de la position relative des sous-niveaux de structure fine par la seule expression

$$H_{sf} = \alpha \vec{L} \cdot \vec{S} + \beta (\vec{L} \cdot \vec{S})^2.$$

Dans notre approche nous adoptons donc cette forme pour l'hamiltonien de structure fine, mais les constantes α et β sont déduites *phénoménologiquement* des écarts de fréquence mesurés Δ_{01} et Δ_{12} entre les niveaux de structure fine du terme spectral 2^3P d'un atome d'hélium isolé [38]:

$$\begin{cases} \Delta_{01} = \langle \alpha \vec{L} \cdot \vec{S} + \beta (\vec{L} \cdot \vec{S})^2 \rangle_{J=0} - \langle \alpha \vec{L} \cdot \vec{S} + \beta (\vec{L} \cdot \vec{S})^2 \rangle_{J=1} = h \times 29.616950 \text{ GHz} \\ \Delta_{12} = \langle \alpha \vec{L} \cdot \vec{S} + \beta (\vec{L} \cdot \vec{S})^2 \rangle_{J=1} - \langle \alpha \vec{L} \cdot \vec{S} + \beta (\vec{L} \cdot \vec{S})^2 \rangle_{J=2} = h \times 2.291175 \text{ GHz} \end{cases}$$

3. En unités atomiques, l'unité d'énergie est le Hartree, qui est le double de l'énergie d'ionisation de l'atome d'hydrogène: 1 Hartree $\simeq 2 \times 13.605$ eV, et l'unité de longueur est le Bohr, $a_0 \simeq 0.0529177$ nm.

On en déduit alors:

$$\alpha = -\frac{\Delta_{12}}{2\hbar^2} \quad \text{et} \quad \beta = \frac{2\Delta_{01} - \Delta_{12}}{6\hbar^4}$$

L'expression de H_{sf} ainsi obtenue est utilisée pour calculer les potentiels d'interaction à grande distance entre He 2^3S et He 2^3P .

6.4 Potentiels moléculaires $2^3S - 2^3P$, dans l'approximation des noyaux fixes

Nous décrivons maintenant les états propres de l'hamiltonien électronique $\hat{H}_e$.

6.4.1 Diagonalisation de $\hat{H}_e$

L'hamiltonien électronique $\hat{H}_e$ est écrit sous forme d'une matrice de dimension 54 dans la base des états produits de deux atomes indépendants, donnée par l'expression 6.9. Ensuite le changement de base vers la base des états propres du cas (a) de Hund est effectué à l'aide de la formule C.1 de l'annexe C. La matrice est alors diagonale par blocs, en deux blocs de 27 correspondant aux états u d'une part, et g d'autre part.

Au sein de chaque sous-bloc, des termes non diagonaux provenant de l'hamiltonien de structure fine réalisent des couplages entre les différents états propres de l'interaction dipôle-dipôle résonante. Le nombre quantique Λ (projection de $\vec{L}$ sur l'axe moléculaire) n'est donc plus un bon nombre quantique. En revanche, dans l'approximation des noyaux fixes, le nombre quantique Ω reste un bon nombre quantique. Chaque bloc u/g peut donc à son tour être diagonalisé par bloc, chaque sous-bloc correspondant à un sous-espace de valeur Ω fixée. Les sous-espaces $\Omega = 1, 2, 3$ conduisent à des potentiels toutes dégénérés deux fois (correspondant à Ω et $-\Omega$). En revanche, pour les sous-espaces $\Omega = 0_{u/g}$, cette double dégénérescence n'existe pas car les états de parité opposée (+ ou -) ont une énergie différente. Finalement, les matrices à diagonaliser sont au plus de dimension 6.

6.4.2 Existence des puits de potentiel à purement longue portée

À titre d'illustration, considérons le cas particulier du sous-espace 0_u^+ . Il est de dimension 4 et, dans l'approximation des noyaux fixes, ces quatre états ne sont couplés à aucun autre. Si l'on néglige la structure fine, les quatre courbes de potentiel correspondantes ont toute la même asymptote ($2^3S + 2^3P$), et correspondent aux valeurs propres de l'interaction dipôle-dipôle, dépendant de R (figure 6.2-a). Selon l'orientation relative des deux dipôles, ces courbes sont soit attractives, soit répulsives (voir le tableau 6.2); deux d'entre elles sont identiques. Les quatre états propres associés sont quatre vecteurs purs de la base du cas (a) de Hund.

La prise en compte de la structure fine atomique introduit un couplage entre ces courbes de potentiel. On peut séparer arbitrairement les éléments de matrice de structure fine en deux types, de manière à illustrer l'origine physique des courbes de potentiel résultantes. Si l'on introduit partiellement, dans un premier temps, les couplages de structure fine au sein du sous-espace des courbes de potentiel *attractives* d'une part, et du sous-espace des courbes

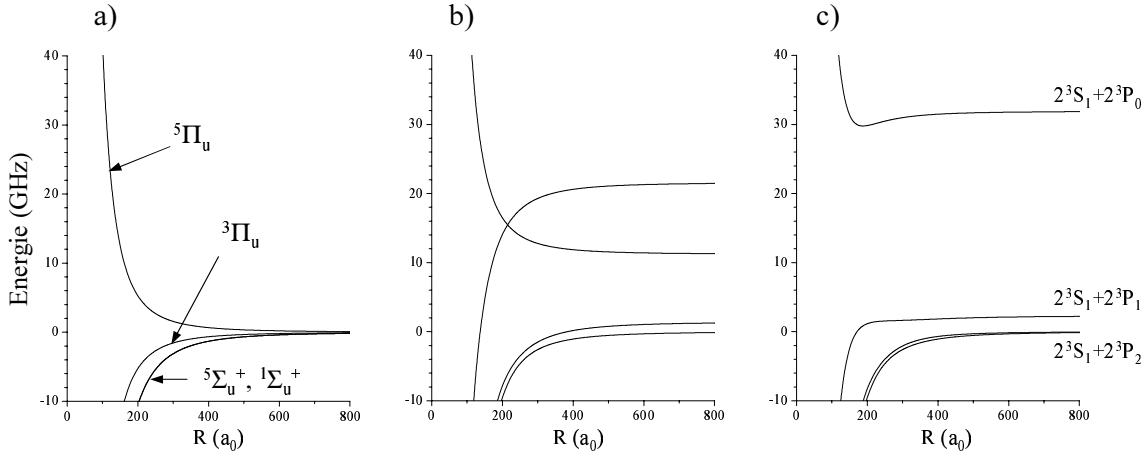


FIG. 6.2 — Illustration des effets conjoints de l'interaction dipôle-dipôle et du couplage de structure fine sur le sous-espace 0_u^+ de dimension 4.

- a) Le couplage de structure fine est négligé. Les courbes de potentiels sont les valeurs propres de l'interaction dipôle-dipôle correspondant aux quatre états propres $^5\Pi_u$, $^3\Pi_u$, $^5\Sigma_u^+$, $^1\Sigma_u^+$ (cas (a) de Hund).
- b) Les termes de structure fine sont introduits au sein du faisceau de courbes attractives d'une part, et répulsives d'autre part, en omettant les termes couplant ces deux sous-espaces entre eux; un croisement apparaît.
- c) Les autres termes de structure fine (négligés jusqu'alors) sont inclus, conduisant à un couplage entre le sous-espace des états attractifs et celui des états répulsifs. Un anti-croisement est responsable de l'existence d'un puits à purement longue portée, connecté à l'asymptote $2^3S_1 + 2^3P_0$.

de potentiel *répulsives* d'autre part, un croisement apparaît entre un potentiel attractif et un autre répulsif (figure 6.2-b). Remarquons que les termes de structure fine omis ici sont du même ordre de grandeur que ceux qui ont été inclus. Il ne s'agit donc pas d'une approche perturbative, et les quatre asymptotes qui apparaissent n'ont pas de sens physique bien défini. Enfin si l'on “branche” les couplages fins “non diagonaux” entre les sous-espaces des états attractifs et répulsifs, un *anti-croisement* apparaît (figure 6.2-c). Les deux asymptotes correspondant aux deux potentiels qui se croisaient, se repoussent, et les trois asymptotes attendues apparaissent. À distance infinie, l'interaction dipôle-dipôle s'annule et les quatre potentiels sont associés à quatre vecteurs purs de la base du cas (c) de Hund.

Le puits de potentiel apparaît donc comme le résultat de l'anti-croisement, produit par l'interaction de structure fine atomique, entre deux courbes d'interaction dipôle-dipôle à *longue portée*. Ainsi la partie répulsive elle-même de ce puits est décrite par une interaction à longue portée, c'est un puits de potentiel à “purent longue portée”. Dans l'image de deux dipôles en interaction exposée au tableau 6.2, l'orientation relative des dipôles se trouve changée par l'interaction de structure fine au sein des atomes, d'une configuration répulsive à courte distance, à une configuration attractive aux grandes distances. Ce changement d'orientation relative s'opère au voisinage de la distance inter-atomique R_X à laquelle les deux types d'interactions (dipôle-dipôle et structure fine) sont du même ordre de grandeur. Typiquement, $h \times 30 \text{ GHz} = C_3/R_X^3$ conduit à $R_X \simeq 10^2 a_0$, ce qui explique l'ordre de grandeur de la position du minimum du puits de potentiel à purent longue portée.

Ainsi, l'état électronique change avec la distance inter-nucléaire. À la distance interatomique typique à laquelle une paire d'atomes He^* absorbe un photon dans nos expériences, l'état électronique est quasiment un état pur du cas (c) de Hund, soit, dans le cas général, une combinaison linéaire d'états singulets, triplets et quintuplets. Lorsque la distance interatomique diminue, le caractère électronique de la paire change pour devenir un état pur du cas (a) de Hund à courte distance. Ce constat se généralise bien sûr à tous les états électroniques connectés aux asymptotes $2^3S + 2^3P$.

6.4.3 Sous-Espace *ungerade*

La diagonalisation de tous les blocs correspondant à chaque valeur de $\Omega_{u/g}^\pm$ peut se faire de la même façon. Dans le sous-espace *ungerade* on dénombre 3 puits de potentiel à purement longue portée (voir la figure 6.3). Les autres puits de potentiels ont une partie répulsive qui n'apparaît qu'à très courte distance, et n'est donc pas décrite par notre approche. Les 7 courbes correspondant aux sous-espaces 0_u^+ et 0_u^- sont non dégénérées, et les 10 courbes représentant les espaces 1_u , 2_u , 3_u sont toutes doublement dégénérées.

6.4.4 Sous-Espace *gerade*

La figure 6.4 présente les courbes de potentiel obtenues en diagonalisant $\hat{H}_e$ au sein du sous-espace *gerade*. On distingue deux puits 1_g à purement longue portée, ainsi qu'un double puits, 1_g également. Aucun état *gerade* n'est accessible depuis l'état initial $^5\Sigma_g^+$. C'est la raison pour laquelle nous ne discuterons plus ces états dans la suite de ce manuscrit.

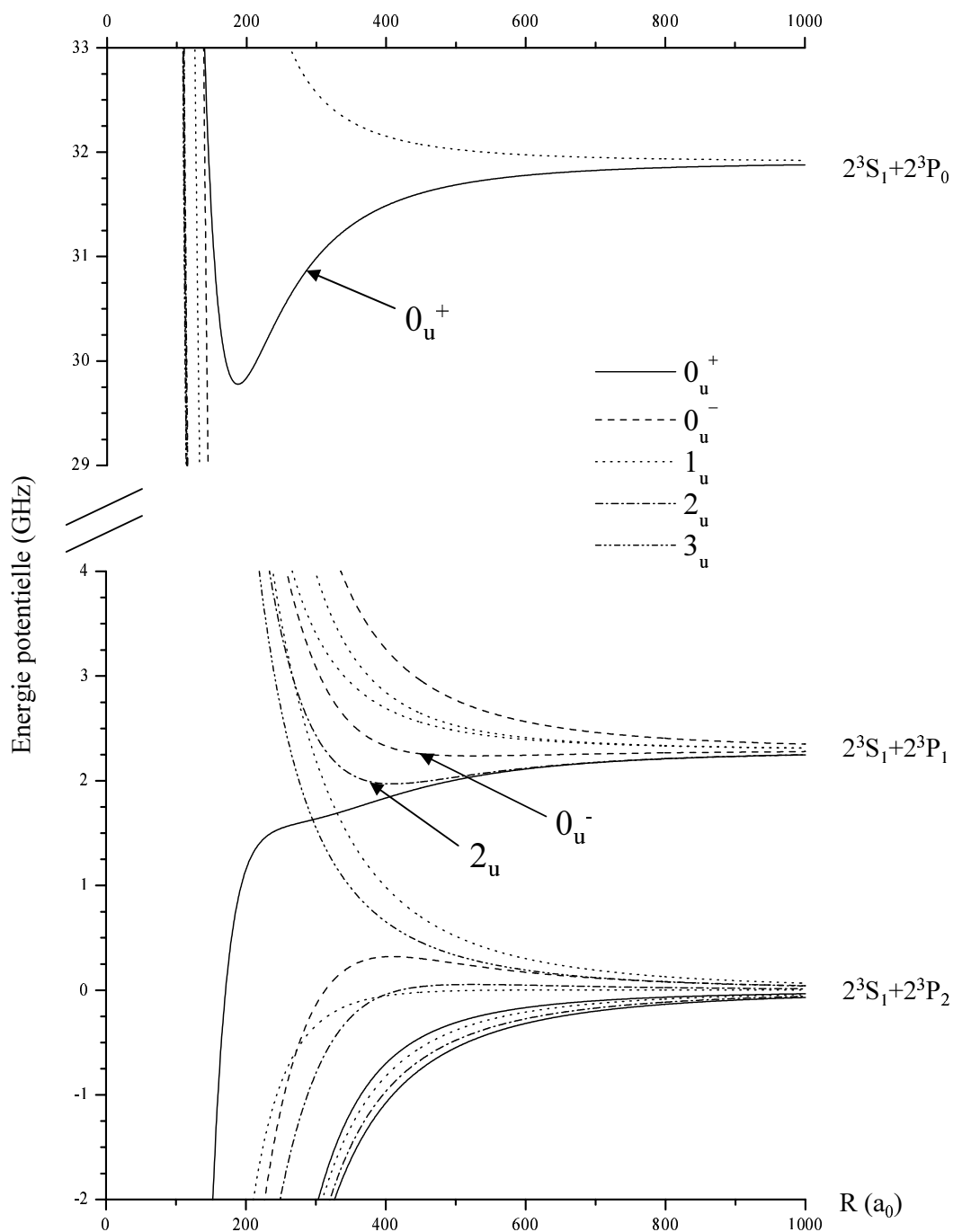


FIG. 6.3 – Potentiels ungerade calculés dans l'approximation des noyaux fixes. On distingue trois puits de potentiels à purement longue portée appartenant aux sous-espaces 0_u^+ , 0_u^- et 2_u .

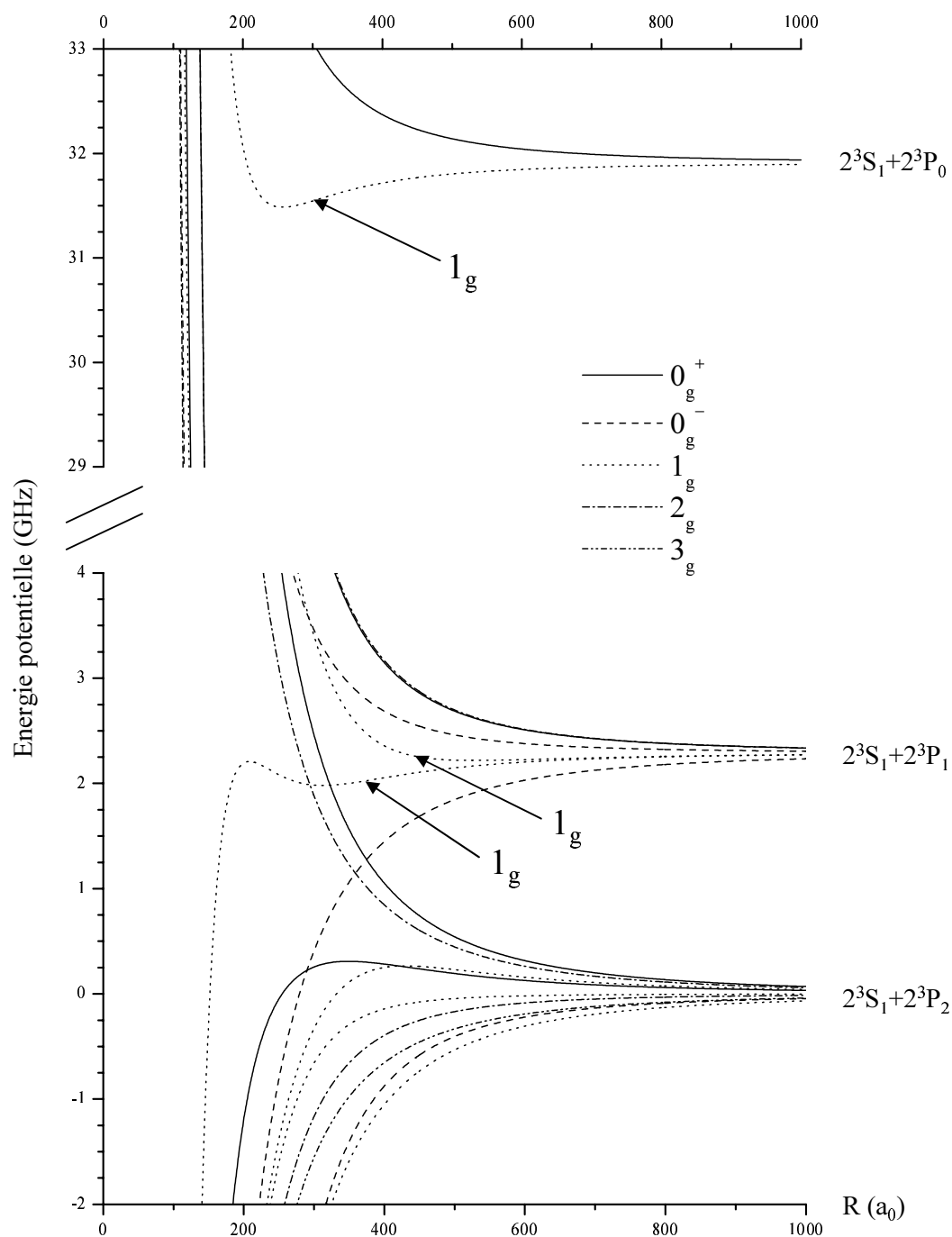


FIG. 6.4 — Potentiels gerade calculés en négligeant la rotation des noyaux. On distingue deux puits de potentiel 1_g à purement longue portée, ainsi qu'un double puits, 1_g également. L'ensemble de ces potentiels est inaccessible par des expériences de photo-association à partir d'un échantillon gazeux polarisé de spin.

6.5 Traitement du mouvement des noyaux: l'approximation adiabatique

Dans le cadre de l'approximation de Born-Oppenheimer, les courbes de potentiel précédentes suffisent à décrire le comportement asymptotique des états moléculaires. Cependant, une description plus fine peut être apportée par l'approximation adiabatique qui décrit l'action de l'opérateur d'énergie cinétique des noyaux sur les degrés de liberté électroniques.

6.5.1 Couplage entre les degrés de liberté électroniques et de rotation

Dans un premier temps, nous allons considérer l'effet de la seule rotation sur l'état électronique, en écrivant l'opérateur $\hat{H}_C$ qui regroupe les termes de Coriolis:

$$mR^2 \hat{H}_C = \hat{\ell}^2 - \hat{\mathbf{J}}^2 \quad (6.13)$$

$$= \hat{\mathbf{L}}^2 + \hat{\mathbf{S}}^2 - 2 \hat{J}_z^2 + 2 \hat{L}_z \hat{S}_z + (\hat{L}_+ \hat{S}_- + \hat{L}_- \hat{S}_+) - (\hat{J}_+ \hat{L}_- + \hat{J}_- \hat{L}_+) - (\hat{J}_+ \hat{S}_- + \hat{J}_- \hat{S}_+), \quad (6.14)$$

où $\vec{J} = \vec{L} + \vec{S} + \vec{\ell}$.

Les opérateurs $\hat{J}_+$ et $\hat{J}_-$ sont responsables de couplages non-diagonaux entre sous-espace Ω différents [130] tels que $\Delta\Omega = \pm 1$. Dans une approche adiabatique, ces termes peuvent être négligés (voir la discussion du paragraphe 6.1.3). L'effet de la rotation des noyaux sur l'état électronique est donc pris en compte en déterminant les courbes de potentiel issues de la diagonalisation, de l'hamiltonien suivant:

$$\hat{\mathcal{H}}_e^{Rot} = \frac{\hat{\mathbf{J}}^2}{mR^2} + \hat{H}_C^{app} + \hat{H}_{sf}(A) + \hat{H}_{sf}(B) + \hat{U}(R).$$

On reconnaît dans les trois derniers termes l'hamiltonien électronique décrit précédemment. Le premier terme constitue la barrière centrifuge produite par la rotation des noyaux dans un état rotationnel J . Le second terme est l'hamiltonien de Coriolis "approché" dans lequel on exclut les termes en $\hat{J}_\pm$:

$$\hat{H}_C^{app} = \frac{1}{mR^2} \left(\hat{\mathbf{L}}^2 + \hat{\mathbf{S}}^2 - 2 \hat{J}_z^2 + 2 \hat{L}_z \hat{S}_z + (\hat{L}_+ \hat{S}_- + \hat{L}_- \hat{S}_+) \right).$$

Les états propres de $\hat{\mathbf{J}}^2$ sont caractérisés par le nombre quantique de rotation J . La projection de $\vec{J}$ sur l'axe moléculaire est égale à celle de $\vec{L} + \vec{S}$, à savoir Ω , puisque $\vec{\ell}$ est orthogonal à l'axe moléculaire. Les états propres de $\hat{\mathbf{J}}^2$ sont donc notés $|J, \Omega\rangle$ et, en représentation $\{\vec{R}\}$, les fonctions d'ondes rotationnelles s'écrivent $\langle \vec{R} | J, \Omega \rangle = \mathcal{R}_{J, \Omega}(\theta, \phi)$.

Compte tenu de l'expression approchée de $\hat{H}_C$, Le nombre quantique Ω reste un bon nombre quantique, et l'opérateur $\hat{\mathcal{H}}_e^{Rot}$ est diagonal par bloc, chaque bloc correspondant à un sous-espace $\{J, \Omega_{u/g}^\pm\}$. La restriction de $\hat{\mathcal{H}}_e^{Rot}$ au sein de chacun de ces sous-espaces peut alors être diagonalisée et les états propres correspondants sont les états électroniques d'une molécule *en rotation*, à R fixé. Les valeurs propres sont des courbes de potentiels $V_{J, \Omega_{u/g}^\pm}(R)$, et les fonctions d'ondes correspondantes seront notées $\Phi_{J, \Omega_{u/g}^\pm}(R)$.

Remarquons que les termes négligés dans l'expression approchée de $\hat{H}_C$ peuvent devenir importants au voisinage des distances R auxquelles des courbes de potentiels $V_{J,\Omega_{u/g}^\pm}(R)$ se croisent, qui correspondent à des Ω différents, avec $\Delta\Omega = \pm 1$. Alors une approche non-adiabatique à plusieurs canaux devient nécessaire. Nous reviendrons sur la discussion de cette approximation à propos de l'étude des dimères géants, au chapitre 7.

6.5.2 Effets de la vibration sur l'état électronique

L'approche développée ici diffère sensiblement de la présentation générale du paragraphe 6.1.3. En effet, la partie électronique de la solution générale était un état propre de $\hat{H}_e$, c'est-à-dire, calculé dans l'approximation des noyaux fixes. Ici, la partie électronique de la solution générale est un état propre de $\hat{H}_e^{Rot}$, correspondant à un état électronique en rotation caractérisé par J , mais toujours à R fixe. L'effet de $\hat{H}_C$, est donc déjà inclus, dans le cadre d'une approximation adiabatique.

La résolution complète de l'équation de Schrödinger (6.5) est donc effectuée en recherchant des solutions adiabatiques du type:

$$\langle \vec{R} | \Psi_\alpha \rangle = \frac{u_{J,\Omega_{u/g},v}(R)}{R} \mathcal{R}_{J,\Omega}(\theta, \phi) \Phi_{J,\Omega_{u/g}^\pm}(R) ,$$

où v est le nombre quantique de vibration, dans le cas d'états liés. Alors la partie vibrationnelle (notée $u(R)$ pour simplifier) est donnée par l'équation (voir le paragraphe 6.1.3):

$$\left\{ -\frac{\hbar^2}{2\mu} \left(\frac{d^2}{dR^2} + \left\langle \Phi_{J,\Omega_{u/g}^\pm} \left| \frac{\partial^2}{\partial R^2} \right| \Phi_{J,\Omega_{u/g}^\pm} \right\rangle \right) + V_{J,\Omega_u^\pm}(R) - E_{J,\Omega_{u/g},v} \right\} u(R) = 0 , \quad (6.15)$$

où $E_{J,\Omega_{u/g},v}$ désigne l'énergie de liaison de l'état ro-vibrationnel $\{v, J\}$ dans un des potentiels $V_{J,\Omega_u^\pm}(R)$.

Les états vibrationnels et les énergies de liaison des molécules connectées aux asymptotes $2^3S + 2^3P$ s'obtiennent donc en résolvant l'équation de Schrödinger d'une particule à 1 degré de liberté soumise à un potentiel effectif. Dans notre approche, seule la partie asymptotique du potentiel est connue. Les puits de potentiel à purement longue portée sont entièrement décrits par cette approche, et les énergies de liaisons des dimères géants correspondants peuvent être calculées par cette méthode. À cette occasion, nous illustrerons les effets des couplages ro-vibrationnels sur les énergies de liaison. En revanche, les puits de potentiels dont la partie répulsive se situe à très courte distance, ne sont décrits que partiellement, et le calcul des états liés est *a priori* impossible.

Chapitre 7

Dimères géants d'hélium

Ce chapitre est consacré à la description théorique et à l'étude expérimentale des dimères géants, qui ont conduit à trois publications [131, 132, 126]. Seuls trois puits de potentiels *ungerade* sont à purement longue portée. Le premier paragraphe présente le détail des résultats obtenus par les calculs décrits au chapitre 6, lorsqu'on les applique à ces trois puits. Le deuxième paragraphe montre comment les données expérimentales doivent être traitées pour en déduire les énergies de liaison des états moléculaires sondés dans le rouge de D_0 . En effet, la mesure expérimentale donne accès au désaccord δ_v auquel le laser de PA doit être asservi pour exciter de manière résonante l'état vibrationnel v . Cependant, la présence du champ magnétique de piégeage et la température finie du nuage sont responsables d'un décalage des raies moléculaires. Nous proposons donc une étude détaillée de ces décalages dans le but de relier le désaccord mesuré à l'énergie de liaison de l'état moléculaire correspondant. Alors seulement, il est possible de confronter les calculs aux mesures (troisième paragraphe). L'accord est très bon, à condition de tenir compte des effets de retard dans l'interaction dipôle-dipôle résonante. Nous montrons que notre calcul adiabatique est bien adapté à la description des dimères géants. Une mesure précise de la durée de vie radiative de He (2^3P) peut en être déduite.

Enfin, le quatrième paragraphe propose une étude préliminaire expérimentale et théorique semi-quantitative dans le but d'expliquer le mécanisme de chauffage. Cette étude tente d'étayer l'hypothèse selon laquelle le chauffage provient d'atomes métastables "chauds" piégés, produits par la désexcitation radiative des dimères géants.

7.1 Calcul des états liés à purement longue portée

Les calculs du chapitre 6 ont permis de mettre en évidence l'existence de trois puits de potentiel *ungerade* à purement longue portée. Ils correspondent à trois états électroniques différents: 0_u^+ , 0_u^- , et 2_u . Dans ces puits, les états liés explorent une région dans laquelle l'approche perturbative reste en permanence très bonne, y compris au voisinage du point de rebroussement interne. Ces états liés sont donc calculables dans le cadre de cette approche.

7.1.1 États électroniques à purement longue portée

Les trois puits de potentiel à purement longue portée *ungerade*, sont représentés sur la figure 7.1. Dans chaque cas, le potentiel effectif est représenté pour deux valeurs pertinentes de J (voir le paragraphe 7.1.2), avec à chaque fois, en traits pointillés, le résultat de l'approximation de Born-Oppenheimer, et en trait continu le résultat de l'approximation adiabatique. Pour chaque puits de potentiel, l'état propre correspondant est représenté par sa décomposition sur les vecteurs de la base du cas (a) de Hund qui engendrent le sous-espace Ω correspondant.

Seule la partie rotationnelle de l'énergie cinétique des noyaux est incluse dans le calcul illustré par la figure 7.1. Cette figure décrit donc les états propres à purement longue portée de $\hat{\mathcal{H}}_e^{Rot}$ (voir le paragraphe 6.5.1). Pour une même valeur de J l'écart entre une courbe pointillée et une courbe continue illustre l'influence des termes de Coriolis.

Enfin, la partie vibrationnelle de l'énergie cinétique des noyaux conduit, dans l'approche asymptotique, à un terme supplémentaire qui doit être ajouté au potentiel électronique effectif (voir l'équation 6.15):

$$\left\langle \Phi_{J,\Omega_{u/g}^{\pm}} \left| \frac{\partial^2}{\partial R^2} \right| \Phi_{J,\Omega_{u/g}^{\pm}} \right\rangle . \quad (7.1)$$

Ce terme est non nul à cause de la variation avec R de l'état électronique. En effet, la partie électronique d'un état propre de $\hat{\mathcal{H}}_e^{Rot}$ peut s'écrire:

$$|\Phi_{J,\Omega_{u/g}^{\pm}}\rangle = \sum_{i=1}^N c_i(R) |i\rangle , \quad (7.2)$$

où N est la dimension du sous-espace $\{J,\Omega_{u/g}^{\pm}\}$, et $\{|i\rangle\}$ un ensemble de vecteurs orthonormés, indépendants de R , qui génèrent ce sous-espace. En particulier, les $\{|i\rangle\}$ peuvent être les vecteurs de la base du cas (a) de Hund, et alors les $c_i(R)$ sont les fonctions (réelles) représentées sur la figure 7.1, pour chaque puits de potentiel. L'expression (7.1) prend donc des valeurs non nulles dans la région où les $c_i(R)$ varient, c'est-à-dire où le caractère électronique passe continûment du cas (a) au cas (c) de Hund, à cause de la compétition entre l'interaction dipôle-dipôle et l'interaction de structure fine. L'effet du terme donné par (7.1) sera discuté quantitativement au paragraphe 7.3. Il est calculé explicitement de la manière suivante:

$$\left\langle \Phi_{J,\Omega_{u/g}^{\pm}} \left| \frac{\partial^2}{\partial R^2} \right| \Phi_{J,\Omega_{u/g}^{\pm}} \right\rangle = \sum_{i=1}^N c_i(R) \frac{d^2 c_i(R)}{dR^2} , \quad (7.3)$$

les $c_i(R)$ étant les composantes des vecteurs propres obtenus numériquement.

7.1.2 Nombre quantique de rotation J : règles de sélection et statistique de Bose-Einstein

Dans nos expériences de photo-association, l'état initial d'une paire d'atomes He^* est $^5\Sigma_g^+$, pour la partie électronique, et une onde s ($\ell = 0$) pour la partie rotationnelle. Ainsi, le moment cinétique total initial est $J = 2$. Comme cette paire subit une transition dipolaire électrique, la valeur de J dans l'état final ne peut être que $J = 1, 2$ ou 3 .

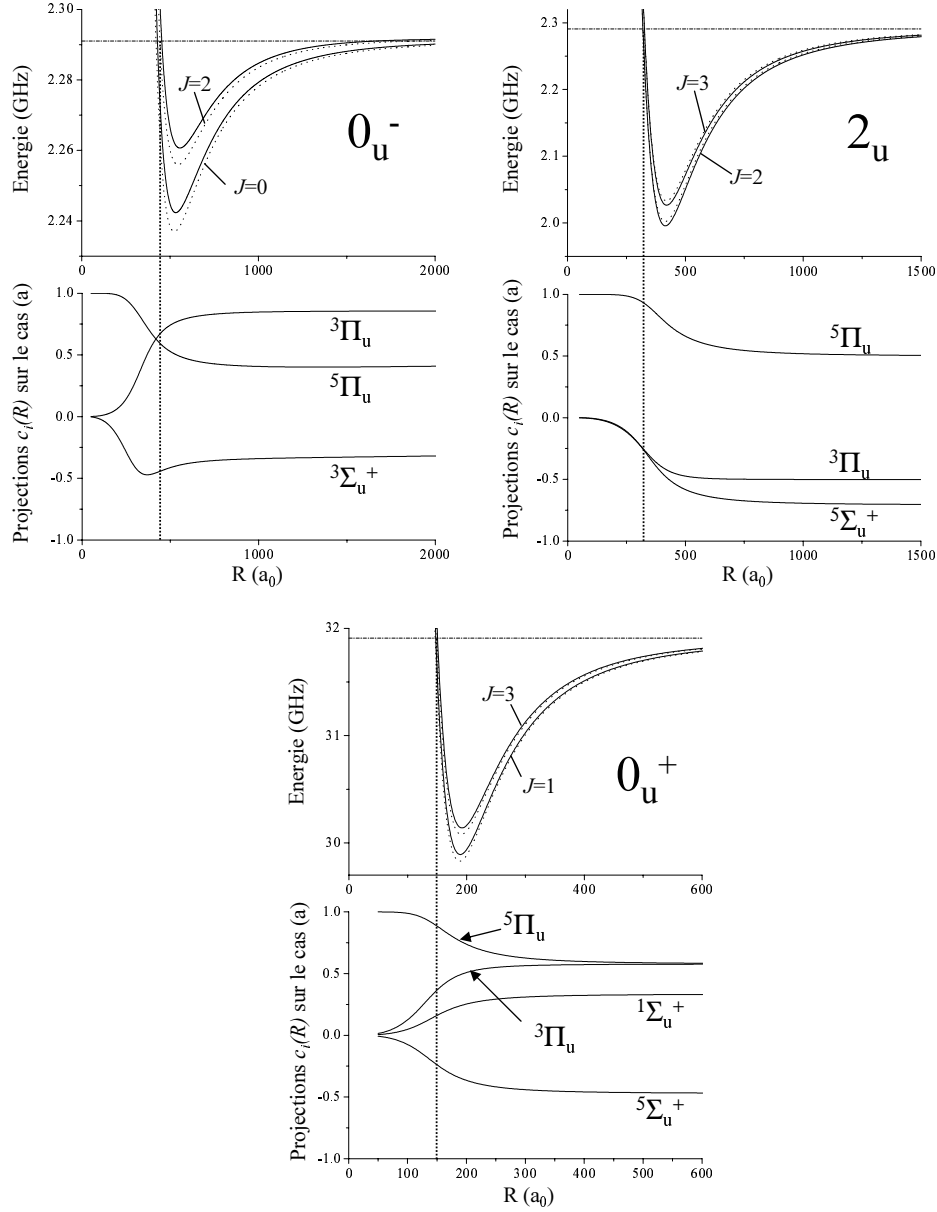


FIG. 7.1 — Présentation des états propres électroniques ungerade à purement longue portée. Pour chacun des trois puits de potentiel, les potentiels effectifs sont tracés pour deux valeurs différentes de J (voir le paragraphe 7.1.2), en pointillés pour l'approximation de Born-Oppenheimer, et en trait continu pour l'approximation adiabatique. Dans chaque cas, l'état propre correspondant est donné par sa décomposition $\{c_i(R)\}$ sur la base du cas (a) de Hund. Les fonctions $c_i(R)$, que l'on trouve être réelles, vérifient $\sum_{i=1}^N c_i^2(R) = 1$, avec N la dimension du sous-espace Ω considéré. Les droites en trait pointillé horizontales représentent les seuils de dissociation, et les droites en trait pointillé verticales donnent la position du point classique de rebroussement interne.

Parmi ces 3 valeurs possibles, la statistique de Bose-Einstein interdit, dans certains cas, certaines valeurs de J . En effet, la permutation P des deux noyaux (bosons identiques) doit avoir comme résultat la multiplication de la fonction d'onde totale par $+1$. Il est alors possible de montrer (voir en particulier [130]) que cette permutation s'écrit comme le produit d'une inversion i des électrons dans le centre de masse des noyaux (symétrie u/g), et d'une réflexion σ de l'ensemble de la fonction d'onde (électronique et rotationnelle) dans un plan contenant l'axe moléculaire (symétrie $\pm$). La théorie des groupes donne alors [130]:

$$\begin{aligned} P &= i \cdot \sigma \\ i |\Omega_{g/u}\rangle &= \pm |\Omega_{g/u}\rangle \\ \sigma |J, \Omega^\pm\rangle &= \pm (-1)^J |J, \Omega^\pm\rangle \end{aligned}$$

On en déduit qu'imposer $P|J, \Omega_{g/u}^\pm\rangle = |J, \Omega_{g/u}^\pm\rangle$ revient à imposer que J soit impair pour un état électronique 0_u^+ et pair pour un état électronique 0_u^- . Aucune restriction n'est apportée *a priori* pour les états $\Omega \neq 0$ puisque qu'ils sont doublement dégénérés, avec un état Ω^+ et un état Ω^- .

En définitive, pour le potentiel à purement longue portée 2_u , J ne peut être inférieur à 2 (puisque Ω est la projection sur l'axe moléculaire de J). Donc des états liés peuvent être *a priori* observés dans l'état rotationnel $J = 2$ ou $J = 3$. Des états liés ne peuvent être observés que pour $J = 2$ dans le puits 0_u^- , et *a priori* $J = 1$ ou 3 dans le puits 0_u^+ .

7.1.3 Calcul des énergies de liaison

Les énergies de liaison dans les trois puits *ungerade* à purement longue portée sont obtenues en résolvant numériquement l'équation 6.15 pour des valeurs de J pertinentes. Le tableau 7.1 donne les résultats obtenus.

TAB. 7.1 – Énergies de liaison calculées dans l'approximation adiabatique (équation 6.15) pour les trois puits de potentiel ungerade à purement longue portée. Les énergies de liaison sont données pour chaque valeur pertinente de J , en MHz, par rapport à l'asymptote du potentiel correspondant.

	v	$J = 1$	$J = 2$	$J = 3$
0_u^+	5	-2.487		-
	4	-18.12		-3.791
	3	-79.41		-40.05
	2	-252.9		-172.3
	1	-648.3		-510.1
	0	-1418		-1209
0_u^-	0		-7.304	
2_u	3		-4.584	-1.949
	2		-21.41	-14.04
	1		-72.32	-57.14
	0		-191.5	-166.2

7.1.4 Dimères géants

La fonction d'onde vibrationnelle $u(R)$ solution de l'équation 6.15 définit l'extension spatiale des molécules. Le tableau 7.2 donne la valeur des points classiques de rebroussement interne et externe, ainsi que la distance inter-nucléaire moyenne pour les trois puits de potentiel dans un niveau rotationnel donné. La distance moyenne est calculée selon: $\langle R \rangle = \int R u^2(R) dR$.

La distance inter-nucléaire de ces molécules est en permanence supérieure à $150 a_0$, ce qui explique leur caractère à purement longue portée. La distance inter-nucléaire moyenne de ces molécules est particulièrement élevée, jusqu'à 4 à 5 fois plus élevée que pour les molécules à purement longue portée précédemment observées dans les alcalins (voir [121, 122]). C'est la raison pour laquelle l'approche asymptotique est bien adaptée pour les décrire. En particulier, le terme d'ordre supérieur dans l'expression de l'interaction dipôle-dipôle, C_6/R^6 , peut être négligé. Avec $C_6 = 2621$ u.a. [136], on calcule qu'à une distance supérieure à $150 a_0$, on a $C_6/R^6 < C_3/R^3 \times 10^{-4}$. L'erreur commise en négligeant le terme en C_6 est donc inférieure à l'incertitude sur C_3 (voir la discussion du paragraphe 6.3.1).

TAB. 7.2 – Dimensions des dimères géants. R_{min} et R_{max} sont les points classiques de rebroussement interne et externe. $\langle R \rangle$ est la distance inter-nucléaire moyenne. Les distances sont en unités atomiques ($1a_0 \simeq 0.0529$ nm).

	v	R_{min}	R_{max}	$\langle R \rangle$
$0_u^+, J = 1$	5	147.6	2182	1797
	4	147.7	1122	917
	3	148.1	689	560
	2	149.5	467	379
	1	152.9	336	276
	0	162.5	246	213
$0_u^-, J = 2$	0	461.7	970	824
$2_u, J = 2$	3	320.5	2097	1712
	2	322.5	1231	999
	1	329.3	808	659
	0	351.1	558	477

Pour illustration, la figure 7.2 représente les fonctions d'ondes vibrationnelles calculées dans le cas du puits 0_u^+ qui est celui qui a été étudié expérimentalement.

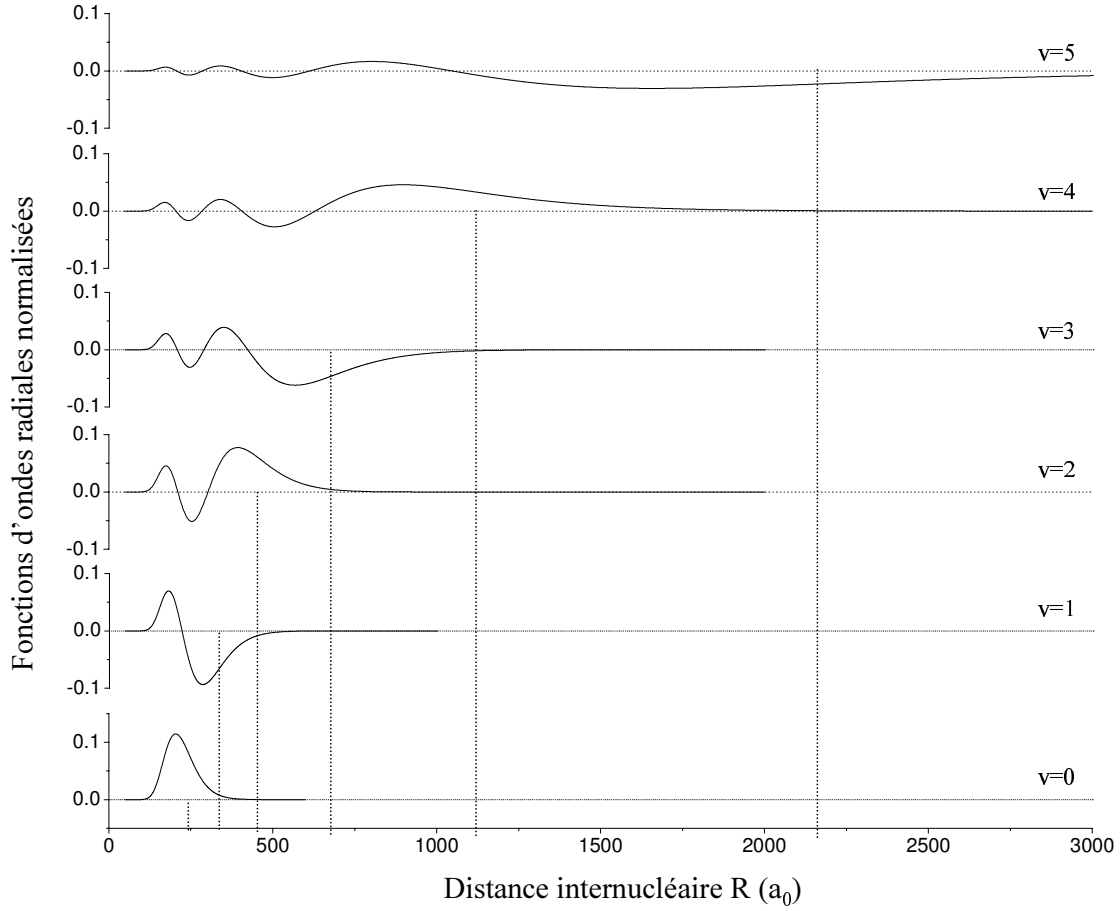


FIG. 7.2 – Présentation des fonctions d'ondes de vibration calculées dans le puits de potentiel à purement longue portée 0_u^+ . Les traits verticaux en pointillés représentent les points de rebroussement classique externes. Ces points sont voisins du rayon de Condon R_C qui est la distance inter-atomique la plus probable à laquelle ces niveaux peuvent être excités.

7.2 Détermination expérimentale des énergies de liaison

Les spectres expérimentaux sont obtenus en mesurant la fréquence du laser de photo-association pour laquelle des états moléculaires sont excités de manière résonante, à partir d'un nuage d'atomes individuels piégés magnétiquement. L'extraction précise des énergies de liaison correspondantes nécessite de tenir compte de la forme éventuellement asymétrique et du décalage des raies mesurées.

7.2.1 Position du problème

En l'absence d'effet Zeeman sur les niveaux initial et final, et à faible densité, la forme d'une raie de photo-association est dictée par un mécanisme d'élargissement inhomogène dû à la distribution en énergie cinétique relative des paires d'atomes dans l'état initial, à

température non nulle. Cet effet conduit à une forme de raie asymétrique caractéristique d'une transition entre un état libre et un état lié, et discutée initialement par Napolitano *et al.* [133] en 1994. Dans le régime des collisions ultra-froides, et aux faibles intensités laser, ces auteurs montrent que la forme d'une raie de photo-association est proportionnelle à:

$$K(\delta_b, T) = \int \frac{1}{(h\delta_b + \hbar^2 q^2/m - hb)^2 + (h\Gamma/2)^2} q^2 \exp(-\frac{\hbar^2 q^2}{mk_B T}) dq, \quad (7.4)$$

où δ_b est le désaccord laser, par rapport à l'énergie de liaison b mesurée en unité de fréquence, T est la température du gaz d'atomes, $\hbar^2 q^2/m$ est l'énergie cinétique relative d'une paire d'atomes dans l'état initial, et Γ la durée de vie de l'état excité. Cette forme de raie est une lorentzienne de largeur Γ associée à la transition d'une paire d'atomes d'énergie cinétique relative donnée, *moyennée* par la distribution en énergie cinétique relative des paires d'atomes qui subissent la photo-association. Dans le régime des collisions ultra-froides, cette distribution en énergie cinétique relative est proportionnelle à $q^2 \exp(-\frac{\hbar^2 q^2}{mk_B T})$, ainsi que nous le montrerons ci-dessous. On constate en particulier, sur cette formule, que le taux de photo-association devient nul à température nulle (c'est-à-dire $q \rightarrow 0$).

La figure 7.3 représente la fonction donnée par (7.4) pour deux températures différentes. On constate qu'à température non nulle, la raie a une forme asymétrique et décalée de la fréquence associée à l'énergie de liaison. Cependant, pour les températures auxquelles nos expériences ont été réalisées ($T < 30 \mu K$), la raie conserve quasiment sa forme lorentzienne symétrique, et l'effet se traduit par un simple décalage de la raie.

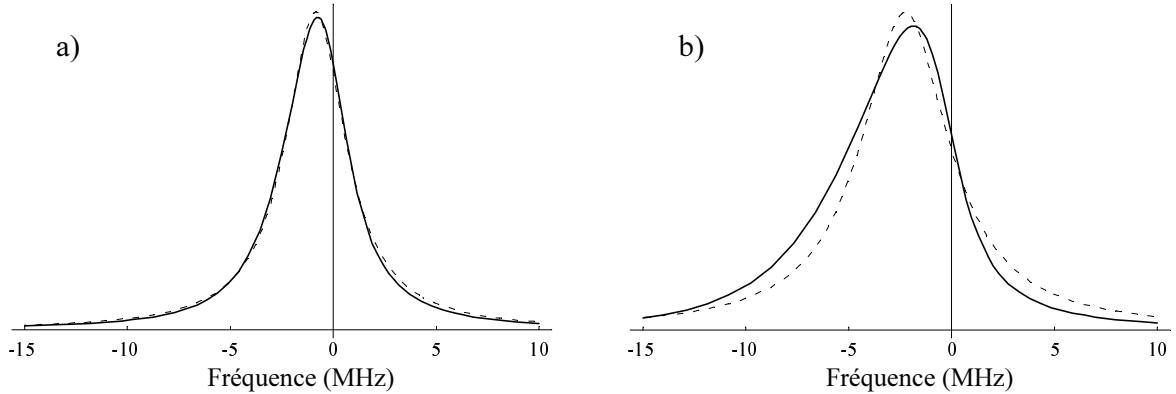


FIG. 7.3 – Illustration de la forme de raie d'une transition entre un état libre et un état lié, dans le régime des basses températures. La forme de raie donnée par l'expression 7.4 (issue de [133]), avec $\Gamma = 3 \text{ MHz}$, est tracée en trait continu épais et en unités arbitraires pour deux températures différentes: a) $30 \mu K$ et b) $100 \mu K$. Le trait pointillé représente le meilleur ajustement de cette courbe par une lorentzienne. La droite verticale donne dans les deux cas la valeur de l'énergie de liaison. À $30 \mu K$ (et en dessous), la forme lorentzienne est quasiment parfaite, et légèrement décalée. À $100 \mu K$ (et au dessus), la raie s'élargit de façon asymétrique, et le décalage moyen augmente.

Dans nos expériences, 3 autres mécanismes d'élargissement inhomogène sont à prendre en compte pour décrire la forme et la position des raies de photo-association: le profil Doppler,

le profil Zeeman dû au piégeage magnétique, et le décalage éventuel dû aux effets de densité (voir par exemple [108]). Le profil Doppler conduit à un élargissement symétrique négligeable de la raie, de quelques pour cent au maximum dans nos expériences, compte tenu de la très basse température du nuage. Le profil Zeeman conduit également à une forme de raie *a priori* asymétrique. Cependant, à très basse température, on peut montrer que cette forme est aussi quasiment lorentzienne, et que l'effet peut être assimilé à un décalage supplémentaire.

En définitive, les raies de photo-association sont des lorentziennes décalées par rapport à l'énergie de liaison de la molécule considérée. Dans la plupart de nos expériences, le nombre de molécules créées est relativement faible, et on s'attend à ce que l'élévation de température du nuage soit proportionnelle au taux de photo-association (voir le paragraphe 7.4). Les courbes de température sont donc ajustées par des lorentziennes. On peut constater que l'ajustement est très bon (voir la figure 5.8). La mesure de l'énergie de liaison, à partir du centre de la lorentzienne ajustée, s'obtient en appliquant la correction attendue compte tenu des différentes sources de décalages évoquées ci-dessus. Nous présentons donc ci-dessous un calcul, basé sur les lois de conservation de l'énergie et de l'impulsion, du décalage *moyen* des raies de photo-association, en fonction du champ magnétique de piégeage et de la température du nuage.

7.2.2 Lois de conservation

Considérons pour l'instant une seule paire d'atomes, piégée magnétiquement. L'énergie E_i de cette paire dans l'état initial de diffusion peut s'écrire:

$$E_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2, \vec{P}, \vec{p}_{rel}) = \frac{\vec{P}^2}{4m} + \frac{\vec{p}_{rel}^2}{m} - \vec{\mu} \left(\vec{B}(\vec{r}_1) + \vec{B}(\vec{r}_2) \right), \quad (7.5)$$

où $\vec{P} = \vec{p}_1 + \vec{p}_2$ est l'impulsion du centre de masse de la paire, et $\vec{p}_{rel} = (\vec{p}_1 - \vec{p}_2)/2$ est l'impulsion relative. $\vec{B}(\vec{r}_1)$ et $\vec{B}(\vec{r}_2)$ sont les champs magnétiques au lieu de chaque atome et $\vec{\mu}$ est le moment magnétique d'un atome dans l'état 2^3S_1 . Le facteur de Landé vaut 2, donc $\mu = -2\mu_B$, avec $\mu_B < 0$ le magnéton de Bohr. Dans l'expression 7.5, on néglige toute énergie d'interaction entre les deux atomes, ce qui sera justifié ci-dessous.

Suite à l'absorption d'un photon d'impulsion $\hbar\vec{k}$ et de fréquence ν_L , l'énergie de liaison $hb < 0$ de la molécule produite peut s'écrire, compte tenu de la conservation de l'énergie et de l'impulsion totale:

$$\begin{aligned} E_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2, \vec{P}, \vec{p}_{rel}) + h\nu_L &= \frac{\vec{P}_M^2}{4m} + h(\nu_0 + b) \\ \text{avec } \vec{P} + \hbar\vec{k} &= \vec{P}_M, \end{aligned} \quad (7.6)$$

où $\vec{P}_M$ est l'impulsion finale de la molécule, et $h\nu_0$ est l'énergie de la transition atomique D_0 , pour un atome isolé en l'absence de tout champ magnétique. La différence entre l'énergie de liaison de la molécule et le désaccord $\delta = \nu_L - \nu_0$ du laser de PA s'en déduit alors:

$$h(b - \delta) = -\hbar\vec{k} \cdot \frac{\vec{P}}{2m} - \frac{\hbar^2 k^2}{4m} - \vec{\mu} \cdot \left(\vec{B}(\vec{r}_1) + \vec{B}(\vec{r}_2) \right) + \frac{\vec{p}_{rel}^2}{m}, \quad (7.7)$$

Toute dépendance de l'énergie de la molécule en fonction du champ magnétique (effet Zeeman) ou de la densité (interaction de la molécule avec les atomes et les autres molécules environnantes) est *a priori* incluse dans *b*. Ainsi, *b* dépend aussi de la position de la molécule puisque le champ magnétique de piégeage et la densité atomique en dépendent.

Soulignons que le terme d'énergie cinétique relative $\vec{p}_{rel}^2/m$ dans l'équation (7.7) n'apparaîtrait pas dans le cas d'une transition entre deux états liés, mais serait implicitement contenu dans l'énergie de liaison de l'état initial. Comme il est toujours positif, il conduit à une forme de raie asymétrique comme on l'a vu au paragraphe précédent. De même le potentiel de piégeage magnétique est harmonique (c'est-à-dire aussi toujours positif) et conduit donc également à une forme asymétrique. À très basse température cependant, la raie reste quasiment symétrique (voir la figure 7.3), et l'effet total est un simple déplacement de son centre. Ce décalage moyen peut être calculé en moyennant l'équation (7.7) sur la distribution de paires initiales d'atomes libres.

7.2.3 Fonction de distribution de la paire initiale d'atomes

La fonction de distribution d'une paire d'atomes *qui subissent la transition de photo-association* est la distribution thermique d'une paire d'atomes piégés *multipliée* par la probabilité que cette paire subisse la transition. En plus des règles usuelles de sélection, cette probabilité est dictée par le principe de recouvrement de Franck-Condon. Elle est donc proportionnelle au carré du recouvrement entre les fonctions d'ondes radiales initiale (état de diffusion en onde *s*) et finale (état lié). Puisque l'état final est un état lié vibrationnel, le recouvrement prend des valeurs non nulles au voisinage du point de Condon, lui-même voisin du point classique de rebroussement externe. Ainsi, la transition se fait principalement pour des distances inter-nucléaires voisines de $R_C = \|\vec{r}_1 - \vec{r}_2\| \leq 50$ nm, qui sont bien plus petites que la taille du nuage atomique piégé magnétiquement (~ 100 μm at $T \sim 10$ μK). Pour que la transition se fasse, il faut donc que les deux atomes soient quasiment au même point, et nous pouvons écrire dans les équations (7.5) et (7.7) $\vec{r}_1 \simeq \vec{r}_2 \simeq \vec{r}$, avec $\vec{r}$ le centre de masse de la paire.

Par ailleurs, compte tenu de la température du gaz, la collision entre les deux atomes libres de la paire initiale se fait en onde *s*. L'impulsion relative $\vec{p}_{rel} = \hbar\vec{q}$ n'a donc pas de composante orthogonale à l'axe inter-atomique. On peut donc oublier le caractère vectoriel de $\vec{p}_{rel}$: il n'y a qu'un seul degré de liberté pour le mouvement relatif des atomes en collision. À des distances inter-atomiques R proches de R_C , la fonction d'onde radiale $u(R)$ de l'état initial est approchée par $u(R) \simeq \sin(q(R-a)) \propto q$ puisque $q(R_C-a) \ll 1$ (avec a la longueur de diffusion, voir le paragraphe 4.1.3). Le facteur de Franck-Condon, et donc la probabilité de transition, sont ainsi proportionnels à q^2 .

Finalement, la fonction de distribution pour une paire d'atomes absorbant un photon est proportionnelle à :

$$q^2 \delta(\vec{r}_1 - \vec{r}_2) \times \exp(-E_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2, \vec{P}, q)/k_B T) , \quad (7.8)$$

avec $q = \frac{p_{rel}}{\hbar}$ dans le régime de collisions en onde *s*. On retrouve ainsi la fonction de distribution en énergie cinétique relative évoquée au paragraphe 7.2.1

7.2.4 Calcul du décalage moyen des raies

Moyenne sur l'impulsion du centre de masse

Le premier terme du membre de droite de l'équation (7.7) est responsable du profil Doppler. Il n'engendre aucun décalage moyen puisque les impulsions du photon et du centre de masse de la paire ne sont *a priori* pas corrélées: $\langle \vec{k} \cdot \vec{P} \rangle = 0$.

Le second terme du membre du droite dans l'équation (7.7) est l'énergie de recul de la molécule après avoir absorbé le photon. En unités de h , sa valeur est de ~ 21 kHz, ce qui est inférieur à notre précision expérimentale. Nous négligeons donc ce terme.

Moyenne sur la position du centre de masse

Compte tenu de la formule (7.8), la moyenne sur les positions $\vec{r}_1$ et $\vec{r}_2$ des deux atomes devient une moyenne sur la position du centre de masse $\vec{r}$ de la paire. Le décalage Zeeman moyen introduit par le potentiel de piégeage magnétique s'écrit donc:

$$\left\langle -\vec{\mu} \cdot \left(\vec{B}(\vec{r}_1) + \vec{B}(\vec{r}_2) \right) \right\rangle = 2\mu B_0 + \frac{3}{2}k_B T, \quad (7.9)$$

où $2\mu B_0$ est deux fois le décalage Zeeman d'un atome au centre du piège magnétique, et $3k_B T/2$ est le résultat de la moyenne du potentiel harmonique de piégeage, d'après le théorème de l'équipartition de l'énergie.

A priori l'énergie de liaison hb dépend aussi de la position du centre de masse, *via* les effets Zeeman et de densité. Cependant, nous verrons que ces deux effets s'avèrent plus petits que la précision expérimentale, et nous les négligerons par la suite. b apparaît donc comme une constante dans notre calcul.

Moyenne sur l'impulsion relative

Compte tenu de l'expression (7.8), la valeur moyenne du terme d'énergie cinétique relative s'écrit:

$$\left\langle \frac{\hbar^2 q^2}{m} \right\rangle = \frac{\int \frac{\hbar^2 q^2}{m} q^2 \exp\left(-\frac{\hbar^2 q^2}{mk_B T}\right) dq}{\int q^2 \exp\left(-\frac{\hbar^2 q^2}{mk_B T}\right) dq} = \frac{3}{2}k_B T, \quad (7.10)$$

où le dénominateur normalise la fonction de distribution donnée par l'expression (7.8). Remarquons ici qu'un seul degré de liberté pour l'impulsion relative (en régime de collision en onde s) contribue à hauteur de $3k_B T/2$ à l'énergie moyenne de la paire, soit autant que 3 degrés de liberté classiques.

Autres mécanismes de décalage

L'interaction de champ moyen modifie à la fois l'énergie du niveau initial et du niveau final, et produit un décalage des raies moléculaires, dépendant de la densité. Dans l'état

initial, tout d'abord, l'interaction de champ moyen vaut $4\pi a\hbar^2 \times n/m$, où $n < 10^{14} \text{ cm}^{-3}$ est la densité atomique, $a < 20 \text{ nm}$ la longueur de diffusion, et $m \sim 6.68 \times 10^{-27} \text{ kg}$ la masse de He. On en déduit que l'interaction de champ moyen est plus petite que $\sim 60 \text{ kHz}$, en unités de $\hbar$. Cette valeur est nettement inférieure à notre précision expérimentale. L'effet du champ moyen sur l'état initial est donc négligeable. En ce qui concerne l'état moléculaire final, nos expériences n'ont pas permis de mettre en évidence un quelconque effet de densité, comme nous le verrons ci-dessous.

Enfin, les décalages lumineux sont complètement négligeables dans les expériences que nous avons réalisées dans le rouge de D_0 . En effet, les spectres sont obtenus avec des intensités lumineuses faibles, inférieures à l'intensité de saturation de la raie atomique. Dans la gamme d'intensité lumineuse explorée, nous n'avons détecté aucune dépendance de la position des raies moléculaires avec l'intensité du faisceau de PA.

Conclusion

Expérimentalement, nous mesurons le désaccord δ du laser de PA ainsi que la température du gaz. Chaque courbe de température est ajustée par une lorentzienne dont le centre est une mesure du désaccord moyen δ_v , pour lequel le laser de PA excite de manière résonante un niveau vibrationnel donné v . Compte tenu des décalages discutés ci-dessus, nous déduisons donc l'énergie de liaison hb_v de ce niveau vibrationnel par la formule:

$$hb_v \simeq h\delta_v + 2\mu B_0 + 3k_B T. \quad (7.11)$$

L'équation 7.11 n'est rien d'autre que la moyenne de l'équation 7.7, calculée à l'aide de la fonction de distribution 7.8.

Enfin, le terme correctif qui dépend de la température est la somme de deux contributions, chacune égale à $3k_B T/2$, mais d'origines différentes. En effet, $3k_B T/2$ proviennent de la moyenne sur le centre de masse de la paire, et $3k_B T/2$ proviennent de la moyenne sur l'impulsion relative. On remarque enfin que pour $T = 15 \mu\text{K}$, $3k_B T \simeq 0.9 \text{ MHz}$. Ce décalage, s'il n'est pas corrigé, constitue donc une erreur systématique importante, compte tenu de la précision des spectres obtenus.

7.2.5 Mesure expérimentale du décalage des raies moléculaires

Nous avons mesuré δ_v , B_0 et T pour les raies moléculaires $v = 0$ à $v = 4$ dans le potentiel à purement longue portée 0_u^+ , dans différentes conditions de champ magnétique, $B_0 = 0.1$ à $\sim 10 \text{ Gauss}$, et de température, $T = 1.5$ à $30 \mu\text{K}$. La température du gaz a été ajustée en modifiant la fréquence RF finale de la rampe d'évaporation. Par conséquent, la densité au centre du gaz a elle aussi été variée entre $n \sim 0.5 \times 10^{13}$ et $\sim 8 \times 10^{13} \text{ at/cm}^3$.

Dans l'équation 7.11 la correction la plus importante vient du terme $2\mu B_0$. La figure 7.4 illustre la dépendance en B_0 du désaccord laser δ_v au centre de la raie moléculaire, après correction du décalage induit par la température ($3k_B T$). L'ajustement des données par une droite permet tout d'abord d'extrapoler, à champ magnétique nul, la valeur de l'énergie de liaison de la molécule: $b = -79.6(3) \text{ MHz}$. Ensuite, si le champ magnétique est mesuré en unités de μB_0 , la pente de cette droite vaut -2.02 ± 0.02 . D'après l'équation

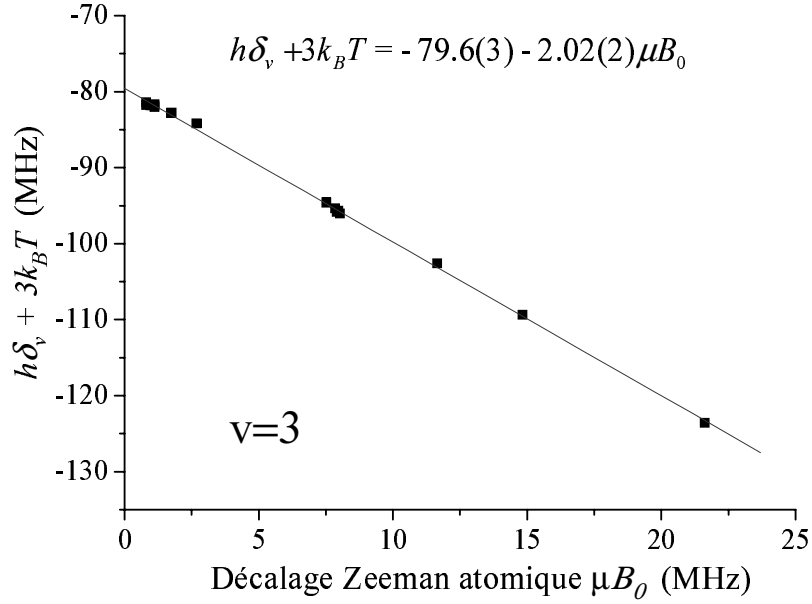


FIG. 7.4 – Détermination expérimentale des énergies de liaison dans le potentiel 0_u^+ : illustration, pour l'état vibrationnel $v = 3$, de la dépendance en B_0 du désaccord laser δ_v au centre de la raie moléculaire, après correction du décalage induit par la température (voir l'équation 7.11). Les données expérimentales (carrés) sont ajustées par une droite dont la pente représente le décalage Zeeman de la paire initiale d'atomes libres.

(7.11), la contribution de la paire initiale d'atomes libres est exactement $-2\mu B_0$, soit deux fois le décalage Zeeman d'un seul atome au fond du piège magnétique. Ainsi, tout écart à ce facteur 2 peut être attribué à l'effet Zeeman de l'état moléculaire excité. En réalité, puisque l'état électronique 0_u^+ n'est pas dégénéré, la molécule ne peut pas avoir de moment magnétique dipolaire d'origine électronique. Seule la rotation de la molécule peut induire un moment dipolaire, qui alors est de l'ordre du magnéton nucléaire [104], soit 3 ordres de grandeurs plus faible que μ_B . Compte tenu de la précision de nos mesures et de la gamme de champ magnétique explorée, un si petit effet Zeeman ne peut pas être mesuré dans notre expérience. On ne peut que fixer une borne supérieure à l'effet Zeeman attendu pour l'état moléculaire 0_u^+ , étant donnée l'incertitude qui accompagne l'ajustement linéaire des données expérimentales. On obtient ainsi que le décalage Zeeman de l'état moléculaire excité est inférieur à $0.02 \mu = 0.04 |\mu_B|$. C'est, *a posteriori*, la raison pour laquelle nous avons négligé l'effet Zeeman moléculaire dans le calcul du décalage des raies mesurées dans le rouge de D_0 .

La figure 7.5 représente la fréquence centrale de la raie $v = 4$ corrigée du décalage Zeeman ($2\mu B_0$), en fonction de la densité du nuage d'atomes. Les résultats sont donnés avant (carrés) et après (ronds) avoir appliqué le terme correctif $3k_B T$. Dans cette expérience, la densité est augmentée ou diminuée en évaporant plus ou moins le nuage. Par conséquent, la température diminue lorsque la densité augmente, et le décalage induit par la température s'annule aux densités élevées. Ainsi la variation de fréquence mesurée par les carrés, est un effet de température. Les barres d'erreur tiennent compte de l'incertitude expérimentale sur la détermination de δ , B_0 et T . Une source supplémentaire de dispersion des données vient des

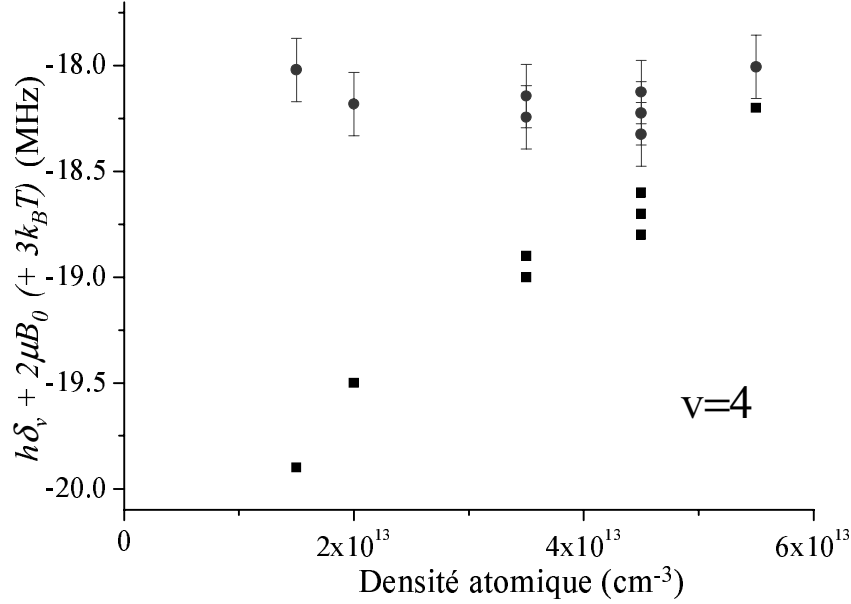


FIG. 7.5 – Détermination expérimentale des énergies de liaison dans le potentiel 0_u^+ : illustration, pour l'état vibrationnel $v = 4$, de la dépendance en température et en densité du désaccord laser δ_v au centre de la raie moléculaire, après correction du décalage induit par l'effet Zeeman (voir l'équation 7.11 et la figure 7.4). Les données sont représentées avant (carrés) et après (ronds) avoir appliqué la correction dépendant de la température. Les barres d'erreur représentent l'incertitude cumulée sur les déterminations de δ , B_0 , et T .

fluctuations de l'asservissement du laser de PA qui est estimée à 0.3 MHz. Nous avons étudié la stabilité de l'expérience en accumulant beaucoup plus de points que ceux représentés sur le graphe 7.5, et nous obtenons le résultat suivant pour l'énergie de liaison de l'état vibrationnel $v = 4$: $b = -18.2 \pm 0.5$ MHz. La barre d'erreur finale est telle que toutes nos mesures sont englobées dans l'intervalle retenu.

Signalons enfin que la taille des molécules formées ($917 a_0 \sim 50$ nm, voir le tableau 7.2) n'est pas infiniment petite devant la distance inter-atomique moyenne dans le gaz (~ 260 nm pour une densité de 6×10^{13} at/cm³). On peut alors s'attendre à un décalage des raies moléculaires en fonction de la densité, à cause de l'effet de champ moyen du milieu atomique environnant sur l'énergie de liaison des molécules. Cependant, notre expérience n'est pas suffisamment précise pour mettre en évidence un tel effet de densité. On peut, là aussi donner tout au plus une borne supérieure à un effet possible de la densité. La mesure de la raie étant constante à 0.5 MHz près jusqu'à une densité de 5×10^{13} cm⁻³, on en conclut que l'effet de densité sur l'énergie de liaison est inférieur à 100 kHz par unité de 10^{13} atomes/cm³.

Des données semblables à celles présentées sur les figures 7.4 et 7.5 ont été accumulées pour les raies $v = 2$ et $v = 1$. L'ensemble des énergies de liaison mesurées est rassemblé dans le tableau 7.3 du paragraphe 7.3.

7.3 Comparaison entre théorie et expérience pour le puits 0_u^+

7.3.1 Confrontation des résultats théoriques et expérimentaux

Le tableau 7.3 donne la comparaison entre, d'une part les résultats expérimentaux obtenus dans le rouge de D_0 et interprétés selon la démarche du paragraphe 7.2, et d'autre part le calcul des énergies de liaison dans le puits de potentiel 0_u^+ , selon l'approche adiabatique présentée au paragraphe 7.1.

TAB. 7.3 – Comparaison entre les énergies de liaison mesurées et calculées dans le cas du puits de potentiel à purement longue portée 0_u^+ . La colonne (A) rassemble les résultats expérimentaux, corrigés des dépendances en champ magnétique et en température, selon la démarche exposée au paragraphe 7.2. La colonne (B) donne les énergies de liaison $E_{v,J}$ calculées pour $J = 1$, à partir de l'équation (6.15), dans le cadre de l'approximation adiabatique. Pour chaque état lié, ϵ^{Ret} (colonne C) est une estimation de la contribution à $E_{v,J}$ des effets de retard dans l'interaction dipôle-dipôle résonante. De même, ϵ^{Rad} (colonne D) représente la contribution à $E_{v,J}$ du terme $\langle \phi_{J,\Omega_u^\pm} | \partial^2 / \partial R^2 | \phi_{J,\Omega_u^\pm} \rangle$ dans l'équation (6.15). Soulignons que les énergies de liaison $E_{v,J}$ présentées dans la colonne (B) contiennent implicitement les contributions ϵ^{Ret} et ϵ^{Rad} . Enfin, en guise d'illustration, la colonne (E) donne le résultat du calcul mené dans l'approximation de Born-Oppenheimer, ainsi qu'elle a été définie au paragraphe 6.1.3. Toutes les énergies sont données en MHz.

v	(A) Expérience	(B) $E_{v,J}$	(C) ϵ^{Ret}	(D) ϵ^{Rad}	(E) E_{BO}
5	-	-2.487	-0.78	+0.053	-3.768
4	-18.2 ± 0.5	-18.12	-1.6	+0.28	-22.55
3	-79.6 ± 0.5	-79.41	-2.6	+0.95	-90.46
2	-253.3 ± 0.5	-252.9	-3.9	+2.4	-275.3
1	-648.5 ± 0.5	-648.3	-5.2	+5.3	-687.8
0	-1430 ± 20^a	-1417.6	-6.6	+10.3	-1480

^a Le niveau $v = 0$ est inaccessible avec notre montage de modulateurs acousto-optiques. L'incertitude est donc celle qui accompagne la mesure moins précise réalisée à l'aide de la cavité Fabry-Pérot.

La colonne (A) rassemble les mesures expérimentales des énergies de liaison, après l'application des corrections discutées ci-dessus. La colonne (B) donne le résultat des énergies de liaison issues de la résolution de l'équation de Schrödinger radiale (6.15). Compte tenu de l'incertitude expérimentale on peut conclure à un excellent accord entre la théorie et l'expérience, en particulier pour les niveaux vibrationnels $v = 1$ à $v = 4$.

Comme la raie moléculaire $v = 5$ est très proche de la raie atomique, elle n'est pas mesurable directement. Cependant, un champ magnétique B_0 suffisamment élevé peut les séparer l'une de l'autre. En effet, l'effet Zeeman décale la raie atomique de $1 \times \mu B_0$, et la raie moléculaire de $2\mu B_0$ (voir la discussion du paragraphe 7.2). Le champ B_0 nécessaire pour séparer suffisamment les deux raies est légèrement en dehors de la gamme de champ que nous avons explorée mais reste tout à fait réalisable dans notre expérience. Cette mesure

reste donc éventuellement à faire. Jusqu'à maintenant la raie $v = 5$ s'est manifestée comme un léger épaulement sur le flanc rouge de la raie atomique et aucune mesure systématique n'a été engagée. La raie $v = 0$ est en revanche plus délicate à mesurer avec la même précision car le désaccord correspondant est inaccessible avec notre montage de modulateurs acousto-optiques en cascade. Elle n'a pu être observée que par la méthode la moins précise qui consiste à mesurer la fréquence du laser de PA à l'aide de la cavité Fabry-Perot (voir le paragraphe 5.2.1). Néanmoins, l'accord entre expérience et théorie reste bon compte tenu de la barre d'erreur estimée.

La progression ro-vibrationnelle $J=3$ n'a pas été observée. On peut comprendre cela de la façon suivante. Étant donnée la valeur importante du rayon de Condon auquel la transition se produit, l'état électronique de la paire juste après l'absorption reste sensiblement le même que celui d'une paire d'atomes sans interaction (cas (c) de Hund). Le moment cinétique électronique total prend donc la valeur 1 ($2^3S_1 + 2^3P_0$). De plus le transfert d'impulsion du photon absorbé n'est pas suffisant pour donner du moment cinétique de rotation à la paire. On s'attend donc à observer majoritairement la progression $J = 1$. Ainsi, lors de la première acquisition du spectre complet, par la méthode permettant un balayage large, rien n'a été détecté aux fréquences auxquelles sont attendues les raies correspondant à $J = 3$ (voir le tableau 7.1). Ce spectre ayant été acquis avec un rapport signal/bruit typique de l'ordre de 5 à 6 (voir la figure 5.6), on en conclut que la progression $J = 3$ est au moins 5 à 6 fois moins intense que la progression $J = 1$. Cependant, la détection calorimétrique des raies moléculaires à l'aide d'un laser de PA asservi sur la raie D_0 offre un rapport signal/bruit bien supérieur (voir la figure 5.8-c), de l'ordre de 20 ou plus. Il pourrait être intéressant d'aller sonder autour des fréquences attendues, pour éventuellement détecter cette progression, ou contraindre d'avantage la borne supérieure donnée ici pour leur intensité relative. Ceci n'a pas encore été fait.

7.3.2 Mise en évidence de l'effet de retard

L'influence de l'effet de retard dans l'interaction dipôle-dipôle est illustrée par la quantité ϵ^{Ret} , colonne (C) du tableau 7.3. ϵ^{Ret} est la différence entre 1) l'énergie de liaison calculée en écrivant $f(R) = 1$ et $g(R) = 1$ dans l'expression 6.10 (sans effet de retard), et 2) l'énergie de liaison $E_{v,J}$ calculée avec l'expression exacte pour $f(R)$ et $g(R)$. La prise en compte de l'effet de retard augmente la profondeur du puits de potentiel, et donc également les énergies de liaison ($\epsilon^{Ret} < 0$). Comparé au calcul non retardé ($f(R) = 1$ et $g(R) = 1$), l'effet de retard apporte une correction proportionnelle à R^2 en valeur relative, mais à $1/R$ en valeur absolue. Ainsi, l'effet devient très important en valeur relative pour les états liés très étendus (jusqu'à 30 % pour $v = 5$), et il est plus important en valeur absolue pour les états moins allongés ($\epsilon^{Ret} = -6.6$ MHz pour $v = 0$). Compte tenu de la précision expérimentale, ce travail est une nouvelle démonstration de l'effet de retard dans l'interaction dipôle-dipôle résonante, qui doit être pris en compte pour reproduire les énergies de liaison mesurées. Nous avons déjà signalé que cet effet avait été démontré dans les alcalins (en 1996, voir par exemple [121]).

7.3.3 Validité de l'approche adiabatique

La correction apportée au potentiel électronique effectif par la prise en compte de la vibration des noyaux est illustrée par le terme ϵ^{Rad} dans le tableau 7.3, colonne (D). La quantité ϵ^{Rad} présentée est la différence entre les énergies de liaison calculées avec et sans le terme $\langle \phi_{J,\Omega_u^\pm} | \partial^2 / \partial R^2 | \phi_{J,\Omega_u^\pm} \rangle$ dans l'équation (6.15). Ce terme représente une part de l'énergie cinétique du système. Il apporte donc une contribution positive au potentiel électronique effectif et décale “vers le haut” les états liés dans le puits de potentiel. Il prend des valeurs non nulles dans la région où l'état électronique change de caractère, du cas (a) au cas (c) de Hund, à cause de l'anti-croisement discuté précédemment, c'est-à-dire au voisinage du fond du puits. Ainsi, la correction est plus importante pour les états liés les plus profonds, puisqu'ils s'étendent peu en dehors de cette région. En revanche les états les moins liés s'étendent jusqu'à des distances plus grandes auxquelles l'état électronique ne dépend plus de R (cas (c) de Hund quasi pur), et l'effet sur l'énergie de liaison est donc nettement moindre.

De manière plus grossière, l'influence des couplages ro-vibrationnels peut être illustrée en calculant les énergies de liaison dans le cadre de l'approximation de Born-Oppenheimer, telle qu'elle a été présentée au paragraphe (6.1). On obtient alors les énergies E_{BO} présentées dans la colonne (E) du tableau 7.3, et calculées en résolvant l'équation:

$$\left(-\frac{\hbar^2}{m} \frac{d^2}{dR^2} + \frac{\hbar^2 J(J+1)}{mR^2} + V(R) - E \right) u(R) = 0 ,$$

où $J = 1$ et $V(R)$ est le puits de potentiel à purement longue portée 0_u^+ obtenu dans l'approximation des noyaux fixes (voir le paragraphe 6.4). Les énergies de liaison E_{BO} négligent donc à la fois les termes dits de Coriolis (rotation de la molécule) et le terme $\langle \phi_{J,\Omega_u^\pm} | \partial^2 / \partial R^2 | \phi_{J,\Omega_u^\pm} \rangle$ (vibration de la molécule, illustrée par ϵ^{Rad}). Seule la barrière centrifuge est considérée, en assimilant $\vec{\ell}$ à $\vec{J}$.

Comparaison avec le calcul multivoie

L'approximation adiabatique donne des résultats en excellent accord avec l'expérience. Cependant, telle que nous l'avons décrite, elle néglige les termes de couplages non diagonaux entre sous-espaces Ω différents. Nous pouvons vérifier par le calcul que l'erreur commise est en réalité plus petite que l'incertitude expérimentale.

Pour cela, il est nécessaire de résoudre complètement le système d'équations 6.7. Remarquons que ces équations impliquent le couplage possible entre des états liés des puits de potentiels considérés, et le continuum d'autres puits de potentiels. Il s'agit donc d'un système infini d'équations couplées. Des méthodes numériques existent dans lesquelles le continuum est discrétisé. L'une de ces méthodes, appelée méthode de grille, est basée sur une résolution des équations différentielles par transformation de Fourier discrète [125]. Elle a été appliquée en collaboration avec le groupe de F. Masnou-Seeuws du Laboratoire Aimé Cotton (Orsay), pour calculer les énergies de liaison des états liés dans le puits 0_u^+ [126]. Les résultats de ce calcul, réalisé avec la même valeur pour C_3 (voir le paragraphe 6.3.1), sont reportés dans le tableau 7.4, colonne “Multivoie (I)”. Ils sont en excellent accord avec les déterminations expérimentales (rappelées dans la première colonne du tableau 7.4). En outre, ils ne diffèrent

TAB. 7.4 – *Energies de liaison des états ro-vibrationnels $J = 1$, $v = 0$ à 5 dans le puits de potentiel à purement longue portée 0_u^+ : comparaison entre l'approximation adiabatique décrite dans cette thèse, et les résultats théoriques de calculs multivoies résolvant l'ensemble du système d'équations couplées (6.7). Les deux premières colonnes reprennent les résultats du tableau 7.3. La colonne “Multivoie (I)” donne le résultat obtenu par la méthode de grille, en collaboration avec le laboratoire Aimé Cotton [126]. La colonne “Multivoie (II)” donne les résultats obtenus par Venturi *et al.* [136]. Les énergies sont données en MHz.*

v	Expérience	Calcul adiabatique	Multivoie (I)	Multivoie (II)
5	-	-2.487	-2.58	-2.59
4	-18.2 ± 0.5	-18.12	-18.27	-18.30
3	-79.6 ± 0.5	-79.41	-79.57	-79.65
2	-253.3 ± 0.5	-252.9	-252.97	-253.12
1	-648.5 ± 0.5	-648.3	-648.26	-649
0	-1430 ± 20	-1417.6	-1417.72	-1418.1

que très peu des résultats obtenus par l'approximation adiabatique: les écarts sont inférieurs à 0.2 MHz pour les six états liés.

Depuis l'annonce de nos résultats expérimentaux sur les dimères géants 0_u^+ , Venturi *et al.* [136] ont également publié le résultat d'un calcul multivoie pour les états moléculaires à purement longue portée $\text{He}(2^3S) + \text{He}(2^3P)$. Leur description utilise, tout comme la nôtre, une seule et même valeur de C_3 (indépendamment des trois asymptotes de structure fine) qui diffère de 0.1% de la valeur que nous avons retenue. De plus ils donnent la valeur de C_6 et incorporent le terme en C_6/R^6 dans l'interaction électromagnétique. Aucun commentaire n'est donné sur la méthode numérique de résolution. Ils obtiennent également des résultats en excellent accord avec l'expérience, qui sont reportés dans la colonne “Multivoie (II)” du tableau 7.4. La différence entre les deux valeurs de C_3 retenues dans les deux calculs suffit à elle seule à expliquer le faible écart entre les résultats des colonnes “Multivoie (I)” et “Multivoie (II)” (voir le paragraphe 7.3.4). En particulier, l'influence négligeable du terme en C_6/R^6 pour les dimères géants est démontrée par le calcul de Venturi *et al.*, conformément à l'estimation que nous en avons faite au paragraphe 7.1.4. Enfin, Venturi *et al.* appliquent leur calcul aux autres états à purement longue portée, et obtiennent des résultats égaux à ceux présentés dans le tableau 7.1 à mieux que 0.5 MHz près. Cela confirme la validité de l'approche adiabatique pour les autres puits de potentiel à purement longue portée.

La raison pour laquelle l'approche adiabatique est si bonne, dans le cas des dimères géants d'hélium, est que la région classiquement autorisée dans les puits de potentiels correspondants est éloignée de toute autre courbe de potentiel. Les couplages ro-vibrationnels négligés entre les différents états électroniques sont donc très faibles. L'approche adiabatique peut en revanche s'avérer moins performante pour décrire les états liés observés dans le rouge de D_2 où plusieurs puits de potentiels s'approchent et se croisent, conduisant probablement à des états liés d'énergies voisines couplés entre eux. Ce problème sera discuté au chapitre 8.

7.3.4 Mesure de la durée de vie radiative de $\text{He}(2^3P)$

Outre les écarts de structure fine, extrêmement bien mesurés dans le cas de $\text{He}(2^3P)$, C_3 est le seul paramètre qui intervient dans la description des dimères géants. Ainsi le bon accord entre l'expérience et la théorie constitue une confirmation expérimentale de la valeur de C_3 utilisée. Il est facile de calculer les nouvelles énergies de liaison obtenues après une petite variation de C_3 , et on montre alors qu'une variation de 0.1% de C_3 change les énergies de liaison d'au plus 0.3 MHz (le niveau $v = 1$ est le plus affecté, en valeur absolue). Compte tenu de la précision expérimentale, on estime donc que la valeur de C_3 est confirmée à 0.2 % près. À l'aide de la relation 6.12, on en déduit alors la durée de vie radiative τ de $\text{He}(2^3P)$:

$$\tau = 1/\Gamma = \frac{1}{2\pi \times (1.625 \pm 0.003) \text{ MHz}} = 97.9 \pm 0.2 \text{ ns} .$$

Signalons que, dans le cas de $\text{He}(2^3P)$ les valeurs théoriques de τ sont *a priori* bien plus précises [40] (et en accord avec le résultat présent). Cependant, à notre connaissance, cette mesure est actuellement la détermination *expérimentale* la plus précise de la durée de vie radiative de $\text{He}(2^3P)$.

7.4 Mécanismes de la détection calorimétrique

Ce paragraphe décrit les observations expérimentales du phénomène de chauffage induit par la photo-association, et propose un mécanisme possible pour ce chauffage. Précisons de nouveau que ce chauffage, détecté lorsque le laser de PA est résonant avec une raie moléculaire, a été observé aussi bien dans le rouge de D_2 que dans le rouge de D_0 . Toutefois, dans ce paragraphe, nous nous limitons aux observations faites dans le rouge de D_0 pour deux raisons. Tout d'abord, c'est dans cette gamme de fréquence uniquement que nous avons accumulé des données précises en asservissant le laser de PA, et ensuite, l'interprétation quantitative est facilitée par la connaissance précise des états moléculaires à purement longue portée excités dans cette région. Cependant, au cours de cette thèse, le phénomène de chauffage n'a pas été étudié de manière systématique, et seules des conclusions préliminaires sont proposées. L'interprétation semi-quantitative développée ci-dessous est encore assez largement une hypothèse de travail qui devra être confirmée par quelques expériences simples qui restent à réaliser.

7.4.1 Observations expérimentales de l'effet "calorimétrique"

La figure 7.6 illustre la détection calorimétrique de la raie $(0_u^+, v = 3)$. Un nuage est préparé à 6 μK et à la densité de $\sim 10^{13} \text{ cm}^{-3}$. Il est illuminé par une impulsion de PA de faible intensité $\simeq I_{\text{sat}}/2$ pendant des temps d'exposition variables, puis maintenu dans le piège pendant une durée de 200 ms, permettant au nuage de s'échauffer lorsque le laser de PA est résonant avec la raie moléculaire. Sur la figure 7.6-a, le temps d'exposition est de 2 ms, aucune perte n'est détectée, et l'élévation de température est voisine de 6 μK . Pour la figure 7.6-b, le temps d'exposition est doublé, et on peut constater que l'élévation de température est doublée également. On devine qu'un signal de pertes semble "vouloir" sortir du bruit, ce qui

conduit à estimer ces pertes à une valeur proche du rapport signal/bruit, soit $\simeq 10\%$. Enfin, pour la figure 7.6-c, le temps d'exposition est encore doublé. Alors les pertes sont mesurables et estimées à 20%. En revanche la température n'est plus doublée, et la raie mesurée est sensiblement plus large. Cette dernière figure semble indiquer un phénomène de saturation du processus calorimétrique.

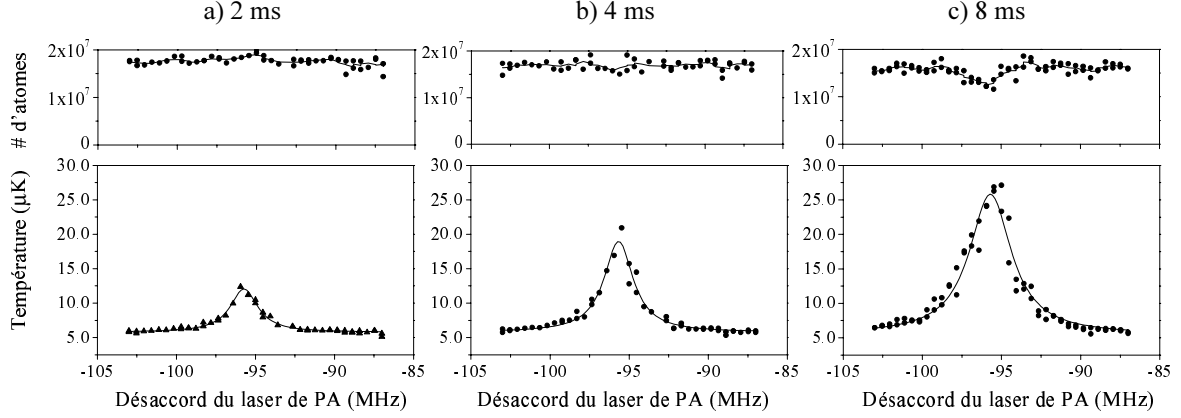


FIG. 7.6 – Illustration de l'élévation de température induite par la photo-association, en fonction du temps d'exposition du laser de PA. Un nuage est produit à une température de $6\mu K$, et une densité de $\sim 10^{13} \text{ cm}^{-3}$. Le laser de PA est accordé au voisinage de la raie moléculaire (0_u^+ , $v = 3$), et son intensité est voisine de $\sim I_{\text{sat}}/2$. La durée de l'impulsion de PA est a) 2 ms, b) 4 ms and c) 8 ms. Après cette impulsion, le nuage est maintenu dans le piège magnétique 200 ms supplémentaires pendant lesquelles sa température peut augmenter. Les pertes d'atomes engendrées par la photo-association sont a) non détectables b) $\sim 10\%$ (limite de la détection) c) $\sim 20\%$. L'augmentation de la température est ajustée par une lorentzienne de largeur a) $2.2 \pm 0.2 \text{ MHz}$ b) $2.4 \pm 0.2 \text{ MHz}$ et c) $3.3 \pm 0.3 \text{ MHz}$. À résonance avec la raie moléculaire, l'augmentation de température maximale est de a) $6 \mu K$ b) $13 \mu K$ and c) $20 \mu K$. Entre les figures b) et c), bien que le temps d'exposition soit doublé, ce n'est plus le cas de l'augmentation de température, et la courbe de chauffage est sensiblement élargie, ce qui indique une éventuelle saturation du processus de chauffage du nuage atomique.

Lorsque les pertes engendrées par le laser de PA sont faibles, n'entraînant quasiment aucune variation de densité ni de température du gaz *pendant* la durée de l'impulsion laser, le nombre de molécules produites est proportionnel au temps d'exposition du laser de PA. On déduit donc des figures 7.6-a et 7.6-b que l'élévation de température est proportionnelle au nombre de molécules formées. Ainsi le signal de température est proportionnel à la forme de la raie moléculaire, et c'est la raison pour laquelle nous pouvons l'ajuster par une lorentzienne, dont la largeur constitue une mesure de la durée de vie des molécules produites. Lorsque les pertes engendrées sont plus importantes, (figure 7.6-c), un élargissement sensible de la courbe de température est observé, qui peut être compris de la façon suivante. Si les pertes deviennent conséquentes à résonance, la densité du nuage est diminuée et le processus de thermalisation qui suit est d'autant plus lent. Une thermalisation plus lente à résonance que dans les ailes de la raie moléculaire conduit alors à un signal de température élargi. Nous pensons donc que cet élargissement résulte de la dynamique de la thermalisation, qui varie selon l'écart à la résonance du laser de PA.

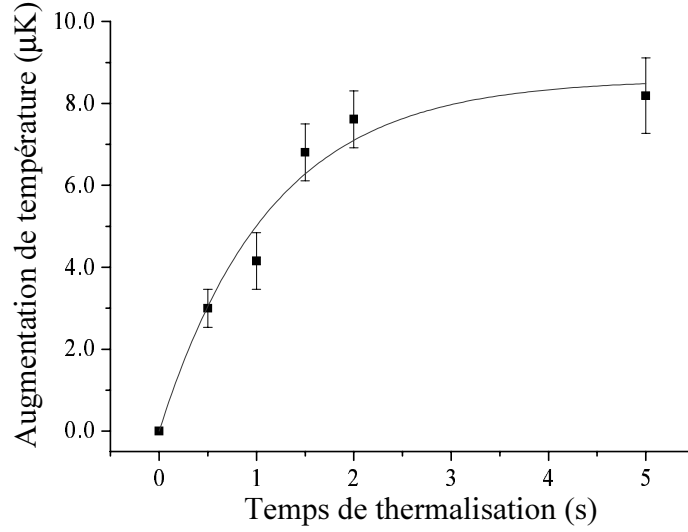


FIG. 7.7 – Illustration de l’augmentation de la température du nuage piégé, en fonction du temps de piégeage, après une impulsion de PA d’intensité $\simeq I_{\text{sat}}/3$ pendant 10 ms. Le nuage initialement préparé a une densité de $\simeq 3 \times 10^{12} \text{ cm}^{-3}$, et une température de $\simeq 3.5 \text{ } \mu\text{K}$. Les données sont ajustées par une courbe exponentielle dont la constante de temps est de $1.4 \pm 0.3 \text{ s}$. Par ailleurs, dans cette expérience, aucune perte d’atomes n’est détectée, qui soit induite par l’impulsion de PA.

Dans une autre série d’expériences, nous avons étudié, pour une impulsion de PA d’intensité et de durée fixées, l’élévation de la température du gaz en fonction du temps du piégeage (ou de thermalisation) qui suit l’impulsion laser de PA. Nous nous sommes placé dans des conditions où les pertes induites par photo-association sont faibles, et où l’on peut donc raisonnablement supposer que le signal de température reproduit la forme de la raie moléculaire. Ainsi, nous produisons un nuage de densité $\simeq 3 \times 10^{12} \text{ cm}^{-3}$ relativement faible, à une température voisine de $3.5 \text{ } \mu\text{K}$. De plus l’intensité de l’impulsion de PA est faible $\simeq I_{\text{sat}}/3$ et sa durée est suffisamment courte pour que, dans ces conditions aucune perte d’atomes engendrée par l’impulsion de PA ne soit détectable. (Compte tenu du rapport signal/bruit de nos expériences, on peut dire dans ce cas que les pertes par photo-association sont inférieures à $\simeq 10\%$.) Après l’impulsion laser, nous maintenons le nuage piégé pendant un temps de thermalisation fixé, et mesurons ses dimensions après coupure du champ magnétique, et expansion ballistique. Des courbes expérimentales analogues à celles de la figure 7.6-a sont donc tracées pour différents temps de thermalisation. Ces courbes sont ajustées par des lorentziennes dont la hauteur et la largeur sont tracées en fonction du temps de thermalisation. Cette expérience a été effectuée au voisinage de la raie $(0_u^+, v = 2)$. On peut alors faire deux observations. Tout d’abord, la largeur de la lorentzienne est indépendante du temps de thermalisation dans ces conditions, et vaut $2.5 \pm 0.3 \text{ MHz}$. De plus, la dépendance de l’augmentation de température à résonance, en fonction du temps de thermalisation est reportée sur la figure 7.7. Un temps caractéristique de thermalisation τ peut être extrait, en ajustant les données par une courbe exponentielle décroissante. Dans les conditions de cette

expérience nous obtenons $\tau = 1.4 \pm 0.3$ s.

Ce temps de thermalisation est beaucoup plus grand que celui qui caractérise les échanges d'énergie entre atomes ultra-froids à l'intérieur du gaz, et qui est, dans les conditions expérimentales présentes, de l'ordre de quelques 10 ms. De plus, nous avons pu vérifier que le chauffage peut être inhibé si un couteau radio-fréquence est maintenu qui tronque le potentiel de piégeage du nuage atomique, après l'impulsion de photo-association. Nous en déduisons que la formation de molécules conduit à la production d'un nuage d'atomes rapides, qui restent piégés (c'est-à-dire un nuage de Oort [86]) et sont capables de communiquer leur énergie au nuage ultra-froid, sur des échelles de temps pouvant dépasser la seconde, dans le cas d'un nuage relativement peu dense (figure 7.7).

7.4.2 Largeur de raie

Dans les expériences où les pertes induites par la PA sont suffisamment faibles, nous pouvons assimiler la largeur des courbes de chauffage au taux de désexcitation des molécules, soit 2.5 ± 0.3 MHz. La durée de vie correspondante est $1/(2\pi \times 2.5 \text{ MHz}) \simeq 60$ ns.

Le taux de désexcitation par émission spontanée des dimères géants produits dans l'état 0_u^+ peut être estimé théoriquement de la façon suivante. D'après la figure 7.1, à la limite des grandes distances inter-atomiques R , où les molécules sont formées et où elles se désexcitent préférentiellement, l'état électronique à purement longue portée 0_u^+ se décompose ainsi sur la base du cas (a) de Hund: $^5\Pi_u: 1/3$, $^3\Pi_u: 1/3$, $^5\Sigma_u: 2/9$, et $^1\Sigma_u: 1/9$. Les coefficients donnés ici sont simplement les $c_i^2(R)$, pour $i = 1, 4$, et $R \rightarrow \infty$ (voir le paragraphe 7.1.1). Or les taux de désexcitation radiative de chaque état propre du cas (a) de Hund sont soit 2Γ , soit 0. En effet, les transitions dipolaires électriques entre états électroniques purs du cas (a) ne peuvent se faire qu'entre états de même spin total, et seulement de *ungerade* vers *gerade*. Ainsi, les composantes singulets et quintuplets se désexcitent vers les états moléculaires $^1\Sigma_g^+$ et $^5\Sigma_g^+$ du système $2^3S + 2^3S$ avec un taux 2Γ , alors que les composantes triplets ne peuvent se désexciter puisque le seul état triplet accessible, $^3\Sigma_u^+$ est *ungerade* (voir la construction des états moléculaires du système $2^3S + 2^3S$ à l'annexe C). On en déduit que le taux de désexcitation radiatif d'un état 0_u^+ est proche de $(1/3 + 2/9 + 1/9) \times 2\Gamma + 1/3 \times 0\Gamma = 4/3 \Gamma \simeq 2\pi \times 2.17$ MHz. En réalité, les niveaux vibrationnels existants dans le puits 0_u^+ ont des valeurs faibles de v , et l'approximation selon laquelle l'élément de matrice dipole électrique de la molécule peut être estimé en $R = R_C$ est discutable. En effet plus v est faible, plus la région autour de R_C dans laquelle la transition peut se produire est large. Si l'on estime l'élément de matrice dipole électrique pour des distances R plus faibles, la composante triplet de 0_u^+ est plus faible, et le taux de désexcitation correspondant est plus proche de 2Γ . Une estimation précise de la durée de vie radiative de ces dimères doit prendre en compte la dépendance en R de l'élément de matrice dipolaire électrique de la molécule, ce qui en principe devrait conduire à une durée de vie sensiblement plus courte pour les états vibrationnels les plus liés. Cependant, la précision avec laquelle nous pouvons mesurer la largeur des raies moléculaires est certainement insuffisante pour distinguer ces différences, et nous retiendrons que le taux de désexcitation radiatif attendu pour les dimères géants 0_u^+ est voisin de $2\pi \times 2.2$ MHz au minimum. La mesure expérimentale de la largeur des raies est en accord avec cette estimation, ce qui confirme que la désexcitation se fait principalement par un processus radiatif, plutôt

que par auto-ionisation.

Remarquons enfin que les raies moléculaires observées dans le rouge de D_2 sont dans l'ensemble plus larges, jusqu'à quelques dizaines de MHz, laissant penser que l'ionisation Penning devient un processus de désexcitation important pour certaines de ces molécules (voir le chapitre 8).

7.4.3 Interprétation semi-quantitative du chauffage

Désormais, nous supposons pour simplifier que chaque dimère géant se désexcite exclusivement en une paire d'atomes métastables. Nous pouvons alors montrer par un calcul simple que l'énergie libérée lors de cette désexcitation suffit à expliquer le taux de chauffage observé, malgré le faible nombre de molécules produites.

Lorsque deux atomes sont liés dans un dimère géant, ils subissent un potentiel d'interaction à bien plus longue portée que celui qu'ils subissent dans l'état $S + S$. Dans une image classique, ils sont donc fortement accélérés l'un vers l'autre et acquièrent une énergie cinétique importante dépendant de la profondeur du puits de potentiel 0_u^+ et de leur énergie de liaison. Dans une approche plus quantique, la paire d'atomes liés est caractérisée par une distribution en énergie cinétique relative, déduite par transformation de Fourier de la fonction d'onde ro-vibrationnelle correspondante. Lorsque la molécule se désexcite radiativement, chaque atome emporte la moitié de cette énergie cinétique relative. Des atomes rapides sont produits, qui, s'il sont dans l'état Zeeman magnétiquement piégé, constituent le nuage de Oort mis en évidence expérimentalement.

Le tableau 7.5 donne les valeurs moyennes $\langle T^{Rad} \rangle$ et $\langle T^{Rot} \rangle$ de l'énergie cinétique relative vibrationnelle et rotationnelle des molécules produites dans l'état $0_u^+, J = 1$. En notant $|\chi_v\rangle$ la fonction d'onde vibrationnelle et $|\Phi_{J,\Omega_{u/g}^\pm}\rangle$ l'état électronique, on définit:

$$\begin{aligned} \langle T^{Rad} \rangle &= \langle \chi_v | \langle \Phi_{J=1,0_u^+} | \left(-\frac{\hbar^2}{mR} \frac{\partial^2}{\partial R^2} R \right) | \Phi_{J=1,0_u^+} \rangle | \chi_v \rangle \\ \langle T^{Rot} \rangle &= \langle \chi_v | \langle \Phi_{J=1,0_u^+} | \left(\frac{\vec{\ell}^2}{mR^2} \right) | \Phi_{J=1,0_u^+} \rangle | \chi_v \rangle. \end{aligned} \quad (7.12)$$

L'état $|\Phi_{J=1,0_u^+}\rangle$ est donné par l'expression 7.2, et en représentation $\{\vec{R}\}$, les fonctions d'ondes $\langle \vec{R} | \chi_v \rangle = u_v(R)/R$ sont obtenues à partir des fonctions $u_v(R)$ représentées sur la figure 7.2.

Lorsqu'un dimère géant se désexcite, chaque atome emporte une énergie cinétique moyenne $(\langle T^{Rad} \rangle + \langle T^{Rot} \rangle)/2$ qui dépend de l'état vibrationnel considéré, et peut atteindre plus de 10 mK pour $v = 1$ (voir le tableau 7.5). Une étude quantitative du chauffage qui en résulte nécessite de calculer la distribution en énergie cinétique de ces atomes rapides, et d'estimer la probabilité qu'ils ont de rester piégés.

Le calcul le plus simple consiste à ne considérer que l'énergie cinétique relative de vibration, puisqu'elle est donnée par la transformée de Fourier à une dimension des fonctions d'onde vibrationnelles $u(R)$ représentées sur la figure 7.2. Il y a deux raisons à cette simplification: la première est que l'énergie cinétique de vibration représente la majeure partie de l'énergie cinétique relative totale, ainsi que le montre le tableau 7.5, et la seconde est

TAB. 7.5 – Énergies cinétiques relatives moyennes de vibration et de rotation dans les états moléculaires du puits de potentiel à purement longue portée 0_u^+ , pour $J = 1$. Les quantités $\langle T^{Rad} \rangle$ et $\langle T^{Rot} \rangle$ sont calculées selon les formules 7.12 pour chaque état vibrationnel $v = 0, \dots, 5$, et sont données en unité de k_B , en milliKelvin.

v	$\langle T^{Rad} \rangle$	$\langle T^{Rot} \rangle$
5	0.78	0.10
4	3.35	0.36
3	8.73	0.89
2	16.0	1.76
1	20.3	2.99
0	12.9	4.52

que la prise en compte de la partie rotationnelle rend techniquement bien plus compliquée la transformée de Fourier à trois dimensions de la fonction d'onde ro-vibrationnelle. Pour les états vibrationnels les moins liés, l'énergie cinétique de vibration représente jusqu'à 90% de l'énergie cinétique totale de la paire. Nous assimilons donc la distribution en impulsion relative $P_v(q)$ à la transformée de Fourier à une dimension de la fonction d'onde $u_v(R)$. La figure 7.8 représente les distributions obtenues pour les états vibrationnels $v = 0$ à $v = 4$.

Chaque dimère géant produit, en se désexcitant, deux atomes emportant chacun l'énergie cinétique $\hbar^2 q^2 / (2m)$, avec $\hbar q$ l'impulsion relative des noyaux au sein de la molécule. Une estimation grossière peut alors être obtenue en considérant que chacun de ces atomes a une probabilité $1/3$ d'être produit dans l'état Zeeman piégé $m = +1$, et $2/3$ d'être perdu ($m = 0$ ou $m = -1$). Le nombre d'atomes produits dans l'état Zeeman piégé est donc deux fois plus faible que le nombre d'atomes perdus. Parmi ces atomes $m = +1$, seuls participent au chauffage ceux qui ont une énergie cinétique initialement inférieure à la profondeur du piège (de $k_B \times 10$ mK), et qui par conséquent restent piégés. Les autres sont évaporés et ne participent pas à l'échauffement du gaz ultra-froid. Ainsi, le nuage de Oort créé par photo-association est constitué de la proportion $\kappa(v)$ d'atomes produits dans l'état $m = +1$ avec une impulsion inférieure à q_{max} défini par $\hbar^2 q_{max}^2 / (2m) = k_B \times 10$ mK.

Considérons par exemple la situation expérimentale concrète illustrée par la figure 7.6-b. Les pertes à résonance peuvent être estimées à $\Delta N = N \times 10\%$. Par conséquent, on estime que $\Delta N / 2 = N \times 5\%$ atomes "chauds" sont produits dans l'état $m = +1$. Dans le cas $v = 3$, la probabilité d'avoir $q < q_{max}$ peut être calculée à l'aide de la fonction de distribution $P_{v=3}(q)$, et vaut $\kappa(v = 3) = 87\%$. Alors, l'énergie cinétique moyenne des atomes produits avec une impulsion inférieure à q_{max} est donnée par:

$$\varepsilon(v = 3) = \int_0^{q_{max}} \frac{\hbar^2 q^2}{2m} P_{v=3}(q) dq \simeq k_B \times 1.27 \text{ mK}.$$

En supposant une thermalisation complète, l'énergie cinétique des atomes du nuage de Oort est redistribuée entre les $6N$ degrés de liberté du nuage ultra-froid. Ainsi, en écrivant $\Delta N \ll N$, l'augmentation de température ΔT du gaz ultra-froid peut être estimée de la manière suivante:

$$\frac{\Delta N}{2} \times \kappa(v) \times \varepsilon(v) = 6N \times \frac{1}{2} k_B \Delta T. \quad (7.13)$$

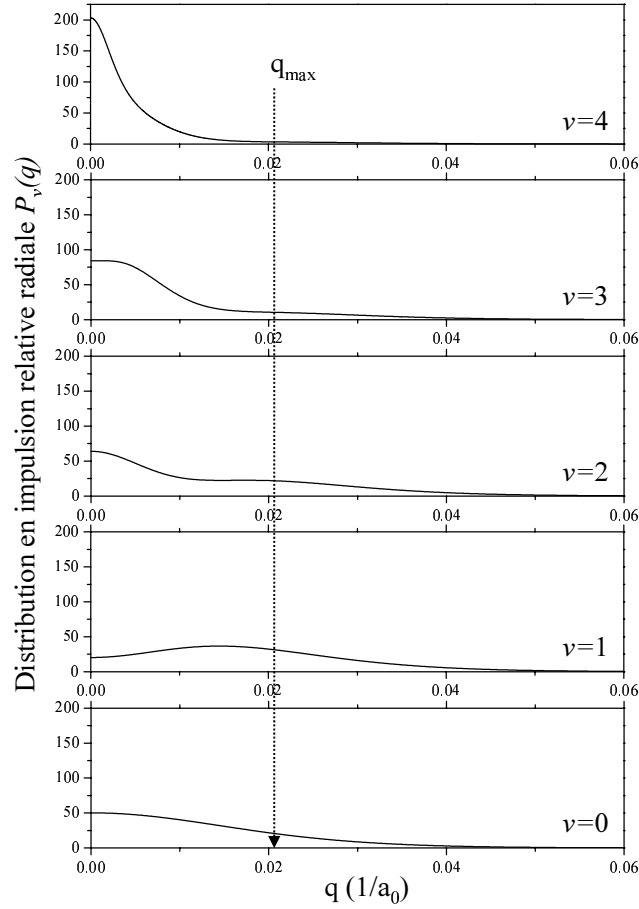


FIG. 7.8 – Représentation des distributions en impulsion relative radiale des cinq niveaux vibrationnels $v = 0$ à $v = 4$ dans le puits à purement longue portée 0_u^+ . La flèche verticale en pointillé représente l'impulsion qui correspond à une énergie cinétique égale à la profondeur du piège magnétique, soit 10 mK.

Dans le cas $v = 3$ avec $\Delta N/N = 10\%$ (Figure 7.6-b), on en déduit $\Delta T \simeq 18 \mu\text{K}$. Ce chiffre est plus élevé de 50% que l'élévation de température effectivement mesurée sur la figure 7.6-b. Outre que ce calcul est approché, cette surestimation peut très bien être due à une thermalisation incomplète du nuage ultrafroid dans le cas précis de l'expérience reproduite sur cette figure.

Le résultat de ce calcul montre que la désexcitation radiative de relativement peu de molécules peut tout à fait expliquer le chauffage observé. Une comparaison quantitative nécessiterait de s'assurer que la thermalisation est complète, en réalisant des expériences du type de celle illustrée par la figure 7.7. Cependant, en l'absence de modélisation du taux de photo-association et du nombre de molécules produites, cette analyse n'est possible que si des pertes sont également mesurables (10% au minimum).

7.4.4 Discussion

Toujours dans l'hypothèse où la désexcitation est uniquement radiative, nous pouvons également estimer le rôle des atomes rapides produits dans les états non piégés. En effet, comme ces atomes sont dans un état de spin non piégé, ils sont susceptibles d'engendrer des collisions Penning avec un taux de collision redoutable, puisque l'argument d'inhibition ne fonctionne plus pour ces atomes (voir le chapitre 1). Le cas échéant, des pertes supplémentaires et un chauffage additionnel dû aux collisions secondaires déjà évoquées au chapitre 3, sont à prendre en compte.

La probabilité qu'un atome produit dans un "mauvais" état de spin, à une vitesse V , génère une collision Penning avant de sortir du nuage ultra-froid peut être estimée par: $p = \beta \langle nl \rangle / V$, où $\beta = 2 \times 10^{10} \text{ cm}^3/\text{s}$ est le taux de perte par collision Penning dans un échantillon non polarisé, et $\langle nl \rangle \simeq 2 \times 10^{14} \text{ m}^{-2}$ la densité de colonne moyenne du gaz. Compte tenu de l'énergie cinétique des atomes produits par la désexcitation des dimères géants, la vitesse V a une valeur moyenne de $\langle V \rangle \simeq 4.4 \text{ m/s}$ pour $v = 3$, et on en déduit que $p \simeq 1\%$. Ainsi les pertes supplémentaires induites par ces atomes sont négligeables. Le chauffage moyen induit par ce pour cent de collisions Penning peut également être estimé en considérant la probabilité pour que des collisions secondaires exothermiques se produisent, conformément à la discussion du paragraphe 3.3.2. On obtient alors une contribution négligeable de l'ordre de quelques dizaines de nanoKelvin à l'augmentation de température du nuage ultra-froid.

En définitive, l'observation expérimentale du chauffage induit par l'impulsion de photo-association semble être bien interprétée par l'hypothèse de la production d'un nuage de Oort consécutivement à la désexcitation radiative des dimères géants. Remarquons également que ce modèle d'un nuage de Oort produit qui chauffe le nuage ultra-froid rejoint la discussion précédente sur le taux de chauffage observé en fin de rampe d'évaporation (voir le paragraphe 3.3.2). Seul le mécanisme de production du nuage de Oort diffère: ici, les atomes chauds proviennent des dimères géants qui se désexcitent après l'impulsion du laser de PA, alors que là, les atomes chauds provenaient de collisions secondaires entre les ions produits par les collisions inélastiques et les atomes ultra-froids piégés. La possibilité offerte par la photo-association, de produire presque instantanément un nuage de Oort dont la distribution en énergie cinétique est connue pourrait être exploitée pour étudier la dynamique de l'échange d'énergie entre le nuage ultra-froid et le nuage de Oort.

7.4.5 Conclusion

Nous avons interprété le chauffage déclenché par le laser de PA, comme dû à la production d'un nuage de Oort constitué d'atomes rapides issus de la désexcitation radiative des dimères géants. La distribution d'énergie cinétique de ces atomes rapides permet de caractériser le nuage de Oort ainsi produit, et d'en déduire le chauffage maximum qu'il peut induire sur le nuage ultra-froid.

Il ressort de cette étude que les intensités relatives des raies de photo-association mesurées par la méthode calorimétrique ne peuvent être comparées entre elles que si l'on s'est assuré de la thermalisation complète du gaz ultra-froid. En effet, la "hauteur" du signal de température ne dépend pas que du taux de photo-association, mais aussi du temps de thermalisation. Les

spectres enregistrés au cours de cette thèse ont été réalisés avec des temps de thermalisation arbitraires suffisants pour conduire à un signal facilement détectable, mais les intensités relatives des raies ne sont pas comparables entre elles. Afin de comparer les intensités relatives des raies, des mesures doivent être refaites soit avec la méthode calorimétrique, et en s'assurant de la thermalisation complète du gaz, soit en mesurant directement des pertes. Cette seconde méthode est affranchie du problème de la thermalisation éventuellement incomplète, mais offre un rapport signal/bruit sensiblement moins bon.

Par ailleurs, des expériences complémentaires sont nécessaires pour confirmer ce modèle de chauffage. Tout d'abord, un détecteur d'ions apporterait un diagnostic complémentaire précieux, permettant de confirmer (ou d'infirmer, mais ce serait une surprise dans le cas des dimères géants) la décroissance radiative des dimères. De plus, le chauffage maximal décrit ici dépend du niveau vibrationnel excité, puisque l'énergie cinétique moyenne des atomes du nuage de Oort $\kappa(v) \times \varepsilon(v)$, et redistribuée aux atomes ultra-froids, dépend du nombre quantique v . Pour les états vibrationnels $v = 4, 3$ et 2 , on calcule $\kappa(v) \times \varepsilon(v) = 0.62$ mK, 1.10 mK, et 1.24 mK respectivement. Cette variation avec v reste à vérifier. L'expérience à faire consisterait à produire des pertes faibles mais mesurables (entre 10 et 20 %) identiques pour un laser de PA résonant avec différentes raies moléculaires, puis à mesurer l'élévation maximale de température correspondante. Cette mesure serait obtenue, par exemple, en traçant des courbes du type de celle reproduite sur la figure 7.7 et en extrapolant la température asymptotique atteinte par le gaz ultra-froid aux temps de thermalisation longs. L'observation d'un taux de chauffage dépendant du niveau vibrationnel excité apporterait une preuve convaincante pour confirmer le modèle de chauffage décrit ci-dessus. L'effet de la densité du gaz froid initial sur le temps de thermalisation peut aussi être étudié. En effet, pour un pourcentage de pertes identiques, on s'attend à ce que l'élévation de température soit d'autant plus rapide que le nuage ultra-froid est plus dense. En effet, le taux de transfert d'énergie entre le nuage de Oort et le gaz ultra-froid est *a priori* proportionnel à la densité de colonne du gaz ultra-froid $\langle nl \rangle$.

Chapitre 8

Interprétation préliminaire du spectre dans le rouge de D_2

La figure 5.4 est reproduite ci-dessous qui montre une portion de spectre obtenu dans le rouge de D_2 . On peut y constater que ce spectre est constitué de raies (spectre “discret”) au dessus d’un fond de pertes non résonantes (spectre “continu” donnant une forme dissymétrique à la raie atomique). Tout d’abord, ce fond de pertes a déjà été décrit, lors de travaux menés à Utrecht et semble être la contribution de collisions Penning assistées par lumière. Nous présentons succinctement l’interprétation de ces pertes non résonantes, mais

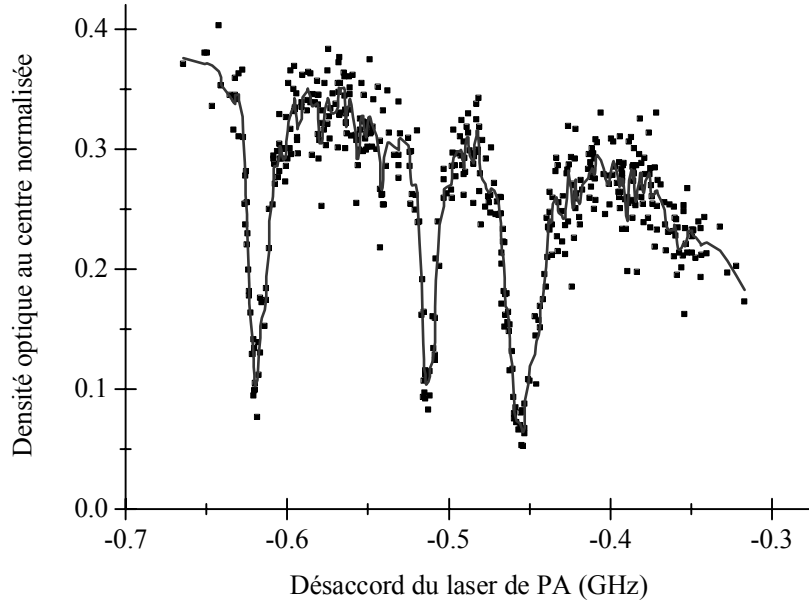


FIG. 8.1 — Exemple de spectre observé dans le rouge de D_2 . Un nuage est préparé à la température de $\simeq 15\mu K$, et à une densité voisine de 10^{13} at/cm³. Le temps d’exposition du laser de PA est de 70 ms, et son intensité est $\sim I_{sat}$. La courbe continue est une moyenne glissante sur 5 points adjacents, pour guider l’oeil.

en l'absence de détection ionique dans notre expérience, aucune confirmation ou infirmation ne peut être apportée. Ensuite, les composantes discrètes du spectre peuvent être interprétées à l'aide de la méthode dite de “la phase accumulée”, qui ne nécessite que la connaissance de la partie asymptotique des potentiels d'interaction. Nous présenterons les résultats encore préliminaires obtenus en appliquant cette méthode à l'étude du spectre mesuré dans le rouge de D_2 .

8.1 Spectre de raies et “fond” de pertes non résonantes

8.1.1 Introduction

Le sort des molécules produites dépend de leur état de spin. En effet, un état moléculaire singulet ou triplet a une probabilité très importante de s'auto-ioniser par un processus de type Penning. On peut même considérer que cette probabilité atteint 1 lorsque les noyaux explorent la partie interne de leur potentiel d'interaction (en deçà de quelques $10 a_0$). En revanche, un état quintuplet, à cause de la conservation quasi-parfaite du spin, ne s'ionise qu'avec une probabilité typiquement 5 ordres de grandeurs plus faible [23]. Aux très grandes distances interatomiques, typiquement aux distances auxquelles une paire absorbe un photon, les états de spins sont mélangés par l'interaction de structure fine. Lorsque la distance internucléaire diminue, l'état électronique d'une paire devient un état quasi-pur du cas (a) de Hund, dont l'état de spin est bien défini. Dans le rouge de D_0 , les courbes de potentiel attractives déterminées au chapitre 6 sont les parties externes de puits de potentiel dont la partie interne est inconnue. L'interprétation des spectres exposée ci-dessous repose sur l'idée simplificatrice qu'un état électronique qui devient purement singulet ou triplet à courte distance s'ionise avec une probabilité de 1 au bout d'une demi-oscillation, et qu'à l'inverse un état quintuplet ne subit pas d'ionisation (du moins pas avant de se désexciter radiativement). Cette description “binaire” simplifiée peut être considérée comme une approximation à l'ordre 0. En réalité des couplages non pris en compte (tels que le couplage spin-spin responsable de la relaxation de l'état de spin [23], ou les couplages ro-vibrationnels qui couplent les différents états de spin entre eux) compliquent la description. Toutefois, qualitativement au moins, on peut s'attendre à ce que la physique soit correctement décrite par cette approche simplifiée.

8.1.2 Collisions Penning assistées par lumière

Les pertes non résonantes, observées dans le rouge de la transition atomique, ont été interprétées par le groupe de P. van der Straten (Utrecht) comme des collisions Penning assistées par lumière (voir le chapitre 6 de [33], ainsi que [43]). Le mécanisme de ces pertes non résonantes peut être compris de la façon suivante.

La fonction d'onde d'une paire atomique en interaction peut être considérée comme la superposition d'un paquet d'onde entrant et d'un paquet d'onde sortant. Lorsque l'énergie de la paire est inférieure à l'asymptote du potentiel d'interaction, des états liés stationnaires existent pour certaines énergies. Ces énergies sont précisément celles pour lesquelles l'interférence entre paquet d'onde entrant et paquet d'onde sortant est constructive à l'intérieur du puits de potentiel. Dans le cas d'une paire d'atomes d'hélium dans un état électronique

excité singulet ou triplet, l’ionisation Penning se produit à courte distance, et aucun paquet d’onde ne ressort jamais de la région interne. Le phénomène d’interférences décrit ci-dessus n’existe donc pas, qui puisse construire des états liés à certaines énergies, et interdire les autres énergies. Ainsi, dans ce type de puits, pour des énergies plus petites que l’asymptote du potentiel d’interaction, l’énergie des états accessibles est donc toujours un continuum. Les collisions Penning sont donc responsables d’un spectre continu et large dans le rouge de l’asymptote atomique.

L’existence de ce continuum d’états autorise une description quasi-classique de la collision (voir par exemple le modèle de Gallagher et Pritchard [101]). Alors, la dépendance de ces pertes non résonantes avec le désaccord δ du laser de photo-association vient simplement de la variation avec δ de la probabilité d’exciter une paire d’atomes séparés d’une distance R donnée. En effet, la distance R_C à laquelle la paire est excitée de manière non résonante est fixée par $\delta: h \times \delta = C_3/R_C^3$. Pour $\delta = 0.5$ GHz (valeur typique dans le cas de la figure 8.1), on obtient $R_C \simeq 400 a_0$. Or la distance moyenne entre atomes dans un nuage de densité 10^{13} cm^{-3} est typiquement 20 fois plus grande. Le nombre de paires distantes de $400 a_0$ est donc relativement faible. Cependant, plus δ diminue, plus R_C augmente, et plus le nombre de paires excitées augmente également. C’est ainsi que les pertes non-résonantes augmentent lorsqu’on approche de la résonance.

À l’aide de cette description, le groupe d’Utrecht a pu reproduire de manière quantitative les signaux d’ions observés dans le rouge de D_2 (voir en particulier le chapitre 6 de [33]). Il en résulte une interprétation microscopique des taux d’ions produits dans un nuage de He^* en présence de lumière quasi-résonante. En particulier, la forme asymétrique de la raie atomique est très bien expliquée ainsi: dans le rouge de la raie atomique les collisions Penning sont responsables de pertes jusqu’à des désaccords éventuellement élevés, dépendant de l’intensité et du temps d’exposition du laser de PA. En revanche, dans le bleu de la raie, seuls des potentiels répulsifs existent. Non seulement ces potentiels répulsifs ne conduisent à aucune ionisation Penning supplémentaire, mais ils peuvent même être responsables d’une inhibition partielle des collisions Penning, selon le mécanisme déjà mentionné au paragraphe 5.1.

8.1.3 Composantes discrètes du spectre

Huit puits de potentiels *ungerade* sont *a priori* candidats pour interpréter les spectres de raies observés dans le rouge de la raie atomique D_2 . La figure 8.2 représente la partie asymptotique connue de ces huit puits. Elle est extraite de la figure 6.3, et présente donc les courbes de potentiel issues de l’approximation des noyaux fixes. Dans le cadre de cette approximation, les huit potentiels attractifs de la figure 8.2 se séparent en deux groupes correspondant à deux types de comportements aux distances faibles. Quatre potentiels tendent vers un état $^3\Pi_u$ (en $-C_3/R^3$) à courte distance, les quatre autres vers des états $^5\Sigma_u^+$ et $^1\Sigma_u^+$ qui sont des états attractifs (en $-2C_3/R^3$) dégénérés du cas (a) de Hund (voir le tableau 6.2).

A priori, toujours selon l’idée que des états triplets et singulets s’ionisent avec une probabilité unité à très courte distance inter-nucléaire, seuls les potentiels qui contiennent une composante quintuplet sont des bons candidats pour interpréter le spectre de raies observé. La contamination éventuelle par une composante singulet conduit alors à un élargissement

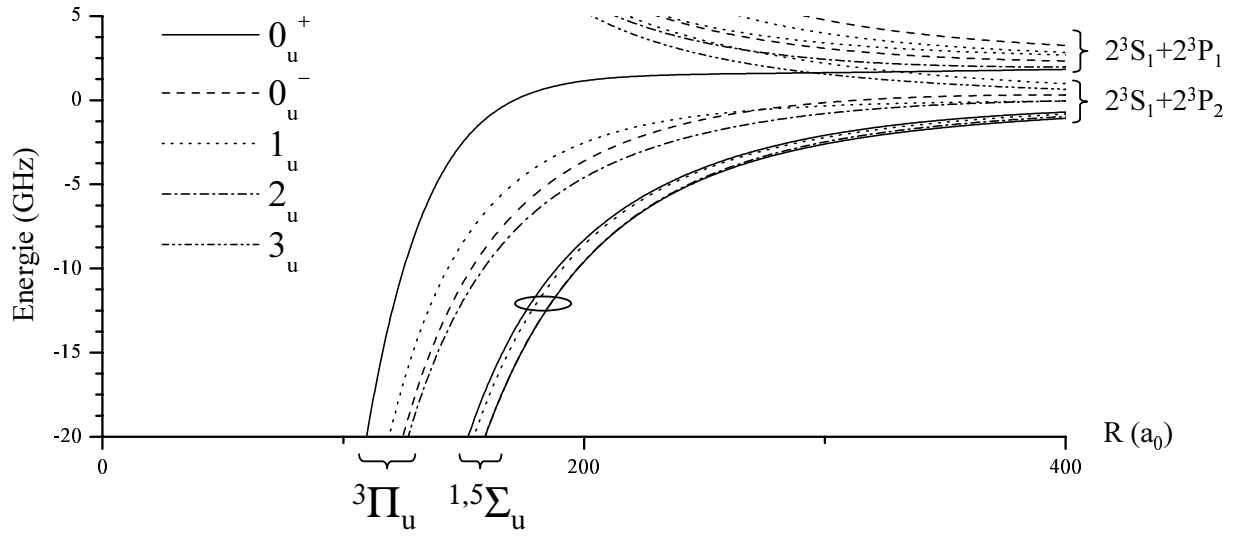


FIG. 8.2 – Courbes de potentiel ungerade dans le rouge de D_2 , dans l'approximation des noyaux fixes. Les quatre états qui deviennent $^3\Pi_u$ à courte distance ne donnent lieu à aucune raie moléculaire détectée, et sont plus probablement responsables de pertes non résonantes dues à des collisions Penning assistées par lumière. Les quatre autres états, qui sont entourés d'une ellipse, sont a priori les "bons candidats" pour interpréter les raies moléculaires observées dans nos expériences (voir dans le texte). Deux d'entre eux sont des états 2_u et 1_u , qui deviennent tous les deux des états purs $^5\Sigma_u^+$ à courte distance. Les deux autres sont des états 0_u^+ qui deviennent à courte distance une combinaison linéaire d'états singulets et quintuplets: $1/3 \ ^5\Sigma_u^+$ et $2/3 \ ^1\Sigma_u^+$ pour l'un, et $2/3 \ ^5\Sigma_u^+$ et $1/3 \ ^1\Sigma_u^+$ pour l'autre.

des raies à cause du mécanisme de désexcitation par auto-ionisation. En revanche, les quatre potentiels qui deviennent de purs états $^3\Pi_u$ conduisent à une ionisation certaine de la paire lorsque la distance inter-nucléaire décroît suffisamment. Ces derniers potentiels ne contiennent pas d'états liés discrets mais un continuum d'états qui contribuent aux pertes non résonantes dues aux collisions Penning assistées par lumière.

8.2 Identification des raies observées dans le rouge de D_2

L'ensemble des puits de potentiel connectés à l'asymptote $2^3S_1 + 2^3P_2$ ont une partie répulsive à très courte distance, mal connue, et non décrite par notre approche asymptotique. Dans ces conditions, l'interprétation du spectre mesuré dans le rouge de D_2 est rendue délicate par l'impossibilité de calculer la positions des états liés. Cependant, pour les états liés les plus proches du seuil de dissociation, la partie asymptotique du potentiel suffit en principe à déterminer l'écart en énergie entre niveaux vibrationnels successifs. En particulier, si l'énergie de liaison d'un état lié est mesurée, la position des autres états liés dans le même potentiel peut en être déduite en connaissant uniquement la partie asymptotique du potentiel. Ainsi des méthodes existent qui permettent, dans certains cas, d'identifier les spectres obtenus, sur la base de la seule partie asymptotique du potentiel. La *méthode de la phase accumulée*

[111, 33] est l'une de ces méthodes.

8.2.1 Principe de la méthode de “la phase accumulée”

Le principe de la méthode de la phase accumulée est illustré par la figure 8.3. Elle représente des fonctions d'ondes vibrationnelles correspondant à des états liés proches du seuil de dissociation, dans un même puits de potentiel infiniment profond devant l'écart d'énergie entre ces niveaux. On peut alors constater qu'aux petites distances, toutes les fonctions d'ondes sont identiques en dessous d'une certaine distance inter-atomique. En effet, si l'écart entre les niveaux est suffisamment petit devant la profondeur du puits, tous ces niveaux vibrationnels “voient” sensiblement le même mur vertical de potentiel aux courtes distances, et la phase accumulée par les fonctions d'ondes depuis l'origine est sensiblement la même pour tous les états les moins liés de ce puits de potentiel.

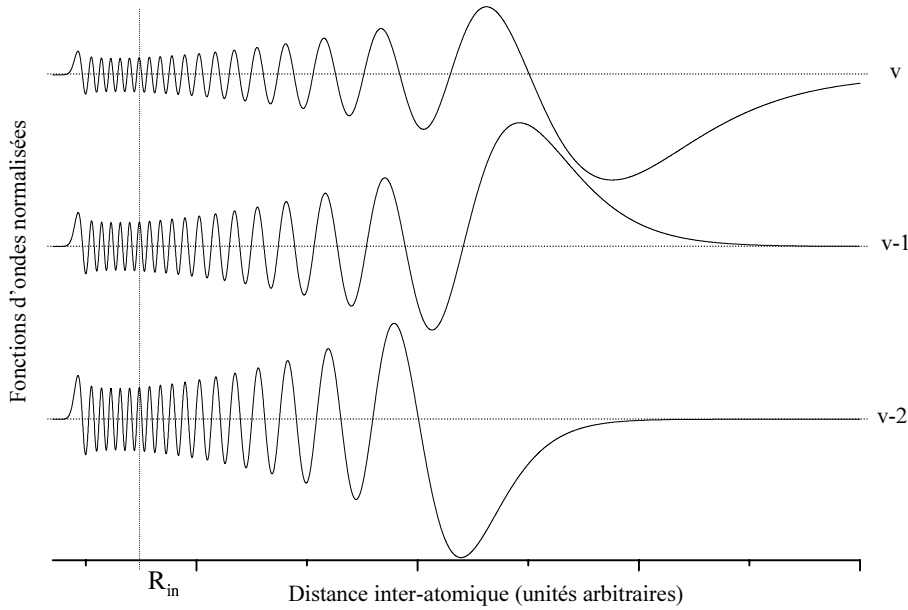


FIG. 8.3 – Illustration du principe de la méthode d’accumulation de phase. Le puits de potentiel $V(R)$ utilisé pour calculer ces fonctions d’ondes n’a qu’une valeur d’illustration, et pas de réalité physique quantitative. Ces fonctions d’ondes correspondent à trois niveaux vibrationnels v , $v - 1$ et $v - 2$, qui ont des énergies de liaison typiquement 1000 fois moindre que la profondeur du puits. On constate que seule la partie externe des fonctions d’ondes diffère d’un niveau vibrationnel à l’autre. En particulier, à la distance R_{in} , $|V(R_{in})|$ peut être considéré comme infiniment grand devant l’énergie de liaison des états vibrationnels représentés, et la phase accumulée depuis l’origine par les trois fonctions d’ondes est la même.

Mathématiquement, la situation illustrée par la figure 8.3 s’exprime dans le cadre de l’approximation quasi-classique [95, 112]. En effet, les fonctions d’onde vibrationnelles correspondant à des états liés d’énergie E petite devant la profondeur du puits de potentiel peuvent

être assimilées, loin des points de rebroussement classiques, à des sinusoides:

$$u(R) \simeq \sin(kR + \varphi_0) \text{ , avec } k = \sqrt{m(E - V(R))/\hbar^2} \text{ ,} \quad (8.1)$$

$V(R)$ étant le potentiel effectif d'interaction. On peut constater, sur la figure 8.3, que l'approximation sinusoidale est bonne au voisinage du point R_{in} où $|E| \ll |V(R_{in})|$. La phase de la fonction d'onde en R s'écrit alors:

$$\varphi(R) = kR + \varphi_0 = \arctan \left(\frac{k u(R)}{\frac{du}{dR}(R)} \right) \quad (8.2)$$

Le développement limité de k (expression 8.1), pour $E/V(R_{in}) \ll 1$, conduit donc, à l'ordre 0, à une phase $\varphi(R)$ constante indépendante de E , et en particulier du nombre quantique de vibration v . À l'ordre suivant, la phase de la fonction d'onde en R_{in} est une fonction *linéairement croissante* de E .

Maintenant, si l'on connaît la seule partie asymptotique du puits de potentiel, ainsi que l'énergie de liaison d'un état vibrationnel proche du seuil de dissociation, les énergies de liaison des états vibrationnels voisins peuvent en être déduites. En effet, on peut intégrer numériquement l'équation de Schrödinger radiale depuis l'infini, vers l'intérieur, en fixant l'énergie à celle du niveau lié connu dans le puits de potentiel. L'intégration doit être poursuivie jusqu'à un point R_{in} où le puits peut être considéré comme infiniment profond devant la séparation entre les niveaux. Puis on en déduit la phase de la fonction d'onde $u(R)$ de ce niveau vibrationnel à partir de la formule 8.2, estimée en R_{in} . Alors, les fonctions d'ondes des autres états liés du même puits doivent avoir la même phase en R_{in} . Si l'on reprend alors l'intégration de l'équation de Schrödinger depuis l'infini, vers l'intérieur, en imposant la phase de la fonction d'onde en R_{in} comme condition aux limites, on peut, à l'inverse, en déduire l'énergie de liaison des états vibrationnels voisins.

8.2.2 Application au spectre observé dans le rouge de D_2

D'après ce qui précède, parmi les énergies de liaison déterminées expérimentalement, celles qui correspondent à des états liés appartenant à un même puits de potentiel doivent toutes conduire à la même phase accumulée dans ce puits de potentiel. Ainsi en intégrant l'équation de Schrödinger depuis l'infini jusqu'en R_{in} fixé, dans tous les potentiels candidats, et pour toutes les énergies mesurées, on peut espérer repérer des séries de raies qui rassemblent les états liés conduisant à une même phase accumulée dans un potentiel donné. Le cas échéant, chaque série est alors "identifiée" comme appartenant à un potentiel précis. Nous présentons ci-dessous les résultats préliminaires de cette analyse, dans le cas de la composante discrète du spectre observé dans le rouge de D_2 .

Pour chacun des 8 potentiels effectifs déterminés par l'approximation adiabatique décrite précédemment, nous traçons, en fonction de l'énergie de liaison des raies considérées, la phase accumulée par la fonction d'onde depuis l'infini jusqu'en R_{in} fixé. Nous avons constaté que le résultat reste qualitativement le même pour R_{in} quelconque entre $20 a_0$ et $50 a_0$.

Pour le puits de potentiel 2_u , qui tend à courte distance vers $^5\Sigma^+$, nous observons deux séries de raies disposées selon des droites quasi-horizontales de pentes positives (voir figure

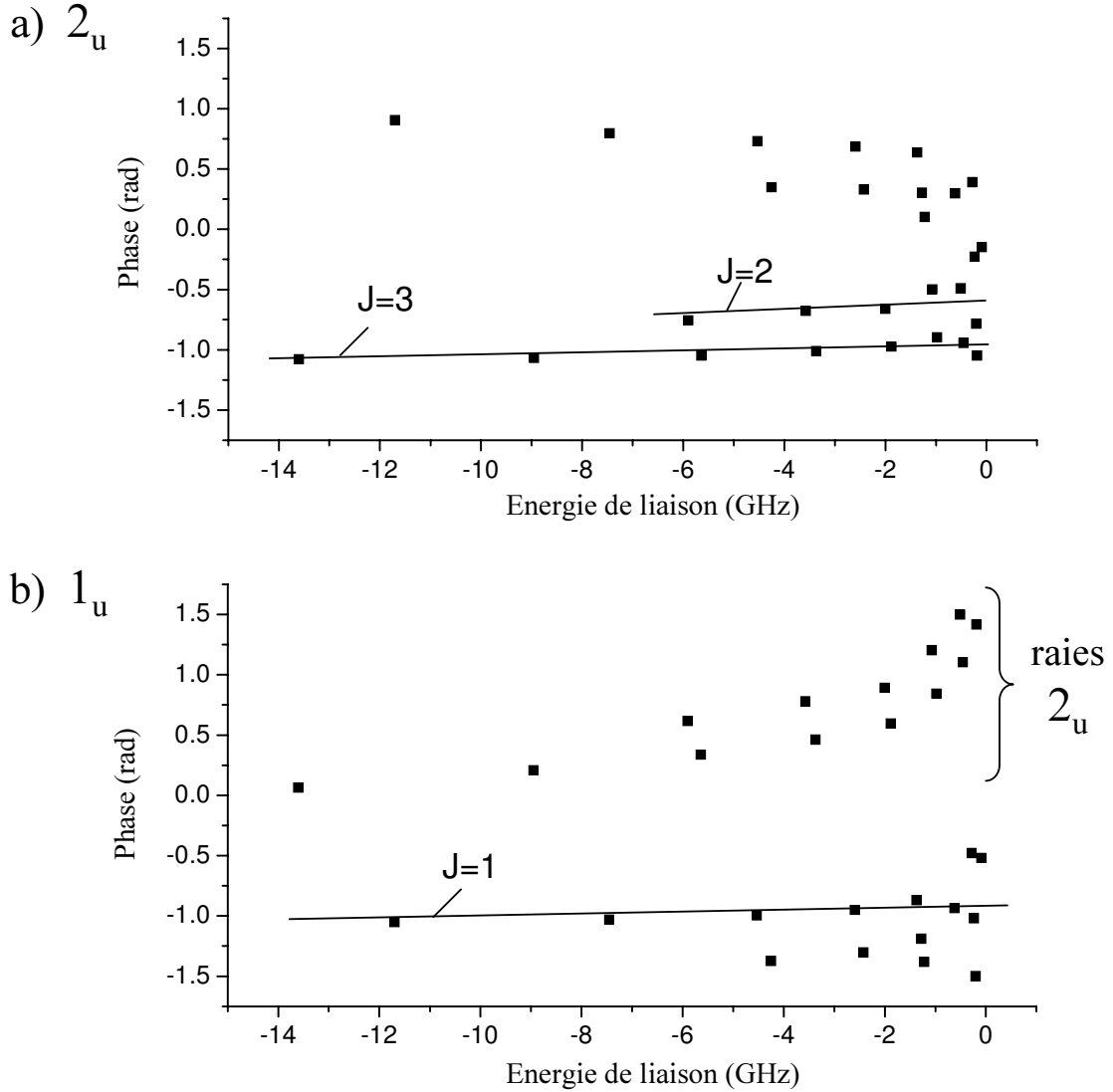


FIG. 8.4 – Résultats préliminaires de l'identification par la méthode de la phase accumulée. Pour l'ensemble des raies observées, la phase de la fonction d'onde en $R_{in} = 20 a_0$ est tracée en radians, en fonction des énergies de liaison en GHz.

a) Résultat obtenu pour la courbe de potentiel 2_u qui tend vers l'état pur ${}^5\Sigma_u^+$ à courte distance (voir la figure 8.2). Deux séries de raies sont disposées selon des droites quasi-horizontales, de pentes positives. Les écarts entre les couples de raies adjacentes de ces séries correspondent aux écarts rotationnels attendus: ces deux séries sont donc identifiées comme étant les séries rotationnelles $J = 2$ et $J = 3$, dans le puits de potentiel 2_u .

b) Résultat obtenu pour la courbe de potentiel 1_u qui tend vers l'état pur ${}^5\Sigma_u^+$ à courte distance. Une série peut être clairement identifiée (le résultat présenté est celui obtenu en supposant $J = 1$). Les deux séries de raies déjà identifiées sur la figure a) comme appartenant au puits de potentiel 2_u sont nettement moins bien alignées ici.

8.4-a). De plus les écarts entre deux raies adjacentes appartenant chacune à l'une des deux séries correspond à l'écart rotationnel attendu pour $J = 2$ et $J = 3$.

Pour le puits de potentiel 1_u qui tend également vers $^5\Sigma^+$ à courte distance, nous observons qu'une autre série de raies est correctement disposée selon une droite quasi-horizontale de pente positive (voir figure 8.4-b). Cette série peut donc être identifiée comme étant la série 1_u , $J = 1$. Cependant, cette seconde identification est moins certaine que celle des raies provenant du puits 2_u pour deux raisons. La première est que si l'on trace le même graphe pour le potentiel 0_u^+ le plus proche du 1_u qui nous intéresse, on peut observer la même série de raies alignées (avec qualitativement la même précision); cette série semble donc pouvoir également être attribuée à ce potentiel 0_u^+ . La seconde raison est que si l'on observe expérimentalement la série (1_u , $J = 1$), on peut s'attendre à observer également les progressions $J = 2$ et $J = 3$. Sur la figure (8.4-b), les points situés au dessous de la série identifiée représentent très probablement ces séries. Cependant, compte tenu du manque de données dans la région des désaccords plus élevés (au delà de -5 GHz) on ne peut conclure de manière univoque et identifier clairement toutes les raies.

8.2.3 Conclusion

À ce stade préliminaire de l'interprétation du spectre mesuré dans le rouge de D_2 , sont retenues comme constituant une "série" les raies qui ont une phase lentement et linéairement variable dans les quatre potentiels qui tendent vers des états Σ . Ainsi toutes les raies mesurées dans le rouge de -0.3 GHz sont identifiées comme appartenant à l'une de ces séries. Le tableau 8.1 dresse le bilan actuel, encore préliminaire, de notre interprétation du spectre observé dans le rouge de D_2 .

Il est probable que l'ensemble des raies observées correspondent uniquement aux potentiels 1_u et 2_u , malgré l'incertitude qui réside toujours entre 1_u et 0_u^+ . En effet, les potentiels 1_u et 2_u sont les seuls qui deviennent purement $^5\Sigma_u^+$ à courte distance, et qui conduisent donc à des molécules peu sensibles à l'auto-ionisation. On peut s'attendre à ce que les autres potentiels (0_u^+ en particulier) conduisent à des raies notablement élargies à cause d'une durée de vie limitée par auto-ionisation. Un tel élargissement pourrait suffire à rendre ces raies indétectables dans notre expérience actuelle.

Un premier défaut de l'identification que nous proposons est qu'elle s'appuie sur un calcul adiabatique monovoie qui, contrairement au cas des dimères géants peut s'avérer assez imprécis. Les potentiels considérés ne sont pas isolés, et les couplages ro-vibrationnels peuvent éventuellement devenir conséquents, en particulier pour les états vibrationnels les moins liés qui, même s'ils appartiennent à des potentiels adiabatiques différents, sont énergétiquement très voisins les uns des autres. C'est probablement la raison pour laquelle notre approche permet d'identifier plus efficacement les raies les plus désaccordées, alors que les raies les plus proches de la transition atomique (entre -0.3 et 0 GHz) restent difficiles à identifier. Ces résultats pourraient donc être repris et interprétés à l'aide d'un calcul multivoie, ce qui pourraient nécessiter la collaboration de théoriciens.

Ensuite, dans le rouge de -6 GHz, le spectre ayant été accumulé par morceaux, des régions sont restées inexplorées dans notre expérience et un certain nombre de raies manquent certainement dans notre spectre. Cette identification préliminaire pourraient servir à prédire

TAB. 8.1 – *Bilan préliminaire de l'identification du spectre observé dans le rouge de la raie atomique D_2 , par la méthode d'accumulation de phase, à partir des potentiels effectifs calculés dans l'approximation adiabatique. Les raies moléculaires observées sont distribuées dans 4 séries différentes, appartenant chacune à l'un des quatre potentiels attractifs d'asymptote D_2 vers les R grands et ayant une composante $^5\Sigma$ vers les R petits. Deux séries sont identifiées avec certitude comme étant dues au potentiel 2_u . Les deux autres séries proposées correspondent probablement au potentiel 1_u ou au potentiel 0_u^+ situé à son voisinage immédiat. Les raies moléculaires comprises entre la raie atomique et -0.3 GHz n'ont pas pu être identifiées de manière univoque.*

2_u $J = 2$	2_u $J = 3$	1_u ou 0_u^+ $J = 1$ $J > 1$
		-0.09
		-0.185
		-0.200 (?)
		-0.235
		-0.280
-0.51	-0.455	-0.62
-1.07	-0.98	-1.22 ou -1.275
-2.00	-1.88	-1.37
-3.57	-3.37	-2.42
-5.90	-5.64	-4.25
	-8.95	-4.53
	-11.7	-7.45
	-13.67	-11.7

la position des raies manquantes, de manière à vérifier leur existence par l'expérience, et confirmer la fiabilité de l'identification proposée. Ces expériences restent à faire.

Enfin, la confrontation des données accumulées dans cette thèse, et de celles obtenues à Utrecht, devrait permettre de compléter ce spectre, et de faciliter son identification. Ce

travail est encore en cours au moment de la rédaction de ce chapitre.

Chapitre 9

Prolongements

Les expériences de photo-association à un photon menées dans cette thèse ont eu, dans une assez large mesure, un rôle exploratoire, en sondant expérimentalement des niveaux moléculaires excités inconnus jusqu'alors, et en construisant un modèle simple décrivant avec succès les niveaux ro-vibrationnels des molécules produites. Au terme de cette thèse, un certain nombre de voies sont ouvertes qui doivent être approfondies.

Tout d'abord les expériences de photo-association à un seul photon peuvent être poursuivies. Elle permettront d'améliorer la connaissance des interactions binaires élastiques et inélastiques (collisions Penning). Des informations peuvent *a priori* en être déduites sur les collisions assistées par lumière, mais aussi sur les collisions dans l'état $S + S$, et en particulier sur la longueur de diffusion.

Une autre extension évidente de ce travail est de réaliser des expériences de PA à deux photons dans le but de sonder directement les états liés dans le potentiel d'interaction entre deux atomes métastables, conduisant le cas échéant à une mesure précise de la longueur de diffusion. Ces expériences commencent tout juste au moment de la rédaction de ce manuscrit.

Ce chapitre propose donc quelques expériences à faire prochainement dans le but de compléter et/ou d'étendre le travail exposé dans ce manuscrit vers une compréhension améliorée de la physique d'une paire d'atomes d'hélium.

9.1 Proposition d'expériences de photo-association à 1 photon

9.1.1 Compréhension fine des collisions optiques

Une question importante est soulevée par l'expérience illustrée sur la figure 9.1. Elle met en évidence l'existence d'un spectre de PA constitué de raies discrètes, superposées à un fond de pertes non résonantes, dans le rouge de D_0 , de manière analogue à ce qui est observé dans le rouge de D_2 . Le nombre d'atomes ainsi que la température du nuage après l'impulsion de PA et la thermalisation du gaz sont reportés en fonction du désaccord laser. Au plus près de la résonance atomique, le nuage atomique est entièrement "vidé" car la section efficace d'absorption des photons par les atomes devient trop importante. Par conséquent, aucun signal n'est plus détecté. Au voisinage immédiat de cette région un chauffage important est

induit par le taux élevé de cycles d'absorption/émission subis par chaque atome. Dans ces conditions expérimentales, la raie $v = 5$ est noyée dans la résonance atomique également. Seule la raie $v = 4$ apparaît conduisant des pertes supplémentaires d'atomes au voisinage du désaccord -20 MHz (la fréquence mesurée sur ce graphe inclut les décalages induits par le champ magnétique de piégeage et la température finie du gaz).

La principale information apportée par cette figure est que la résonance moléculaire s'accompagne d'un chauffage élevé, *contrairement* aux pertes non résonantes qui ne produisent pas de chauffage significatif. En particulier, sur cet exemple, la température du nuage après l'impulsion laser puis la thermalisation du gaz est la même à -15 MHz et à -40 MHz, alors que les pertes changent d'un facteur quatre. Cette observation montre que deux processus

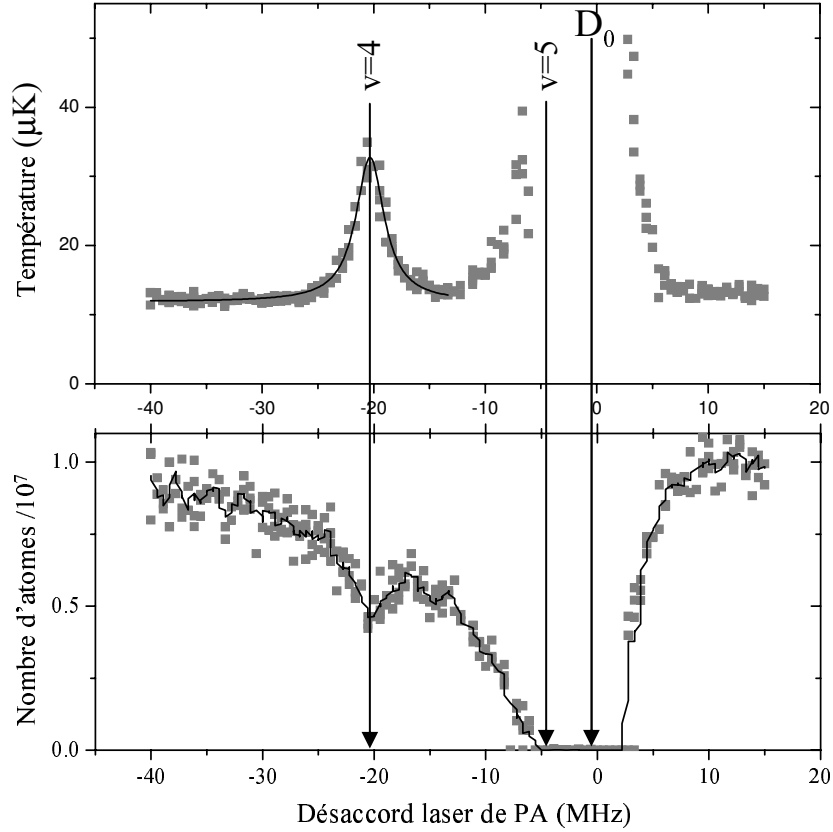


FIG. 9.1 — Spectre obtenu au voisinage de la raie atomique D_0 . La température (en haut) et le nombre d'atomes (en bas) sont tracés en fonction du désaccord du laser de PA par rapport à la raie D_0 en MHz. Le nuage est préparé à une densité voisine de $3 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$. Il est alors illuminé pendant 10 ms avec une intensité laser voisine de I_{sat} . Dans cette expérience, le champ magnétique B_0 au fond du piège magnétique est tel que le décalage Zeeman induit vaut $\mu B_0 = h \times 0.6 \text{ MHz}$. La courbe de température ne peut plus être tracée, entre -7 MHz et +3 MHz car le nombre d'atomes est trop faible, et il n'y a plus de signal à détecter. Les carrés gris sont les points expérimentaux; le trait continu sur la graphie de température est un ajustement lorentzien; le trait continu sur le graphe donnant le nombre d'atomes est une moyenne glissante sur 5 points.

différents entrent en jeu : l'un qui conduit à des pertes et à un chauffage, et l'autre qui conduit à des pertes sans chauffage significatif.

Des observations tout à fait similaires à celles de la figure 9.1 ont été faites dans le rouge de D_2 . Nous avons alors interprété les pertes accompagnées d'une hausse de température comme l'excitation d'états moléculaires discrets, et les pertes non résonantes accompagnées d'aucun chauffage comme des collisions Penning assistées par lumière (voir le chapitre 8). Cependant, dans le rouge de D_0 , seuls deux puits de potentiels sont accessibles (voir la figure 6.3). L'un est répulsif (1_u), l'autre est le puits à purement longue portée 0_u^+ que nous avons abondamment discuté, et aucun n'est attractif jusqu'à courte distance. En particulier, il n'existe pas de potentiel attractif offrant un "continuum" d'états dans le rouge de la transition D_0 qui conduise à une ionisation certaine de la paire, contrairement à ce qui a été discuté dans le rouge de la raie D_2 . Ainsi, bien que la composante discrète du spectre observé dans le rouge de D_0 soit désormais bien comprise (due à l'existence des dimères géants), la composante continue de ce spectre, en revanche, ne semble pas pouvoir être décrite selon le mécanisme de collisions assistées par lumière proposé par G. Woestenenk [33].

Les expériences menées sur un MOT à Utrecht, ont permis de détecter des ions produits de manière asymétrique autour de la raie D_0 , de manière tout à fait analogue à ce qui est observé dans le rouge de la raie D_2 [134]. Il semble donc que des ions soient produits dans le rouge de D_0 , malgré l'absence de potentiel attractif à courte distance connecté à cette asymptote. Cependant, aucune augmentation du signal d'ions n'a été détectée aux fréquences résonantes avec les états liés à purement longue portée. Ces observations sont encore mal comprises.

Il est clair sur cet exemple qu'une détection ionique est nécessaire dans notre expérience pour faire un diagnostic complémentaire et voir si le signal d'ions détecté dans le rouge de D_0 contient ou non les résonances détectées par ailleurs sur le signal de température et sur le signal du nombre total d'atomes. La compréhension de la figure 9.1 nécessite des expériences complémentaires qu'il serait intéressant de réaliser dès qu'un détecteur d'ions aura été introduit dans l'expérience.

Une piste pour interpréter le signal de la figure 9.1 serait d'envisager la possibilité de croisements non adiabatiques entre les courbes d'interaction dipôle-dipôle attractives et répulsives. Il s'agit ici de considérer la probabilité pour qu'une paire excitée dans un état attractif y reste, sans subir l'anti-croisement induit par la structure fine et discuté au chapitre 6. Si cette probabilité est non nulle, on peut envisager que des paires excitées dans le rouge de D_0 continuent d'interagir selon des potentiels attractifs jusqu'à de courtes distances et subissent finalement une ionisation de type Penning. Le calcul de cette probabilité est un développement futur envisageable. Il nécessitera probablement un calcul multivoie puisque les croisements et anti-croisements discutés impliquent plusieurs potentiels (quatre dans le cas du sous-espace 0_u^+). En outre la possibilité d'inclure explicitement les canaux d'ionisation Penning ($\text{He}(1^1S_0) + \text{He}^+$ en particulier) est à étudier pour ce type de calcul.

9.1.2 Interprétation du spectre dans le rouge de D_2

Les données expérimentales accumulées jusqu'alors dans le rouge de D_2 nécessitent de poursuivre le travail entamé sur l'identification des spectres.

En cas d'insuccès, un calcul plus élaboré à multivoie peut s'avérer nécessaire, qui motive-

rait une collaboration avec un groupe de théoriciens rompus à ces techniques. Une amélioration conséquente de la compréhension du système $2^3S + 2^3P$ pourrait découler de la prise en compte du mécanisme d'ionisation Penning dans le modèle à multivoie, et le calcul de la prédissociation qui en résulte. Le cas échéant, une spectroscopie plus fine peut alors être réalisée dans le rouge de D_2 en asservissant le laser de PA sur la raie atomique D_2 , et en utilisant des AOM, de la même manière que ce qui a été réalisé dans le rouge de D_0 . On peut également réfléchir à une autre méthode de balayage de la fréquence laser qui permette d'explorer une plus grande gamme de fréquence. En particulier, la réalisation du battement du laser de PA avec un laser de référence asservi sur la raie atomique devrait permettre d'asservir le laser de PA jusqu'à des désaccords de quelques GHz. Alors des données expérimentales très précises pourraient être accumulées pour tester le modèle théorique multivoie.

9.1.3 Mesure de la longueur de diffusion

Les raies de photo-association à un photon que l'on a obtenu au cours de cette thèse ont des intensités qui, en vertu du principe de Franck-Condon, dépendent de la fonction d'onde dans l'état initial de diffusion. Nous devrions donc en tirer des informations sur a . Malheureusement, nous avons déjà signalé que la détection calorimétrique que nous avons utilisée influence également l'intensité effective des raies moléculaire. La comparaison des intensités relatives n'est possible avec cette méthode que si l'on s'est assuré de la thermalisation complète du gaz, ce qui n'a pas été le cas dans la plupart de nos expériences. De plus le chauffage observé dépend *a priori* de la raie moléculaire observée, puisque la distribution d'énergie cinétique du nuage de Oort produit en dépend. Une compréhension approfondie du mécanisme de chauffage est donc un préalable nécessaire à la comparaison des intensités de raies par cette méthode.

Une solution envisageable pour réaliser les expériences décrites ci-dessous est donc de détecter des pertes d'atomes plutôt que l'échauffement du gaz atomique. Cela suppose des intensités du laser de PA ou des temps d'exposition légèrement plus élevés, conduisant à des pertes facilement mesurables (de l'ordre de 50 %). Dans ces conditions le temps de thermalisation habituellement maintenu après l'impulsion de PA doit être réduit au maximum pour éviter que le nuage ne se dilue trop sous l'effet du chauffage, afin de maintenir un rapport signal/bruit satisfaisant.

À partir du spectre dans le rouge de D_0

La figure 9.2 représente un calcul approché des intensités relatives des raies observées dans le rouge de D_0 , normalisées à l'intensité de la raie $v = 4$, en fonction de la valeur supposée pour a . Ce graphe est obtenu en calculant le carré du recouvrement des fonctions d'ondes vibrationnelles dans le puits 0_u^+ (représentées sur la figure 7.2), avec la fonction $u(R) = a - R$ (avec a variable), qui donne une expression approchée proportionnelle à la fonction d'onde radiale de l'état initial pour les distances interatomiques correspondant aux dimères géants, et pour les très basses températures. La figure 9.2 donne un résultat plus qualitatif que quantitatif. En effet, le calcul précis des intensités relatives nécessite de considérer l'élément de matrice dipôle électrique entre les états moléculaires "complets" (produits des fonctions

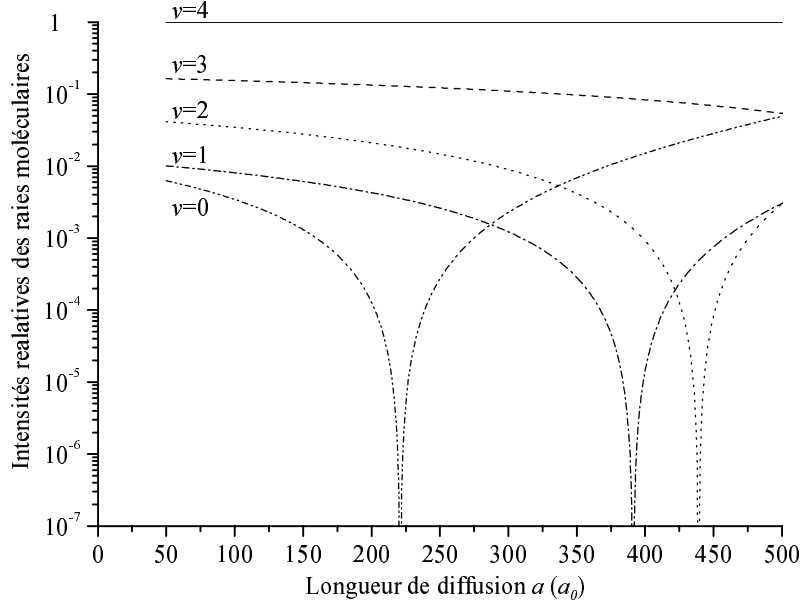


FIG. 9.2 – Estimation des intensités relatives des raies moléculaires $v = 0$ à $v = 4$ associées aux dimères géants 0_u^+ : les facteurs de Franck-Condon sont calculés de manière approchée, en fonction de la longueur de diffusion, et normalisés au cas $v = 4$. On constate alors que la mesure de l'intensité relative des raies, en particulier $v = 0$ et $v = 1$, peut conduire à une détermination éventuellement relativement précise de la longueur de diffusion a si celle-ci est voisine de la région comprise entre $200 a_0$ et $250 a_0$.

d'ondes radiales, rotationnelles et électroniques), et non le seul recouvrement des fonctions d'ondes radiales. Cependant, cette figure montre très clairement que la coïncidence probable de la longueur de diffusion et du minimum du puits de potentiel 0_u^+ peut avoir une incidence spectaculaire sur l'intensité de la raie $v = 0$, et conduire à une mesure relativement précise de a .

Jusqu'alors, la mesure des intensités relatives des raies $v = 0$ à $v = 4$ n'a pas été suffisamment précise pour en déduire avec confiance une valeur précise de a . Tout au plus pouvons-nous assurer que les raies mesurées sont de moins en moins intenses pour v variant de 4 à 0. En particulier, nous savons que $v = 0$ est détectable et moins intense que $v = 1$, ce qui permet de conclure que $a < 300 a_0$, d'après la figure 9.2. Aucune expérience complémentaire n'a été refaite pour extraire plus précisément les intensités relatives des raies, faute de temps. Dans notre expérience, la raie $v = 0$ n'est pas accessible lorsque le laser de PA est asservi. Néanmoins, une méthode plus élaborée de l'asservissement du laser de PA est actuellement en cours de réalisation, qui permettra d'asservir le laser de PA jusqu'à quelques GHz de la raie atomique. Une mesure précise des intensités relatives, en particulier pour les raies $v = 0$ et 1, serait alors possible si l'on s'assure de la bonne thermalisation du nuage ultra-froid, ou si l'on mesure des pertes d'atomes, plutôt qu'une élévation de température. Alors, un calcul plus exact que celui de la figure 9.2 pourra être facilement effectué, qui conduira à une détermination de a vraisemblablement plus précise que les mesures actuelles.

À partir du spectre dans le rouge de D_2

Sous réserve que l'identification des raies moléculaires dans le rouge de D_2 soit conduite à son terme, l'intensité relative des raies constituera aussi une mesure indépendante de a . En effet, on pourra alors, selon le même principe que celui illustré par la figure 9.2 calculer l'intensité relative des raies en fonction de a , et en déduire a en comparant ce calcul à la mesure expérimentale.

D'ores et déjà, à partir de l'identification préliminaire des raies observées, il apparaît que pour les quatre puits de potentiels correspondants, les points de rebroussement externes voisins de $200 a_0$ correspondent à des états liés d'énergie de liaison voisine de -6 à -7 GHz. Les états liés d'énergie voisine de -20 GHz ont des points de rebroussement proches de $150 a_0$. Or les états liés dont les points de rebroussement sont proches de a sont caractérisés par une intensité de raie moléculaire plus faible. Il semble clair qu'une variation, éventuellement spectaculaire, des intensités relatives des raies est à attendre dans la gamme de fréquences accessibles expérimentalement. Jusqu'alors, le principal obstacle à cette observation est que le spectre a été accumulé par morceaux, et que les raies les plus faibles peuvent n'avoir pas encore été sondées.

L'impossibilité de sonder de manière systématique l'ensemble du spectre nous imposera donc une démarche du type suivant. Sur la base des raies déjà mesurées, une identification univoque des raies doit être achevée qui permette de prédire la position des autres raies moléculaires, ainsi que leur intensité en fonction de a . Ce travail est en cours au moment de la rédaction de ce chapitre. Alors nous pourrons balayer le laser de PA au voisinage des fréquences prédites, trouver les raies correspondantes (cette méthode a été appliquée avec succès pour la série 2_u déjà identifiée), en mesurer la position exacte (et, le cas échéant, améliorer le modèle décrivant ces états moléculaires), et mesurer leur intensité. L'intensité relative des raies d'une même série doit alors renseigner sur a .

9.1.4 Interprétation du chauffage

Enfin, le mécanisme de chauffage mis en évidence et discuté dans le cas particulier des états moléculaires à purement longue portée mérite d'être interprété plus finement. Tout d'abord, ainsi que nous l'avons mentionné à la fin du chapitre 7 la mesure d'un taux de chauffage dépendant du niveau vibrationnel, et de la densité de colonne du gaz permettrait de confirmer le modèle proposé pour expliquer le chauffage induit par le laser de PA.

De plus, une fois compris, ce mécanisme pourrait s'avérer un outil précieux dans la compréhension des taux de chauffages observés de manière générale dans notre gaz ultra-froid d'hélium métastable, et en particulier dans l'étude des mécanismes collisionnels en fin de rampe d'évaporation (voir le paragraphe 3.3.2). En effet une impulsion de PA résonante avec une raie moléculaire peut être vue comme le moyen de produire instantanément un nuage de Oort dont la distribution en énergie cinétique est bien connue. Des expériences peuvent alors être menées qui étudient la dynamique de l'échange de température entre le gaz ultra-froid et le gaz de Oort. Éventuellement, l'hypothèse des collisions en avalanches pourrait être testée en mesurant la constante de temps associée à la thermalisation. Cependant, une interprétation quantitative de ce type de mesures nécessitera une connaissance précise de la

longueur de diffusion.

9.2 Proposition d'expériences de photo-association à 2 photons

Une deuxième génération d'expériences de photo-association vient de démarrer dans le but de sonder directement les états liés du potentiel ${}^5\Sigma_g^+$ qui régit l'interaction entre deux atomes métastables. Il s'agit d'utiliser un premier photon pour exciter la paire vers un des états désormais parfaitement connus connectés à l'asymptote $2^3S + 2^3P_0$, et de stimuler la réémission du photon vers un état lié du potentiel ${}^5\Sigma_g^+$.

9.2.1 Principe

Le principe de la photo-association à deux photons est rappelé sur la figure 9.3, où le photon (1) excite, à partir d'une paire libre, un dimère géant et où le photon (2) couple

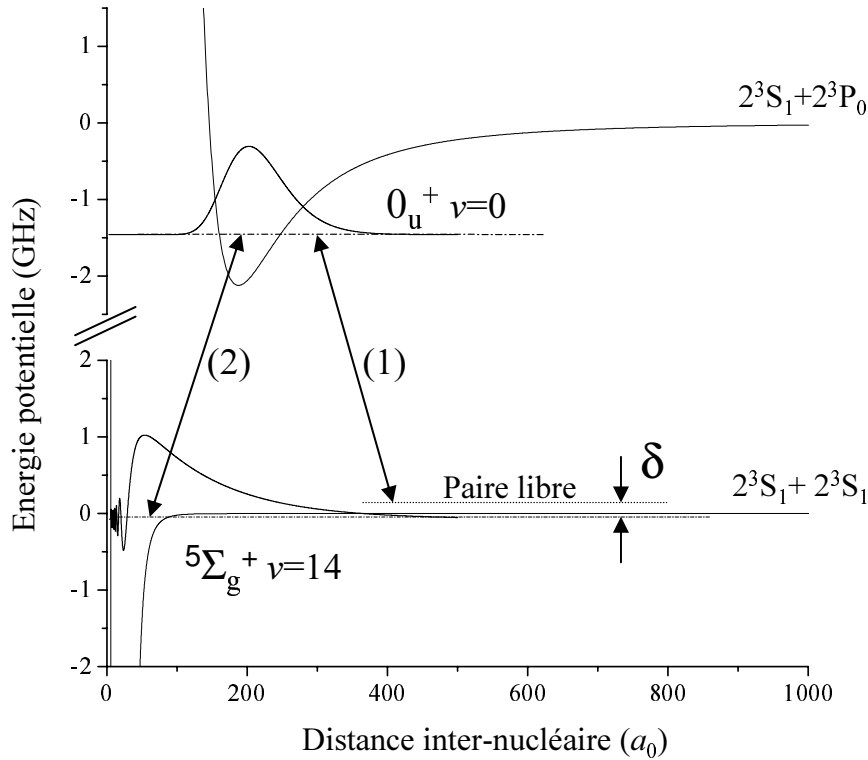


FIG. 9.3 – Représentation des fonctions d'ondes vibrationnelles $0_u^+, v=0$ et $5\Sigma_g^+, v=14$ couplées par le second photon. Les deux potentiels électroniques correspondants et leurs asymptotes sont rappelés. De l'intégrale de recouvrement entre ces deux fonctions d'ondes vibrationnelles dépend la force du couplage induit par le photon (2).

l'état moléculaire excité à un état moléculaire lié dans le potentiel électronique initial. La force du couplage induit par le photon (2) dépend de l'élément de matrice réduit du dipôle électrique moléculaire entre ces deux états liés, et, comme nous l'avons rappelé au paragraphe 4.3.2, le recouvrement des fonctions d'ondes initiale et finale est à prendre en compte dans cette estimation. Typiquement, l'intensité de saturation pour la transition entre deux états moléculaires est de l'ordre de I_{sat}/F_{FC} , où $I_{sat} \simeq 0.16 \text{ mW/cm}^2$ est l'intensité de saturation de la transition atomique, et $F_{FC} = (\int u_i(R) u_f(R) dR)^2$ est le facteur de Franck-Condon, soit le carré du recouvrement des fonctions d'ondes vibrationnelles initiale et finale.

La figure 9.3 représente les fonctions d'ondes initiale et finale pour la transition correspondant au second photon, entre l'état $v = 0$ du potentiel à purement longue portée 0_u^+ , et le dernier état lié du potentiel ${}^5\Sigma_g^+$ ($v = 14$). Ce graphe a été tracé en utilisant le potentiel ${}^5\Sigma_g^+$ donnée par Starck et Meyer [54], avec lequel on calcule une longueur de diffusion voisine de 8.15 nm. Le facteur de Franck-Condon calculé dans ce cas est $F_{FC} \simeq 0.14$, ce qui est une valeur relativement élevée, et laisse augurer un couplage important. Si en réalité la longueur de diffusion est plus grande, alors la fonction d'onde de l'état lié $v = 14$ (${}^5\Sigma_g^+$) s'étend vers les R plus grands, et son recouvrement avec l'état 0_u^+ , $v = 0$ est plus favorable.

Connaissant les différentes fonctions d'ondes vibrationnelles dans le puits à purement longue portée 0_u^+ , on peut calculer les facteurs de Franck-Condon, en fonction du niveau vibrationnel utilisé comme état intermédiaire, et en fonction de la valeur de la longueur de

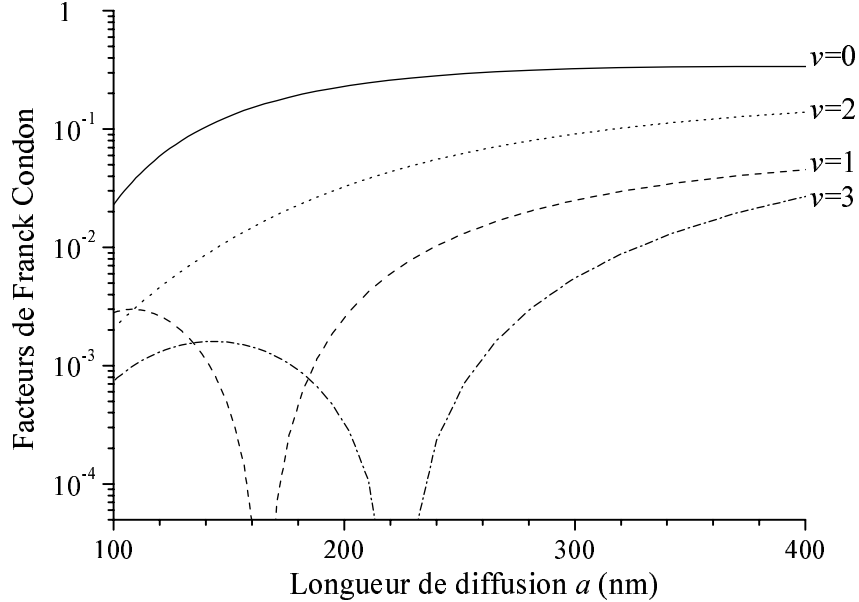


FIG. 9.4 – Calcul des facteurs de Franck Condon entre l'état ${}^5\Sigma_g^+, v = 14$ et les états $0_u^+, v = 0, 1, 2$, et 3. Ces courbes sont obtenues numériquement en calculant le carré de l'intégrale de recouvrement entre les fonctions d'ondes vibrationnelles obtenues au chapitre 7 pour les dimères géants, et la fonction d'onde vibrationnelle $v = 14$ obtenue à partir du potentiel de Starck et Meyer [54], dont on modifie légèrement la partie externe (en la multipliant par un coefficient proche de 1), pour faire varier la longueur de diffusion.

diffusion, qui peut être ajustée numériquement en modifiant légèrement le potentiel de Stark et Meyer, ainsi que nous l'avons fait au paragraphe 4.1.3. La figure 9.4 présente le résultat de ce calcul pour les niveaux $v = 0$ à 3 de 0_u^+ . *A priori*, plus la fonction d'onde de l'état excité est étendue moins le recouvrement est bon. Ainsi, conformément à l'intuition le recouvrement est le plus important pour l'état excité $v = 0$. Cependant, un autre paramètre entre en jeu qui est le nombre de zéros de la fonction d'onde dans l'état excité. En effet, pour $v = 1$ et $v = 3$ l'alternance de lobes positifs et négatifs dans la fonction d'onde de l'état excité peut conduire à une intégrale de recouvrement nulle, pour certaines valeurs de la longueur de diffusion. En particulier, le calcul montre que le recouvrement avec l'état $v = 1$ est nettement moins bon qu'avec l'état $v = 2$, bien que ce dernier soit plus étendu spatialement, quelque soit la valeur supposée pour a .

9.2.2 Réalisation expérimentale

Au moins deux méthodes expérimentales peuvent être proposées pour mesurer l'énergie de liaison du niveau $v = 14$ dans le potentiel $^5\Sigma_g^+$ qui régit l'interaction entre deux atomes métastables. Tout d'abord, des transitions Raman stimulées ont été efficacement utilisées pour peupler des niveaux vibrationnels dans l'état électronique fondamental de paires d'alcalins (voir par exemple [108, 109, 137]). Cependant, la méthode dite de “photo-association frustrée” semble être mieux adaptée pour une première tentative, puisque la position de l'état lié recherché est inconnue. À l'aide de la figure 9.5, nous décrivons succinctement ces deux méthodes ci-dessous.

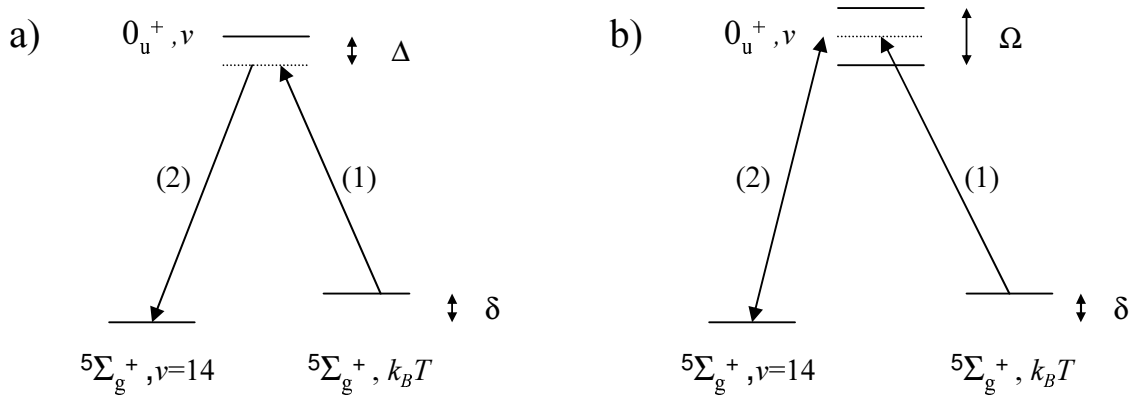


FIG. 9.5 – a) Représentation schématique d’une transition Raman stimulée entre une paire d’atomes He^* dans un état de diffusion à une énergie de collision de l’ordre de $k_B T$, et la même paire dans l’état lié $v = 14$ dans le même potentiel électronique $^5\Sigma_g^+$, en passant par un état virtuel désaccordé de Δ par rapport à un état lié v dans le potentiel à purement longue portée 0_u^+ . b) Représentation schématique de la méthode de photo-association frustrée, avec les trois mêmes états moléculaires. Dans les deux méthodes, la mesure du désaccord δ conduit à la mesure de l’énergie de liaison de l’état $v = 14$.

Transition Raman stimulée

Techniquement, une transition Raman stimulée peut facilement être mise en œuvre sur notre expérience. Nous avons calculé (voir la figure 4.5) que l'énergie de liaison attendue pour le niveau $v = 14$ du potentiel $^5\Sigma_g^+$, est comprise entre -300 MHz et -8 MHz si l'on suppose a comprise entre 5 nm et 20 nm. Le désaccord δ (voir la figure 9.5-a) peut donc être produit par un ou plusieurs modulateurs acousto-optiques. L'expérience consiste à mesurer le nombre d'atomes restant après l'impulsion simultanée des deux lasers en fonction de leur désaccord δ . On est censé observer une perte d'atomes pour un désaccord égal à la différence d'énergie entre les niveaux libre et lié du potentiel $^5\Sigma_g^+$. Ne connaissant pas l'énergie de liaison du niveau $v = 14$, l'expérience n'est pas simple, car le désaccord Δ ainsi que l'intensité des lasers doivent être optimisés simultanément, à partir d'un signal initialement inexistant... La méthode de PA frustrée est *a priori* mieux adaptée pour faire une première mesure de cette énergie de liaison. Cependant une fois cette mesure faite, la transition Raman stimulée devrait être moins difficile à réaliser. Alors une mesure de la durée de vie de l'état $v = 14$ pourrait être envisageable par cette méthode.

En effet, la largeur du signal détecté lorsque l'on effectue une transition Raman est la somme de plusieurs contributions qui sont la durée de vie de l'état $v = 14$, la dispersion en énergie de l'état de diffusion (à température non nulle) et la largeur spectrale de l'onde radio-fréquence qui pilote les modulateurs acousto-optiques utilisés pour générer le désaccord δ . Il est probable que les deux dernières sources d'élargissement soient inférieures à la première. En effet, une estimation grossière de la durée de vie de ce dimère peut être obtenue par le raisonnement suivant. L'écart entre les niveaux $v = 14$ et $v = 13$, calculé à partir du potentiel de Starck et Meyer, vaut $\simeq 30$ GHz, et correspond typiquement à la fréquence d'oscillation des noyaux dans ce potentiel. Si ce potentiel était un potentiel triplet ou singulet, l'ionisation Penning détruirait la molécule au bout d'une demi période et le taux de désexcitation par autoionisation serait donc voisin de 60 GHz. Cependant, comme c'est un potentiel quintuplet, l'argument d'inhibition des collisions Penning fonctionne, et compte tenu des travaux de G. Shlyapnikov *et al.* [23], on en déduit que la molécule vit plus longtemps par typiquement 5 ordres de grandeurs. Cet argument indique que la molécule pourrait avoir une durée de vie de l'ordre de la microseconde, conduisant à une largeur de raie de PA par transition Raman stimulée de l'ordre du MHz. En réalité, l'état $v = 14$ du potentiel $^5\Sigma_g^+$ est très proche du seuil de dissociation, et sa fonction d'onde vibrationnelle s'étend très loin dans la région classiquement interdite. Dans ce cas l'approche semi-classique utilisée ici pour estimer la durée de vie de cet état moléculaire est déficiente (voir les discussions de [138]). La durée de vie obtenue par l'argument ci-dessus doit donc être considérée comme une *borne inférieure* pour la durée de vie réelle. À notre connaissance, aucun calcul n'a été fait pour prédire la durée de vie de cette molécule, et cet ordre de grandeur laisse à penser que cette durée de vie pourrait être mesurée expérimentalement.

Photo-association frustrée

La transition Raman stimulée est d'autant plus difficile à observer que l'on ne sait pas à quel désaccord δ la chercher. C'est pourquoi nous avons commencé par mettre en œuvre une expérience de photo-association frustrée *a priori* moins difficile, dans le but de mesurer

l'énergie de liaison de l'état $v = 14$ dans le potentiel $^5\Sigma_g^+$. Dans cette expérience, schématisée par la figure 9.5, le premier laser est *résonant* avec la transition entre l'état de diffusion et un état vibrationnel du potentiel à purement longue portée 0_u^+ , conduisant à une perte d'atomes. Alors, la fréquence du second laser est balayée, à l'aide de modulateurs acousto-optiques. Lorsque le second laser couple de manière résonante les états 0_u^+ et $^5\Sigma_g^+$, alors, dans une description en termes de niveaux habillés par le champ laser, le niveau vibrationnel du haut se sépare en deux niveaux distants de $\hbar\Omega$, où Ω est la fréquence de Rabi, associée à cette transition. Il s'agit de l'effet Autler-Townes (voir par exemple [139]). Si les deux niveaux sont suffisamment séparés, alors le laser (1) cesse d'être résonant, et le nombre d'atomes détectés doit augmenter. Cette technique a déjà été utilisée avec succès dans le cas des alcalins (voir par exemple [137]).

Pour détecter cet effet, plusieurs conditions doivent être remplies. Tout d'abord, il faut que la séparation entre les deux états habillés soit supérieure à la largeur radiative de l'état excité, mesurée de l'ordre de Γ . Il faut donc que l'intensité laser soit au moins égale à I_{sat}/F_{FC} , et il faut choisir l'état intermédiaire pour lequel le facteur de Franck-Condon est le meilleur. À l'évidence, il s'agit de $v = 0$ (voir la figure 9.4). Cependant, cette expérience requiert que le photon (1) soit *asservi* sur la transition entre l'état de diffusion et l'état excité, et $v = 0$ est trop éloigné de la raie atomique D_0 pour autoriser cela, compte tenu de notre montage expérimental actuel. L'état vibrationnel excité $v = 1$ est au contraire particulièrement défavorable, et nous choisissons donc $v = 2$ comme état intermédiaire. L'asservissement du laser (1) sur cette transition ne pose pas de problème. Par conséquent, l'intensité requise est d'au minimum $100 I_{sat} \simeq 16 \text{ mW/cm}^2$, puisque le facteur de Franck-Condon correspondant est de l'ordre de 10^{-2} au minimum (voir la figure 9.4).

Par ailleurs, la durée de vie relativement courte de l'état $v = 14$ dans le potentiel $^5\Sigma_g^+$ pose un autre problème, car il faut que l'état excité ait le "temps de s'habiller" et de se séparer en deux. En d'autres termes, il faut que la pulsation de Rabi Ω soit grande devant le taux d'auto-ionisation de la molécule Γ_{ion} , qui d'après l'estimation ci-dessus est probablement aussi de l'ordre du MHz. Cependant, au cas où l'état lié "du bas" aurait une durée de vie plus courte, il faudrait augmenter la pulsation de Rabi, et donc une intensité de $10^3 I_{sat}$ semble plus raisonnable pour le photon (2).

Enfin, compte tenu du désaccord des laser (1) et (2) par rapport à la raie atomique D_0 , la durée de l'impulsion doit être limitée, de sorte que les pertes non résonantes ne deviennent pas le processus de perte dominant. Ainsi on constate expérimentalement qu'au voisinage de -250 MHz (qui est la position de l'état vibrationnel $v = 2$ dans le potentiel 0_u^+), le produit $I \times \tau$, où τ est le temps d'exposition ne doit pas excéder $\simeq I_{sat} \times 50 \text{ ms}$ pour vérifier cette dernière condition. Ainsi, avec $I = 10^3 I_{sat}$, il faut limiter le temps d'exposition à quelques $10 \mu\text{s}$ typiquement. Il semble donc qu'une petite marge de manœuvre existe pour laquelle les conditions suivantes sont vérifiées $\tau > \Gamma_{ion}^{-1} > \Omega^{-1}$, tout en minimisant les pertes non résonantes indésirables.

9.3 Évolution du montage expérimental

Tenant compte du travail rapporté dans ce manuscrit, et des propositions faites ci-dessus afin de poursuivre ce travail, on peut penser aux évolutions suivantes pour le montage expérimental:

- 1) Tout d’abord, des mesures précises de photo-association à 1 ou 2 photons nécessitent l’asservissement du laser de PA avec une stabilité et une précision petite devant Γ (1.6 MHz). Jusqu’alors, cela n’est possible que grâce à l’utilisation de modulateurs acousto-optiques, permettant de ne sonder qu’une petite plage de fréquence. Nous avons donc commencé de mettre en œuvre une boucle d’asservissement du laser de PA, exploitant le battement de celui-ci avec un laser de référence asservi par absorption saturée sur les transitions atomiques. L’utilisation d’une photodiode rapide, devrait permettre d’utiliser ce battement pour réaliser un signal d’erreur et asservir le laser de PA, selon un schéma du type de celui proposé, par exemple, dans la référence [140]. On pourrait ainsi étendre la plage des désaccords accessibles à plusieurs GHz. Une spectroscopie fine à un photon dans le rouge de D_2 serait alors possible, qui pourrait s’avérer utile, voire nécessaire à la détermination de a . D’autre part, le niveau $v = 0$ de 0_u^+ deviendrait accessible avec précision. Cela permettrait d’une part de mesurer précisément l’intensité de cette raie et de la comparer aux autres raies observées dans le rouge de D_0 , dans l’espoir d’en déduire a également. D’autre part, l’expérience à deux photons serait rendue moins délicate: d’abord, le facteur de Frank-Condon serait plus favorable, et ensuite, étant plus loin de la résonance atomique, les pertes non résonantes seraient moins problématiques.
- 2) Un projet plus lourd mais néanmoins nécessaire est la mise en place d’un détecteur d’ions. Un “channeltron” de petite taille a été récemment acheté, qui devrait être inséré dans le montage actuel, au bord de la cellule, dans l’espoir de mesurer prochainement les ions produits par les expériences de photo-association et de bénéficier d’un diagnostic complémentaire crucial. L’intérêt de cette solution technologique est qu’elle devrait permettre de mesurer des flux d’ions sans pour autant nécessiter une nouvelle conception de l’ensemble de l’expérience. L’utilisation d’un détecteur à micro-canaux sur lequel on aurait la possibilité de laisser tomber les atomes et donc de tirer profit de la métastabilité de l’hélium doit être envisagée sur un plus long terme. Elle nécessite de changer la conception du MOT et du piège magnétique, avec l’utilisation d’une nouvelle cellule. En effet, actuellement deux faisceaux du MOT sont verticaux et empêchent de positionner le détecteur sous le nuage.
- 3) Enfin, le problème des courants de Foucault après la coupure du champ magnétique de piégeage, qui nuit à la détection optique, peut vraisemblablement être résolu. Lors de la reconstruction du piège magnétique fin 2002, nous avons pu identifier l’origine de ces courants de Foucault (voir l’annexe A). À l’occasion de la mise en place du détecteur d’ions, et donc du prochain démontage du piège magnétique, il faudra planifier une mise à jour de l’armature de ce piège.

Chapitre 10

Conclusion

Ce travail de thèse a démarré avec la caractérisation du MOT d'hélium métastable, la construction du piège magnétique, puis l'optimisation de la rampe d'évaporation, jusqu'à l'observation en 2001 du condensat d'hélium métastable, quelques jours après l'expérience similaire menée dans l'équipe d'A. Aspect de l'Institut d'Optique à Orsay.

L'étude quantitative des propriétés du gaz ultra-froid au voisinage de la condensation nécessite une connaissance, et même un contrôle des interactions de paires au sein du gaz. La nécessité du contrôle des interactions est criante dans le cas des gaz rares métastables, puisque l'observation de la condensation est conditionnée à l'inhibition pure et simple des collisions Penning, qui est une façon radicale de contrôler ces interactions inélastiques. L'insuffisance de la connaissance des interactions de paires dans l'hélium métastable nous a engagés sur la voie de la photo-association, qui est probablement la méthode la mieux adaptée à l'étude précise de ces interactions dans un gaz ultra-froid.

Nous avons démarré une nouvelle série d'expériences de photo-association sur l'hélium métastable ultra-froid. Au cours de cette thèse, des expériences à un seul photon ont permis une étude expérimentale précise des états moléculaires électroniquement excités, accessibles dans le rouge des transitions atomiques D_2 et D_0 . Ces expériences, menées pour la première fois sur un nuage d'hélium métastable refroidi par évaporation dans la gamme du microKelvin, et à des densités voisines de 10^{13} cm^{-3} , ont donné lieu à des spectres de raies fines observées au dessus d'un fond de pertes non résonantes. L'interprétation de ces spectres a également constitué une part importante du travail réalisé, en parallèle avec les mesures expérimentales.

Tout d'abord, la précision des mesures expérimentales a été discutée en détail et de façon systématique, en particulier en ce qui concerne la mesure de la fréquence du laser de PA, qui a été réalisée de deux manières différentes autorisant l'acquisition de deux types de spectres. Ensuite, la démarche permettant d'extraire l'énergie de liaison des molécules à partir des désaccords mesurés pour le laser de PA a été présentée en détail, et illustrée sur le cas de raies moléculaires observées dans le rouge de D_0 . Il en ressort des décalages de fréquence importants dus au champ magnétique non nul, puisque nos expériences sont réalisées dans un piège magnétique, ainsi qu'à la température non nulle du nuage atomique. En particulier, le fait que les transitions observées se fassent entre un état libre et un état lié, est responsable d'un effet de température sensible et mesurable dans nos expériences. Enfin, une méthode de

détection originale, basée sur l'échauffement du nuage thermique consécutif à la production de molécules, a été mise en évidence comme permettant l'acquisition expérimentale de spectres très précis.

Parallèlement un modèle asymptotique a été développé pour interpréter les spectres observés. Il s'inspire de l'approche usuelle de Movre Pichler [123], appliquée jusqu'alors au seul cas des alcalins. La résolution de ce modèle dans le cadre d'une approximation adiabatique a été donnée et discutée. Elle conduit à des courbes de potentiel à longue distance entre deux atomes interagissant dans la configuration asymptotique $2^3S + 2^3P$. La simplicité du système étudié (avec en particulier, l'absence de structure hyperfine), en fait un cas d'école sur lequel nous avons tenté d'illustrer quelques notions de base de la physique moléculaire, et en particulier l'effet des couplages ro-vibrationnels. Les courbes de potentiel ainsi déterminées ont été ensuite utilisées dans le but d'interpréter les spectres mesurés.

Dans le rouge de D_0 les molécules formées sont dues à l'existence de puits de potentiels à purement longue portée. Dans ce cas précis, les conditions de validité de notre modèle sont parfaitement remplies, et l'analyse du spectre a pu être produite avec une grande précision. L'accord entre les spectres calculés et mesurés est excellent. De plus, les effets de retard de l'interaction dipôle-dipôle résonante entre les atomes neutres à grande distance ont été mis en évidence, et une mesure précise de la durée de vie radiative de l'état excité 2^3P en a été déduite. La méthode de détection calorimétrique a été discutée en tentant d'interpréter un exemple typique de signal observé lorsque le laser est résonant avec une transition vers un de ces dimères géants. La largeur et l'amplitude du signal de température sont compatibles avec l'hypothèse selon laquelle les dimères géants se désexcitent radiativement en atomes métastables, produisant ainsi un nuage de Oort dont la distribution en énergie peut être calculée. Dans un deuxième temps ce nuage de Oort chauffe le nuage d'atomes ultra-froids sur une échelle de temps pouvant dépasser la seconde, conduisant à cette détection calorimétrique. Des expériences complémentaires simples sont proposées qui permettront de tester plus avant cette interprétation.

Une interprétation préliminaire du spectre observé dans le rouge de D_2 est également proposée. Le fond de pertes non résonantes observées expérimentalement a déjà été décrit sur des expériences de PA réalisées sur un MOT [33]. Compte tenu de ces travaux passés, et bien que notre expérience ne dispose pas encore d'une détection ionique, il semble que ces pertes aient pour origine les collisions Penning assistées par lumière. La composante discrète du spectre peut, quant à elle, être analysée sur la base des courbes de potentiel $2^3S + 2^3P$. Une analyse préliminaire, en cours de développement au moment de la rédaction de ce paragraphe, semble montrer que les raies moléculaires observées constituent quatre séries appartenant très vraisemblablement à seulement deux des courbes de potentiel que nous avons calculées, qui deviennent purement $^5\Sigma_u^+$ à courte distance inter-atomique.

Sur la base de ces travaux, de nouvelles expériences se sont révélées *a priori* faisables qui, nous l'espérons, pourront être réalisées prochainement et conduire à une moisson de résultats nouveaux. Le premier de ces résultats pourrait être une mesure précise de la longueur de diffusion, éventuellement par plusieurs méthodes différentes, proposées en détail au chapitre 9. Le cas échéant une étude de la molécule de He_2 ($2^3S + 2^3S$) pourra être engagée, et la mesure de sa durée de vie pourrait être un renseignement précieux sur les mécanismes de désexcitation

Penning, ainsi que sur le facteur d'inhibition de ces mécanismes par la polarisation des spins.

Grâce à l'utilisation d'un détecteur d'ions, la mesure du taux d'ions émis par les dimères géants (que l'on attend faible *a priori*) serait une information importante pour ces molécules dont la structure est désormais bien connue. La poursuite conjointe de la description théorique moléculaire (avec l'aide de spécialistes, le cas échéant), et de nouvelles mesures d'ions pourrait permettre d'approfondir la compréhension des interactions inélastiques.

La connaissance précise des collisions élastiques et inélastiques, voire le moyen de contrôler les premières et d'inhiber les secondes, sont l'ambition peut-être pas si lointaine de toutes ces expériences. Ces objectifs sont en tout cas une étape nécessaire dans le contexte des développements actuels de la physique des gaz ultra-froids dilués.

Annexe A

Détection par absorption

A.1 Imager un nuage d'hélium métastable

L'imagerie par absorption est une technique standard de détection d'un nuage de gaz froid dilué. Après avoir soudainement coupé le champ magnétique de piégeage, le nuage subit une phase d'expansion libre, il est ainsi soumis à la seule pesanteur terrestre, durant quelques millisecondes. A l'issu de ce *temps de vol*, la taille du nuage est, dans le cas d'un nuage thermique, représentative de la distribution initiale des vitesses dans le piège, c'est-à-dire de la température. Le nuage est alors illuminé par un faisceau résonnant, appelé faisceau sonde, pendant une durée courte devant le temps caractéristique d'expansion du gaz, à savoir quelques dizaines de microsecondes. Les atomes absorbent ce faisceau, y laissant une ombre. Une image I_1 du nuage est ainsi réalisée sur un détecteur CCD. Une seconde image I_2 , enregistrée en l'absence d'atomes donne le profil d'intensité du faisceau sonde. Une troisième image I_3 , en l'absence du faisceau sonde lui-même enregistre le niveau de lumière parasite non résonnante à soustraire aux deux précédentes images.

Conformément à la loi de Beer-Lambert, le rapport pixel à pixel, des deux premières images corrigées du fond parasite donne accès à la densité optique DO du nuage en fonction de la position dans le plan (x,y) orthogonal à la sonde (voir figure A.1):

$$DO(x,y) = \ln \left(\frac{I_2(x,y) - I_3(x,y)}{I_1(x,y) - I_3(x,y)} \right) = \sigma_{abs} \int n(x,y,z) dz , \quad (\text{A.1})$$

où σ_{abs} est la section efficace d'absorption du laser imageur par les atomes, et $n(x,y,z)$ est la densité spatiale du gaz.

Contrairement aux expériences d'atomes froids réalisées avec des alcalins, l'imagerie optique est une des difficultés technologiques majeures de notre expérience. En effet la longueur d'onde utilisée (1.08 micron), est en dehors du domaine visible, et donc de la gamme de sensibilité des caméras CCD usuelles. Fabriqués à base de silicium, ces détecteurs ont une efficacité quantique de conversion d'un photon en un électron qui s'écroule au delà de 1 micron, jusqu'à valoir à peu près 1.5% à 1.083 micron, dans le cas de la caméra Hamamatsu C4880 que nous utilisons. Des détecteurs à base d'arsenure de gallium (GaAs) existent, qui offrent une efficacité quantique bien meilleure dans l'infrarouge proche. Cependant, actuellement, des progrès technologiques restent à faire pour diminuer le bruit considérable qui

accompagne la conversion photo-électrique réalisée à l'aide de GaAs. La plage spectrale de sensibilité de GaAs s'étend loin dans l'infrarouge, ce qui détériore le signal détecté à 1.08 microns à cause du rayonnement d'origine thermique. Pour notre expérience, notre choix s'est porté sur un détecteur fabriqué avec du silicium, donc peu efficace, mais pour lequel les bruits d'obscurité et de lecture sont faibles, respectivement 8 électrons/pixel/seconde et 9 électrons rms par pixel, lorsque le détecteur CCD est refroidi à $-40\text{ }^{\circ}\text{C}$, et utilisé dans nos conditions expérimentales.

La sensibilité de détection faisant défaut, on utilise une intensité relativement élevée, de l'ordre de I_{sat} , pendant un temps d'exposition relativement long de $100\text{ }\mu\text{s}$, permettant d'accumuler plus de photons. Afin d'éviter l'effet de pression de radiation du faisceau sonde, qui accélère les atomes et les pousse hors de résonance à cause de l'effet Doppler, un faisceau contre-propageant de même intensité est installé. Enfin, le grandissement du système d'imagerie est limité à l'unité, pour ne pas "diluer" les photons sur la surface du détecteur. Ce faible grandissement limite la résolution du système optique. En effet, les pixels ayant une dimension de $24\text{ }\mu\text{m}$, le nuage d'atomes est visualisé avec un grain d'au minimum $24\text{ }\mu\text{m}$ également si le grandissement vaut 1. En particulier, un condensat ayant des dimensions typiques, à l'intérieur du piège, de $10\text{ }\mu\text{m}$ radialement et $100\text{ }\mu\text{m}$ longitudinalement, il est nécessaire de le laisser s'étendre pendant une phase d'expansion libre afin de pouvoir en déterminer les dimensions par l'imagerie. La figure A.1 illustre le montage utilisé pour la détection du nuage.

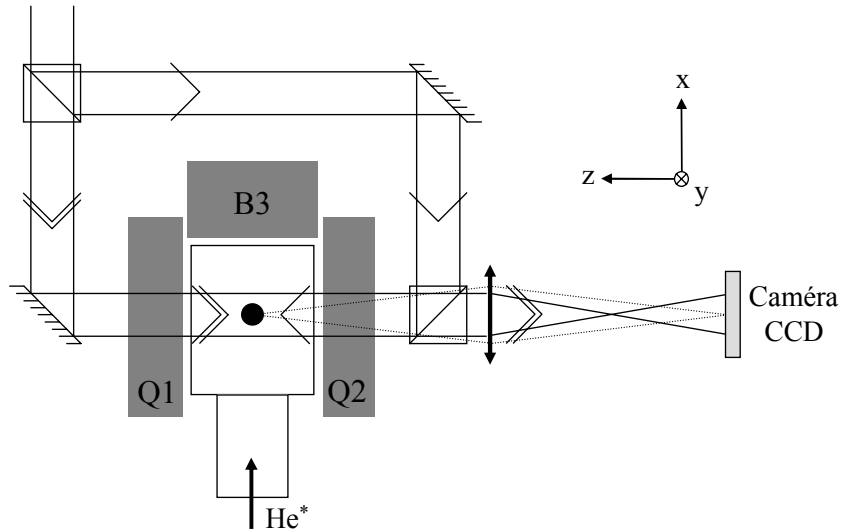


FIG. A.1 – Schéma du montage de détection optique. Le nuage d'atomes (représenté par le disque noir au centre des trois bobines) subit une phase d'expansion balistique de quelques millisecondes après la coupure du piège. Puis, un onde stationnaire l'illumine pendant $100\text{ }\mu\text{s}$. Un des bras de cette onde est envoyé vers la caméra CCD sur laquelle on fait l'image du nuage, avec un grandissement de l'ordre de l'unité.

Il est à noter que la caméra que nous utilisons actuellement n'a été acquise que quinze jours avant l'observation du premier condensat d'hélium. C'est grâce à cette nouvelle caméra que la détection du condensat a été rendue possible dans notre expérience. En effet, la caméra

utilisée précédemment, présentait une efficacité quantique 10 fois moindre, et le grandissement du système d'imagerie était alors de $1/5$ pour augmenter le nombre de photons reçus par pixel. De plus les bruits de lecture et d'obscurité étaient bien supérieurs à ceux de la caméra actuelle. L'ancienne caméra ne permettait plus de détecter les nuages évaporés jusqu'à des températures inférieures à quelques dizaines de microK.

A.2 Interprétation quantitative des images d'absorption

L'interprétation quantitative des images se fait en ajustant le profil de densité optique obtenu par l'opération A.1 à l'aide de la fonction à deux coordonnées (x,y) adéquate. Dans le cas d'un nuage thermique de température grande devant la température critique de condensation, l'ajustement se fait par une gaussienne. La taille du nuage après une phase d'expansion libre est dictée par la distribution des vitesses initiales, à la coupure du piège. La largeur de la gaussienne qui ajuste le profil de densité optique est donc une mesure indirecte de température, si l'on connaît le temps d'expansion du nuage, et le grandissement du système d'imagerie. De plus, la densité optique au centre permet en théorie de déduire la densité du gaz et le nombre d'atomes si l'on connaît la section efficace d'absorption. Cependant, en pratique, la détermination directe du nombre d'atomes par cette méthode est imprécise voire impossible pour les raisons décrites ci-dessous.

L'extraction de la densité spatiale du nuage à partir des images d'absorption nécessite un modèle décrivant l'absorption des photons par les atomes. Lorsque le faisceau sonde est une onde progressive de faible intensité, l'absorption est décrite par la loi de Beer-Lambert, et, dans le cas d'un atome à deux niveaux, la densité du nuage est facilement accessible à partir de la mesure de densité optique. Dans notre expérience, à cause de la faible efficacité quantique de détection, l'absorption est mesurée dans une onde stationnaire dont l'intensité n'est pas faible devant I_{sat} . Un modèle non-linéaire, développé dans les références [57] et [28], est alors utilisé pour décrire l'absorption du gaz. Cependant, la mesure de l'intensité de la sonde devient nécessaire pour une interprétation quantitative de l'absorption, rendant la détermination du nombre d'atomes plus incertaine.

Par ailleurs, comme dans toutes les expériences d'atomes froids, les atomes sondés ne sont pas des atomes à deux niveaux, puisqu'ils possèdent des sous-niveaux Zeeman. En présence d'un champ magnétique non nul, la population dans les sous-niveaux Zeeman est une donnée nécessaire à l'interprétation quantitative des images d'absorption. Or à l'extinction du piège, il n'est pas évident que l'échantillon reste parfaitement polarisé, comme le montre l'expérience de "chute libre" qui a permis de calibrer le grandissement de l'imagerie (voir le paragraphe A.4.1). De plus, il a été constaté que des courants de Foucault importants sont induits par la coupure brutale du champ magnétique de piégeage, qui produisent un champ magnétique inhomogène et non stationnaire qui décale les atomes de résonance par effet Zeeman et rendent difficile la modélisation quantitative de la section efficace d'absorption des atomes. En effet, ils sont responsables d'une variation spatiale et temporelle très importante de la section efficace d'absorption σ_{abs} .

En définitive, il est nécessaire de calibrer la mesure de densité optique par absorption à l'aide d'une détermination indépendante du nombre d'atomes.

A.3 Courants de Foucault et méthodes de détection

La coupure du champ magnétique de piégeage doit être suffisamment rapide pour que le nuage passe “instantanément” du piège magnétique à la phase d’expansion balistique. C’est nécessaire pour être capable de décrire correctement la phase d’expansion libre, et en déduire les caractéristiques du nuage dans le piège (*in situ*). Dans notre expérience, le courant électrique dans les bobines de piégeage est coupé en typiquement $150\ \mu\text{s}$. Pour cela, nous utilisons, des transistors de puissance appelés IGBT (Insulated Gate Bipolar Transistor), qui fonctionnent comme des interrupteurs capables d’absorber rapidement l’énergie emmagasinée dans les bobines de champ magnétique.

La coupure brutale du champ créé par les bobines Helmholtz de compensation induit des courants dans l’armature métallique du support des cinq bobines du piège. Le champ magnétique induit décale très fortement les transitions atomiques par effet Zeeman, et la sonde de détection cesse d’être résonnante. De plus ce champ induit décroît avec une constante de temps de 2 ms environ. Compte tenu de la faible masse de He^* , l’expansion du nuage est rapide et l’image d’absorption doit, le plus souvent, être prise avant que ces champs induits n’aient eu le temps de se dissiper.

La détection de nuages plus ou moins chauds nécessite des temps d’expansion plus ou moins courts, et le champ magnétique présent au moment de l’impulsion lumineuse de détection varie en fonction du temps d’expansion. Pour des temps de vols fixés, nous avons tenté d’ajuster le désaccord du laser de détection et/ou d’appliquer une impulsion de champ magnétique annexe, pour s’opposer au champ magnétique induit par les courants de Foucault, au moment de la détection. Nous avons alors constaté que le meilleur moyen d’améliorer la section efficace d’absorption des atomes, est d’augmenter le temps d’expansion, et ce, quelque soit le jeu de paramètres choisis pour le désaccord laser et/ou pour l’impulsion annexe de champ magnétique.

Nous avons donc abandonné l’idée de compenser l’effet de ces champs parasites, et avons essayé le plus possible de détecter les atomes en leur absence. En fait, nous avons remarqué que la coupure des 3 seules bobines du piège QUIC, induit des courants bien moins importants que celle des 2 bobines Helmholtz, et ne détériore pas significativement la détection du nuage. Selon la température du nuage, et l’expérience réalisée, nous utilisons donc deux méthodes différentes pour couper le potentiel de piégeage.

La première méthode consiste à diminuer lentement le courant dans les bobines Helmholtz, tout en maintenant 30 A dans le piège QUIC, puis à couper soudainement le piège QUIC. L’absorption est alors relativement peu perturbée. C’est ainsi que l’on maximise le rapport signal à bruit des images. La température du gaz est en revanche plus difficile à estimer. *A priori*, une décompression lente, supposée adiabatique, permet de remonter à la température dans le piège initial à partir de la température mesurée après décompression. Cette détermination indirecte de température repose alors sur un modèle thermodynamique [75, 76] dépendant de la forme harmonique ou semi-linéaire du piège (voir par exemple [141] et [28]). Pour les nuages de température élevée, typiquement supérieure à $50\ \mu\text{K}$, la forme du piège exploré par le gaz n’est ni purement harmonique ni purement semi-linéaire, ce qui rend imprécise la détermination de température ainsi réalisée. Pour des nuages plus froids pour lesquels le piège reste harmonique tout au long de la phase de décompression, cette

détermination devient *a priori* plus fiable, mais la température du nuage augmente significativement avec la durée de la phase de décompression à cause de processus collisionnels qui chauffent le gaz (voir paragraphe 3.3.2).

La seconde méthode de détection consiste simplement à couper brutalement le courant dans les cinq bobines qui constituent le piège. Le temps de vol doit alors être suffisamment long (typiquement 8 ms ou plus) pour que les courants de Foucault aient le temps de se dissiper. Seuls des nuages très froids dont “l’explosion” est suffisamment lente pour ne pas être trop dilués après 8 ms, peuvent donc être détectés par cette méthode. La température est directement déduite de la taille du nuage après expansion balistique. L’étude de la transition de phase vers la condensation de Bose-Einstein est menée à l’aide de cette méthode de détection (paragraphe 3.2). Le principal inconvénient de cette méthode est que la densité optique maximale d’un gaz détecté ainsi est notoirement plus faible que celle du même gaz détecté par la première méthode. Par conséquent, le rapport signal/bruit est aussi moins bon.

En conclusion, une amélioration significative de l’expérience consistera à supprimer les boucles de courant fermées dans le support du piège magnétique. Le diagnostic a pu être fait de manière indiscutable au cours du dernier démontage du piège. Le support des bobines de piégeage est constitué de barres métalliques produisant une armature en forme de cube. Une façon simple de faire consisterait à introduire des bagues de plastique isolant entre ces pièces métalliques qui s’emboîtent les unes dans les autres aux sommets du cube. Cependant le démontage complet du piège est nécessaire. C’est une opération lourde puisqu’elle nécessite le démontage partiel des optiques produisant les 6 faisceaux laser du MOT, ainsi que les faisceaux ralentisseur, repompeur, imageur et de pompage optique. Cette modification a donc été reportée à l’occasion d’un démontage futur du piège.

A.4 Expérience de chute libre

Dans notre expérience, la détection optique se fait quasiment toujours après avoir coupé le piège magnétique, et après un temps de vol pendant lequel le nuage s’étend et tombe. En variant la durée du temps de vol, on peut étudier la chute du nuage, s’il est suffisamment froid.

A.4.1 Calibration du grandissement

La détermination du grandissement peut se faire à l’aide d’un nuage gazeux très petit et très froid, obtenu par la technique du refroidissement évaporatif (voir paragraphe 3.1). Tout d’abord, la mise au point est réalisée en ajustant la position de la caméra de manière à obtenir l’image la plus petite possible du nuage, après un temps de vol très court, ou *in situ* (*i.e.* dans le piège magnétique). Ensuite, si l’on prépare un condensat peu dense, dans un piège très peu confinant, son expansion va rester faible y compris après un temps de vol suffisamment long pour observer la chute du nuage “en bloc” sous l’action de la pesanteur. Connaissant l’accélération de la pesanteur, et donc la distance parcourue après un temps de vol fixé, on peut en déduire le grandissement du système d’imagerie.

L’expérience de chute libre du nuage est illustrée sur la figure A.2. Un condensat est

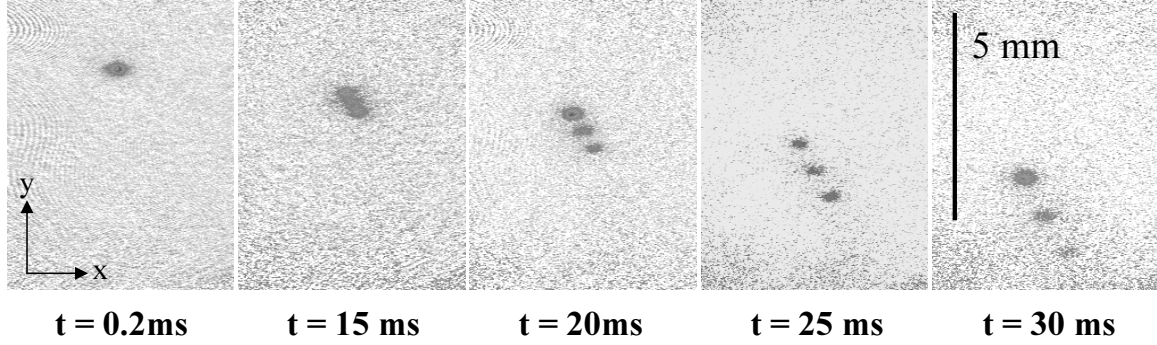


FIG. A.2 – *Expérience de chute libre du gaz. Les trois sous-niveaux Zeeman se trouvent peuplés par la coupure du piège magnétique. Les trois nuages correspondants, sont séparés pendant leur chute sous l'effet d'un gradient de champ magnétique résiduel.*

préparé dans les conditions habituelles (voir le chapitre 3). Le piège est ensuite ouvert en diminuant à 0 le courant dans les bobines Helmholtz, puis en diminuant adiabatiquement à 1.5 A le courant dans le piège QUIC. Le piège devient alors très mou, et la décompression subie par le nuage abaisse sa température vers $0.2 \mu\text{K}$. Alors le piège est coupé. Dans cette situation, la coupure du champ magnétique ne s'accompagne pas de courants de Foucault notables, mais elle engendre une dépolarisation du nuage, et les trois sous-niveaux Zeeman sont peuplés. De plus, compte tenu de la très faible raideur du piège ainsi décomprimé, l'expansion du gaz est très lente. Dans ces conditions, la séparation des trois composantes de spin par un gradient de champ résiduel ΔB devient plus importante que l'expansion du nuage. On observe alors trois petits nuages qui tombent sous l'effet cumulé de la pesanteur et du gradient ΔB . Cet effet découvert fortuitement s'est avéré très utile pour mesurer le grandissement. En effet, la visualisation des trois nuages nous permet d'affirmer avec certitude que le nuage central ($m_J = 0$) ne subit que l'accélération de la pesanteur, ce qui est important pour être sûr de calibrer la chute correctement.

Le relevé de la position de chacun des nuages en fonction du temps montre qu'ils subissent une accélération constante due à la pesanteur et, pour les composantes de spin $m_J = \pm 1$ à un gradient de champ homogène et stationnaire. Le barycentre des nuages $m_J = \pm 1$ est confondu avec le centre du nuage $m_J = 0$. Connaissant l'accélération de pesanteur $g = 9.81 \text{ m.s}^{-2}$, et la taille des pixels de 24 microns sur le détecteur CCD, on en déduit un grandissement de 0.89. L'erreur statistique sur cette détermination est de l'ordre de 1%. L'erreur systématique est difficile à estimer et dépend de la qualité de la mise au point. On pense que le grandissement est connu à environ 5 % près. Enfin, une fois le grandissement calibré, les forces subies par les composantes de spin ± 1 peuvent être mesurées. Il en ressort que le gradient de champ magnétique ΔB est homogène, stationnaire et de l'ordre de 40 mG/cm. C'est le gradient de champ résiduel qui règne autour du nuage.

Notons que la répartition entre les sous-niveaux Zeeman dépend très fortement de l'intensité du courant coupé dans le piège.

A.4.2 Chute libre d'un condensat

Dans une expérience typique de condensation, la détection se fait après la coupure subite du courant de 30A qui parcourt les 5 bobines du piège. L'objet de ce paragraphe est de décrire l'influence de cette coupure brutale, sur le vol et l'expansion du nuage. Nous avons déjà signalé que le nuage peut être dépolarisé par la coupure du champ magnétique, mais que la population dans les différents niveaux Zeeman dépend de l'intensité du courant coupé.

Dans l'expérience décrite ci-dessous, nous préparons un condensat dans le piège parcouru par un courant de 30 A (voir les chapitres 2 et 3). Puis nous visualisons son expansion après la coupure brutale du piège magnétique. Contrairement à l'expérience ci-dessus, nous ne visualisons qu'un seul nuage pendant toute la durée du temps de vol qui s'étend jusqu'à 20 ms. La figure A.3 représente les positions successives du centre de masse du nuage, le long des axes x et y , en fonction du temps. On constate que le nuage subit une chute libre, avec une vitesse initiale non nulle. Nous pensons que la coupure du champ magnétique produit, dans ces conditions, un gradient de champ magnétique important (en plus du gradient résiduel ΔB mesuré au paragraphe précédent). Ce gradient induit serait capable de communiquer une accélération au nuage pendant les premiers instants du vol.

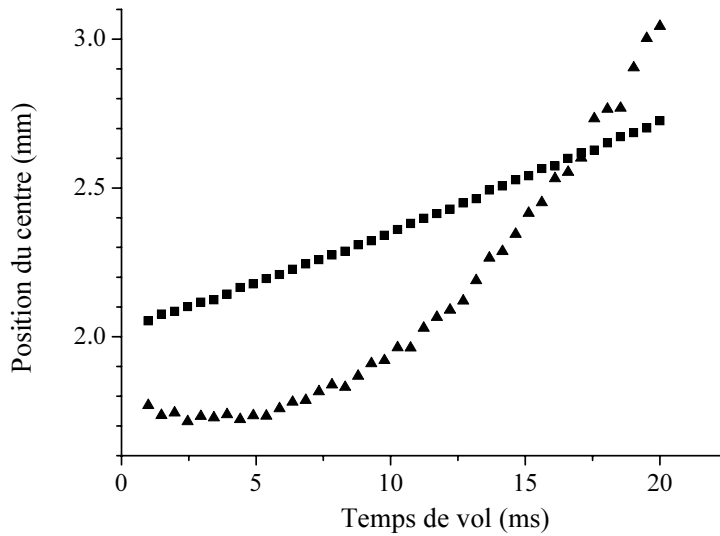


FIG. A.3 – Évolution de la position du centre de masse d'un condensat au cours de son expansion. Les carrés donnent la position suivant l'axe x (axe mou du piège), et les triangles donnent la position suivant l'axe y (axe vertical, orienté positivement vers le bas).

Dans cette expérience, si le nuage subissait une dépolarisation à la coupure, les trois composantes de spins seraient séparées, après temps de vol. La seule influence du gradient de champ résiduel ΔB mis en évidence par l'expérience de la figure A.2 suffirait à séparer distinctement les trois nuages. Une séparation encore plus grande pourrait être provoquée par le gradient de champ qui communique une vitesse initiale au nuage. Nous concluons de ces remarques que le nuage ne subit pas de dépolarisation lors de la coupure du champ magnétique dans cette expérience, contrairement à l'expérience décrite au paragraphe précédent. La

différence principale entre ces deux expériences, est qu'un courant élevé circule dans les cinq bobines du piège en série (Q1,Q2,B3, et les deux bobines Helmholtz; voir la figure 2.3), au moment où il est coupé, alors que dans l'expérience précédente, le courant dans les bobines Helmholtz a déjà été réduit à zéro lorsque l'on coupe subitement un courant faible dans les trois seules bobines du piège QUIC (Q1,Q2 et B3). Dans le premier cas, des courants de Foucault importants sont induits, mais apparemment pas de dépolarisation. Dans le second cas, il n'y a pas de courants de Foucault induits mais on peut observer une dépolarisation qui dépend de l'intensité du courant éteint.

En définitive, nous concluons que lors des expériences décrites aux chapitres 2 et 3, la détection des nuages, et en particulier la mesure de leur taille après expansion, n'est pas affectée par un phénomène de type Stern et Gerlach qui conduirait à une surestimation de la taille d'un nuage constitué en réalité de trois nuages plus petits se recouvrant partiellement.

Annexe B

Vers le régime hydrodynamique

Cette annexe présente l'étude réalisée dans le but de sonder les propriétés de collisions élastiques du gaz, et en particulier d'observer le régime hydrodynamique du gaz thermique. Le premier paragraphe rappelle les effets attendus des collisions élastiques sur les modes collectifs de vibration du nuage. Le second paragraphe présente les mesures expérimentales et les conclusions, sous forme de l'article publié dans le journal *Acta Physica Polonica*, vol. **B33**, p. 2213, en 2002, accessible en ligne à l'adresse électronique suivante:
<http://th-www.if.uj.edu.pl/acta/vol33/abs/v33p2213.htm>

B.1 Modes collectifs d'oscillation du gaz classique

Dans cette annexe, nous étudions les modes d'excitation collective du gaz dans un piège harmonique, c'est-à-dire ses modes propres de déformation et/ou dilatation. Pour ce genre d'études, on peut considérer la densité du gaz comme étant sa densité d'équilibre dans le piège $n_0(\vec{r})$, plus une perturbation dépendant du temps $\delta n(\vec{r}, t)$ qui, dans le cas général peut être décomposée sur la base des harmoniques sphériques $Y_l^m(\theta, \varphi)$ (voir par exemple [8]). Le mode $l = 0$ est appelé mode monopolaire, c'est le mode de "respiration" du gaz. L'oscillation du centre de masse du nuage dans le fond du potentiel de piégeage est, dans le cadre de cette description, un mode dipolaire $l = 1$. Les modes caractérisés par $l = 2$ sont appelés modes quadrupolaires.

Le contenu de ce paragraphe est une illustration graphique de l'article de Guéry-Odelin *et. al.* [89], en guise d'introduction au travail expérimental présenté ensuite. Les auteurs de cet article présentent une étude théorique des modes collectifs d'excitation d'un nuage ultra-froid piégé par un potentiel harmonique. Leur étude utilise l'équation de Boltzmann, ainsi que l'hypothèse selon laquelle la fonction de distribution du gaz en cours d'oscillation, reste toujours une gaussienne dans l'espace des positions et des impulsions. Les déformations étudiées pour le gaz sont du type monopolaire et quadrupolaire. L'excitation d'un mode collectif du gaz se traduit en particulier par une dépendance temporelle des dimensions σ_x , σ_y et σ_z de la densité (gaussienne) du nuage.

Dans un piège anisotrope, les modes monopolaire ($l = m = 0$) et quadrupolaire ($l = 2; m = 0$) sont couplés l'un à l'autre, conduisant à deux nouveaux modes propres distincts, les

modes “monopole-quadrupole”. Ces deux modes sont caractérisés par des fréquences propres complexes différentes (la partie imaginaire définissant un amortissement), qui dépendent du taux de collision élastique, et de la géométrie du piège. La figure B.1 illustre les oscillations du nuage pour chacun de ces deux modes.

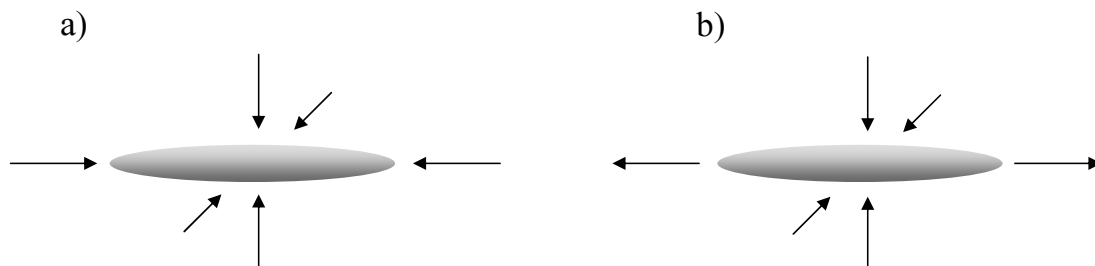


FIG. B.1 – Illustration graphique des modes d’excitations monopole-quadrupole. Dans un piège harmonique anisotrope, les modes monopolaire et quadrupolaire $m = 0$ sont couplés, conduisant à deux modes propres appelés “monopole-quadrupole”:

a) le mode de fréquence élevée; sa fréquence s’exprime en fonction de $\omega_{\perp}/2\pi$,

b) le mode de fréquence basse; sa fréquence s’exprime en fonction de $\omega_{\parallel}/2\pi$.

Les fréquences propres des deux modes, ainsi que leur amortissement, dépendent en réalité du taux de collisions élastiques (voir la figure B.2).

La figure B.2 représente, dans le plan complexe, le lieu des fréquences propres associées à ces deux modes. Elle a été tracée à partir des expressions données dans la référence [89]. Dans le cadre de cette thèse, nous avons excité, dans un piège anisotrope, le plus lent des deux modes monopole-quadrupole. Avec un rapport d’aspect $\omega_{\perp}/\omega_{\parallel} \simeq 9$, la limite du piège infiniment allongé est atteinte, et les fréquences et amortissements mesurés expérimentalement sont à comparer directement à la courbe en trait noir continu de la figure B.2. Ce travail est décrit dans le paragraphe suivant.

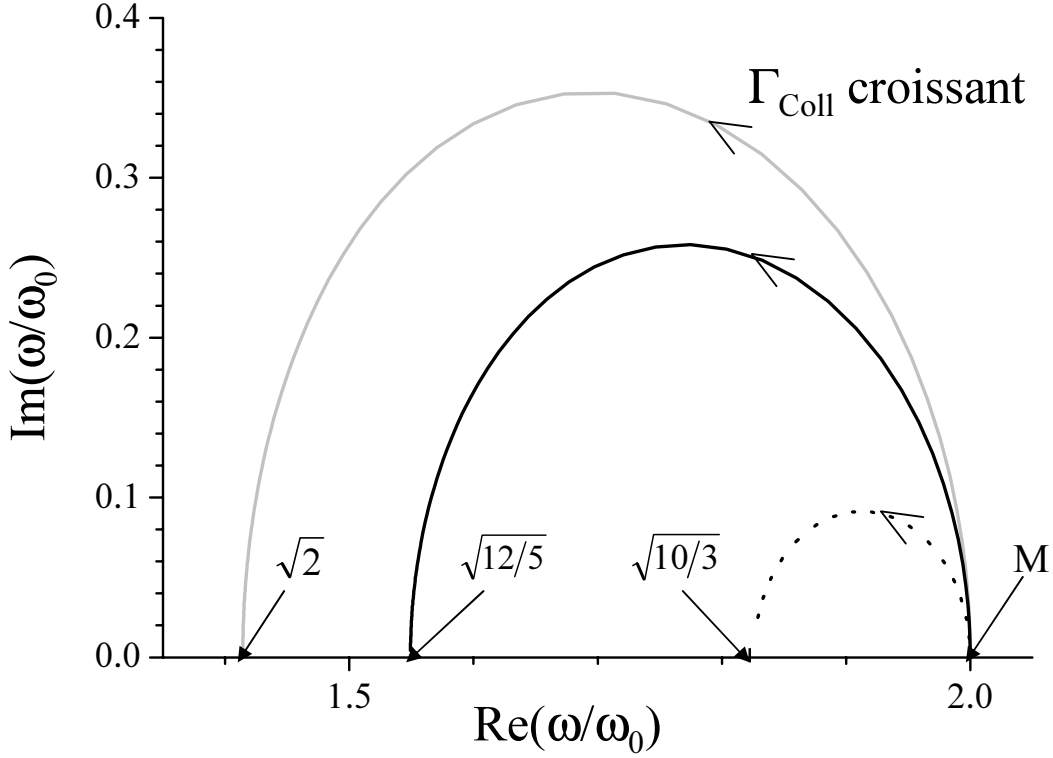


FIG. B.2 – Représentation, dans le plan complexe, des deux fréquences propres “monopole-quadrupole” telles qu’elles sont données par la référence [89], en fonction de la géométrie du piège, et du taux de collision.

a) La courbe grise et le point M représentent les solutions obtenues pour un piège sphérique: dans ce cas les 2 modes propres sont le mode monopolaire et le mode quadrupolaire $m = 0$. Le mode monopolaire est indépendant des collisions élastiques et vibre à la fréquence $\omega = 2\omega_0$, sans amortissement (point M). Le mode quadrupolaire $m = 0$ a une fréquence propre comprise entre $\sqrt{2}\omega_0$, dans le régime hydrodynamique ($\Gamma_{\text{Coll}} \rightarrow \infty$), et $2\omega_0$, dans le régime sans collisions ($\Gamma_{\text{Coll}} \rightarrow 0$). Ce mode a un amortissement nul dans les deux cas extrêmes, mais s’amortit dans le régime intermédiaire ($\text{Im}(\omega/\omega_0) \neq 0$).

b) Les courbes noires représentent les solutions obtenues dans un piège cylindrique infiniment allongé. Les deux modes sont caractérisés par un amortissement nul dans les régimes hydrodynamique et sans collision, non nul dans le régime intermédiaire. La courbe en trait noir continu représente le lieu des fréquences propres du mode lent ($\omega_0 = \omega_{\parallel}$). Lorsque Γ_{Coll} augmente de 0 à l’infini, la fréquence propre diminue continûment de $2\omega_{\parallel}$ à $\sqrt{12/5}\omega_{\parallel}$. C’est ce mode que nous avons étudié expérimentalement (voir le paragraphe suivant). La courbe en trait noir pointillé représente le lieu des fréquences propres du mode rapide ($\omega_0 = \omega_{\perp} > \omega_{\parallel}$).

B.2 Expériences et résultats

L’article reproduit ci-dessous (publié dans Acta Phys. Pol., vol. **B33**, p. 2213, en 2002) décrit l’expérience réalisée dans le but de vérifier expérimentalement la théorie résumée ci-dessus, dans le cas du mode monopole-quadrupole le plus lent. Le nuage est tout d’abord refroidi jusqu’à une température typique de quelques T_C . La fréquence radiale de piégeage est ensuite modulée à une fréquence proche de la fréquence de résonance attendue pour le

mode étudié, en modulant le biais B_0 . A l'instant $t = 0$, la modulation est stoppée, et le nuage commence à relaxer dans un piège magnétique plus ou moins raide selon la valeur finale choisie pour B_0 . Les oscillations du nuage sont alors visualisées en prenant des images *in situ* du gaz, après des temps de piégeage t variables. La fréquence et l'amortissement de l'oscillation de la taille longitudinale sont alors extraits d'un ajustement par une sinusoïde exponentiellement amortie. La fréquence propre complexe du mode ainsi mesurée est ensuite reportée sur le graphe B.2, et la confrontation avec la théorie nous permet d'en déduire une mesure du taux de collisions élastiques dans le gaz. Deux conclusions sont tirées. La première est que le taux de collisions maximal mesuré ainsi est voisin de $3.5 \times 10^3 \text{ s}^{-1}$, ce qui est inférieur d'un facteur 10 au taux de collisions estimé par la calibration du nombre d'atomes à la transition de phase et la mesure de a à partir de la mesure de taille du condensat. La seconde observation est que le taux de collisions décroît en fin de rampe d'évaporation, lorsque l'on approche de la condensation (voir également le chapitre 3).

Signalons que depuis nos travaux, l'équipe de J. Walraven (Amsterdam) a produit un nuage ultra-froid de ^{87}Rb s'approchant nettement plus du régime hydrodynamique [85]. Le processus de refroidissement évaporatif adopte dans ces conditions un comportement qualitativement différent qui conduit à une température inhomogène du gaz, et à la production d'un condensat de Bose-Einstein hors d'équilibre.

HYDRODYNAMIC MODES IN A TRAPPED GAS OF METASTABLE HELIUM ABOVE THE BOSE–EINSTEIN TRANSITION*

M. LEDUC, J. LÉONARD, F. PEREIRA DOS SANTOS, E. JAHIER
S. SCHWARTZ AND C. COHEN-TANNOUDJI

Collège de France et Laboratoire Kastler Brossel
Département de Physique, École Normale Supérieure
24 rue Lhomond, 75231 Paris Cedex 05, France

(Received June 10, 2002)

This article describes experiments performed with an ultra-cold gas of metastable helium above the Bose–Einstein transition. The gas is trapped in an harmonic magnetic potential and collective excitations are induced. Both the frequency and the damping rate of the lowest monopole–quadrupole $m = 0$ mode of excitation are studied at different temperatures and compared to theoretical predictions. Results indicate that the gas goes from a collisionless regime towards a hydrodynamic regime as the elastic collision rate increases, when one goes down along the evaporative cooling ramp. However, we find a discrepancy for the collisional parameters in comparison with predictions relying on the value of the scattering length previously estimated. Possible explanations are put forward in the final discussion.

PACS numbers: 03.75.Fi, 05.30.Jp, 32.80.Pj

1. Introduction

Soon after the experimental realization of Bose–Einstein condensation in trapped atomic gases, studies of collective excitations in these systems have become a subject of intense investigation by several groups [1–6]. At very low temperature, when the system is Bose–Einstein condensed, it can be described by the hydrodynamic equations of a superfluid [4, 7], which give predictions in good agreement with experiments performed with alkali condensates. At higher temperature, the mean field effects become less important and collisions turn out to be the dominant factors. For an ultra-cold

* Presented at the Photons, Atoms and All That, PAAT 2002 Conference, Cracow Poland, May 31–June 1, 2002.

gas above the critical temperature of condensation, the dynamical behavior of the dilute gas can be described by the Boltzmann equation. In this case two extreme situations can occur: — the hydrodynamic regime, where the mean free path between the colliding particles is small compared to the dimensions of the cold cloud confined in its trap — and the collisionless regime where the motion is described by the single particle Hamiltonian. In both cases, when excited, the system shows well-defined oscillations resulting from the external magnetic confinement, for which predictions have been made (see for instance [5] or [6] and references therein). The frequency and the damping rates of the gas oscillations can be calculated for a classical gas confined in an harmonic trap, neglecting the mean field effects. In reference [6] results are given for the monopole–quadrupole modes of excitation, both for the hydrodynamic and for the collisionless regime, with an explicit description of the transition between the two regimes. Many experimental studies have focused on collective excitations of such gases. Experiments have studied low-lying excitations over large ranges of temperature. For all the available data dealing with the thermal cloud of trapped alkali gases significantly above the critical temperature T_c the regime is collisionless, due to the relatively low value of the atomic density and of the s -wave scattering length ruling the elastic collision rate at very low temperatures. Experiments performed at MIT with a dense gas of sodium provided oscillations of the thermal cloud analogous to first sound and approaching the hydrodynamic regime [3]. However, this regime was never completely reached and the complete check of the predictions of [6] is still to come.

When Bose–Einstein condensation of metastable helium was first achieved in 2001 [8, 9], it was soon realized that the large estimated value of the scattering length (16 ± 8 nm) would favor a situation where the hydrodynamic regime could be observed in the thermal cloud above T_c . In particular our experiment at ENS seemed appropriate for such a study because of its relatively large number of atoms at the transition (8×10^6). We thus decided to focus on the study of collective excitations in the thermal cloud above T_c . The present article first briefly recalls the experimental set-up and the quantitative results already obtained for the relevant parameters: atomic density, temperature, elastic collision rate at the end of the evaporative cooling ramp. Then we explain the generation of excitations in the cigar shaped thermal cloud and describe the optical measurements of the oscillations of the monopole–quadrupole $m = 0$ mode generated along the weak axis of the cloud. The data for the damping and the frequency of the mode are compared with the predictions of reference [6] and a discussion follows. In particular one finds a discrepancy between the elastic collision rate estimated from the initial data of [9] and those actually measured through the present method.

2. Magnetic trapping and optical detection

The production of a Bose–Einstein condensate of ^4He atoms in the metastable 2^3S_1 state at ENS is first reported in [9] and described in more detail in [10]. The metastable atoms are produced from a cryogenic discharge source at a rate of 10^{14} at/s/sr. The atomic beam is manipulated by a laser operating on the 2^3S_1 – 2^3P_2 transition of the helium atom at $1.083\ \mu\text{m}$. After transverse collimation, deflection and longitudinal deceleration in a 2 m long Zeeman slower, the beam loads a magneto–optical trap using laser beams with a large detuning compensated by a large intensity, in order to minimise the rate of inelastic Penning collisions induced by the laser [11–16].

The atomic cloud of typically 10^9 atoms at 1 mK is then transferred into a magnetic trap through a multistep process [10] with an efficiency of about 75%. The magnetic trap that we use for the confinement is sketched in Fig. 1.

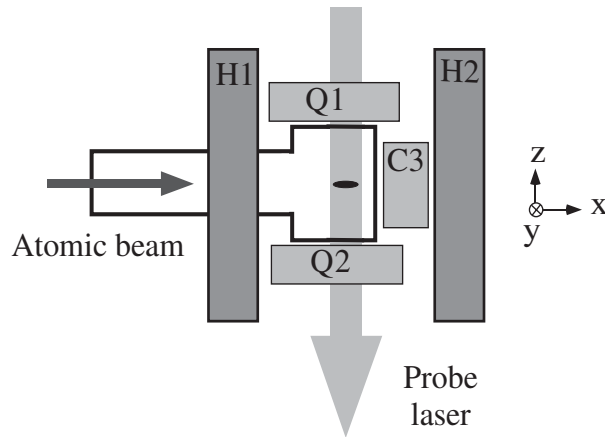


Fig. 1. Magnetostatic trap for the harmonic confinement of the cold helium gas. Q1, Q2, C3 are the Ioffe–Pritchard coils, H1 and H2 are the Helmholtz coils for the bias compression. The detection is optical, using the absorption of a probe laser beam imaged on a CCD camera.

Three coils Q1, Q2, C3 of relatively small size realize an anisotropic magnetic Ioffe–Pritchard trap. Two additional Helmholtz coils H1 and H2 reduce the bias field in order to increase the radial confinement. A current of 46.6 A in all five coils produces a 5 G bias field, radial gradients of 266 G/cm and an axial curvature of 186 G/cm². The trap depth is then about 16 mK, the trap frequency along the x axis ($\parallel$) is $\omega_{\parallel}/2\pi = \omega_x/2\pi = 115$ Hz. The radial frequency is $\omega_y/2\pi = \omega_z/2\pi = 190$ Hz without compensation of the bias and 988 Hz with a 5 G bias field. The cold cloud at thermal equilibrium has a cigar shape, elongated along the x axis and with a cylindrical symmetry

in the radial directions along the y and z axis. When required the cloud can be further compressed in the radial direction: for this we use another pair of Helmholtz coils delivering an additional field along the x axis which reduces the value of the bias field below 5 G down to nearly 0. The current in the 5 coils can be switched off in 200 μs , but eddy currents induced in several pieces of the set-up in the vicinity of the cell create relatively strong transient field gradients which disappear with a time scale of a few ms. One has to take into account this phenomenon which can create some difficulties when deducing quantitative values from time of flight measurements.

The optical detection is shown in Fig. 1. One measures the absorption of a laser probe beam passing through the atomic cloud with a CCD camera (Hamamatsu C4880) with 1.5% efficiency at the wavelength $\lambda = 1.083 \mu\text{m}$. The laser source is a DBR diode laser (SDL 60702 H1) operated in an extended cavity and amplified by an Yb doped amplifier. The probe pulse is long enough (100 μs) and intense enough ($I = 0.2I_{\text{sat}}$) to give a reasonable signal to noise ratio in spite of the low efficiency of the detector. The magnification being of the order of 1, the resolution of the images is given by the size of the detector pixel, namely 24 μm . Usually the image of the cold cloud in the trap is too small to be detected with a good resolution. Thus after switching off the trap, we let the cloud expand for a few ms and take a picture. We deduce from the images both the actual size of the cloud in the trap and its temperature.

The temperature is ramped down in the magnetic trap by evaporative cooling. Details about the optimisation of the ramp are given in reference [10]. In 8 s one decreases the temperature down to the μK range, whereas the phase space density increases by 6 orders of magnitude and one reaches the Bose–Einstein condensation around 5 μK . At the threshold of the transition the dimensions of the cloud have decreased to 90 and 9 μm in the axial and radial directions, respectively.

3. Relevant parameters

3.1. Number of atoms

An important parameter for collision studies is the total number of atoms. As already discussed in [9], a proper calibration of this number N is difficult to extract with a good precision from the absorption images, due to various difficulties dealing with the duration of the pulse, the Penning collisions that it induces, its pushing of the atoms, and stray magnetic fields produced by eddy currents. We are currently developing a calibration method based on fluorescence measurements that will be published elsewhere. For the time being we prefer to rely on the method discussed in [9] based on the determination of the critical temperature T_c for the condensation. T_c is de-

duced from measurements of the relative number of atoms in the condensate and in the thermal cloud as a function of temperature. The determination of the critical temperature does not require knowing the absolute number of atoms in each phase. However, it can be used to evaluate the number of atoms N_c at the transition, assuming that one deals with an ideal bosonic gas. If so, N_c and T_c are related by

$$N_c = 1.2 \left(\frac{k_b T_c}{h\bar{\nu}} \right)^3, \quad (1)$$

where h is the Planck constant, k_b the Boltzmann constant and $\bar{\nu}$ the geometrical average of frequencies of the trap (482 Hz). Measurements of reference [9] gave $T_c = 4.7 \pm 0.5 \mu\text{K}$. One thus deduces $N_c = 8.2 \times 10^6$ atoms with an uncertainty of 30%. We neglected the possible errors resulting either from mean field interactions or from quantum correlations (see the discussion of note 13 in reference [9]). Once calibrated at T_c the number of atoms N is deduced for any temperature above T_c .

3.2. Scattering length

The scattering length a is another important parameter relevant for the present studies, as the scattering processes for metastable helium atoms occur only in the s -wave channel at very low temperatures. There are several ways of estimating the value of a from the present experiment. All of them suppose that the absolute number of atoms is known. As the uncertainty on this number is large, the value of a is also derived with a large error bar. We here chose to rely on the method described in [9], in which the scattering length is deduced from the size of the condensate. Its value is determined from the characteristic size of the ground state of the trap and from the chemical potential μ , which can be calculated from the size of the condensate in the Thomas–Fermi limit [4]. We then find the value $a = 16 \pm 8$ nm, consistent with the experimental measurement of [8] and theoretical calculations of [18] and [19] estimating a of the order of 8 nm (with no error estimate). A recent calculation [20] is also compatible with the present experimental value but does not give more indication on its precision.

3.3. Elastic collision rates

Finally from the previous values of parameters N_c and a , one can deduce a value for the elastic collision rate Γ_{coll} in the thermal cloud just at the transition before condensation. We use the simple formula

$$\Gamma_{\text{coll}} = \bar{n}\sigma\bar{v} \quad (2)$$

where $\bar{n}$ is the average density and $\bar{v}$ is the mean relative velocity of the atoms at the transition temperature of $4.7 \mu\text{K}$. One easily finds that

$$\bar{v} = 4\sqrt{\frac{k_{\text{b}}T}{\pi m}} = 23 \text{ cm s}^{-1}$$

and

$$\bar{n} = 1.4 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}.$$

The value of the cross section σ is estimated from that of the scattering length by

$$\sigma = 8\pi a^2 = 6.4 \times 10^{-11} \text{ cm}^2$$

which finally results in

$$\Gamma_{\text{coll}} = 2 \times 10^4 \text{ s}^{-1}. \quad (3)$$

The uncertainty on this value is estimated within a factor of 4 which combines those on a , on N_{c} and on T . However, it can be compared to the low angular frequency of the trap ($\omega_{\parallel} = 2\pi \times 115 \text{ Hz}$), and one finds a ratio $\omega_{\parallel}/\Gamma_{\text{coll}} = 0.04$, much smaller than 1. A collision rate higher than the trap frequency also means that the mean free path $L \sim 1/\bar{n}\sigma$ of the atoms between collisions is smaller than the dimensions of the cloud. Near the critical temperature, $L \sim 11 \mu\text{m}$, which is smaller than the size of the cloud along the weak axis $\sigma_{\parallel} \sim 140 \mu\text{m}$. We can thus assume that one enters into the hydrodynamic regime, an interesting feature for a cold gas above the transition, as stated in the introduction. These results motivated us to undertake the following studies of the collective excitations in the thermal cloud above T_{c} .

4. Generation and detection of excitation modes

We decided to generate the lowest excitation modes in the cold gas. The goal of this study is to observe the oscillations of the cold cloud in the axial direction after it receives a kick appropriate to generate the monopole–quadrupole $m = 0$ mode. Let us recall that in an anisotropic trap the modes $l = m = 0$ (monopole) and $l = 2, m = 0$ (quadrupole) are coupled and this results in two so-called “*monopole–quadrupole*” modes. We study the low-frequency monopole–quadrupole mode, for which the axial and radial oscillations are in opposite phase.

The calculations of reference [6] predict changes for the frequency ω_Q and for the damping Γ_Q of the oscillation mode when the collision rate varies from a collisionless regime to a hydrodynamic regime (see Fig. 3).

We thus decided to measure the response in time of the ellipticity of the cloud after the mode is excited. We repeated the measurements at various temperatures above T_c in a large range of collision rates, expecting to reach the hydrodynamic regime at the vicinity of the condensation transition.

The excitation is made by a transient pulse of magnetic field giving a kick to the trapped cloud. Several procedures were used and finally we found that the most efficient one is the following one:

- One starts with the gas at rest in the trap at a given temperature T above T_c in the conditions used for the evaporative cooling ramp, namely with a bias field B_0 of 5 G resulting of an equal current in the 5 coils of the trap;

- One abruptly lowers the bias field B_0 along the weak axis (x direction) to a fraction of a Gauss by applying an appropriate current to the additional bias coils mentioned above. This creates a compression in the radial direction, the cloud becomes very elongated. The trap is no longer harmonic but the atomic density increases dramatically;

- One simultaneously creates a sinusoidal modulation of this compression field with the additional bias coils. The amplitude of the short modulation pulse is of order 0.15 G, its duration of order 15 ms (3 periods). We chose a modulation frequency of 180 Hz, intermediate between $2\nu_{||}$ and $1.55\nu_{||}$ which are the expected frequencies for the low frequency monopole–quadrupole mode in the two extreme cases, the collisionless regime and the hydrodynamic regime [6];

- Just after this pulse one changes the bias field again and sets it to about 2 G, a value significantly lower than the usual bias field B_0 of 5 G. This value is chosen in order to obtain the maximum compression of the gas compatible with an harmonic trap. On the one hand the higher the compression, the larger the collision rate, facilitating the entrance into the hydrodynamic regime. On the other the trap has to remain harmonic, meaning that the condition $\mu B/k_b T \gg 1$ must remain fulfilled, to avoid that the intrinsic frequency of the trap is changed by the anharmonicity.

One can show that such a procedure allows to excite the low frequency monopole–quadrupole mode $m = 0$.

5. Experimental results, comparison with theory

We monitor the evolution of the ellipticity of the cloud as a function of time after the oscillation is produced. Actually the ellipticity oscillates at the same frequency as the collective mode with the same damping in case of a sufficiently small excitation. A measurement is shown in Fig. 2.

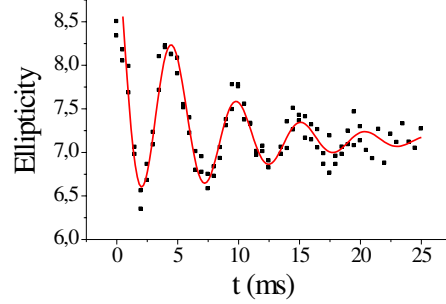


Fig. 2. Oscillations of the ellipticity of the atomic cloud in the monopole–quadrupole $m = 0$ mode. The frequency and damping given by the fit are $\omega_Q/\omega_{\parallel} = 1.66$ and $\Gamma_Q/\omega_{\parallel} = 0.22$.

From such data one extracts the oscillation frequency ω_Q and the damping rate Γ_Q of the excitation mode. For instance the results of Fig. 2, taken at $3T_c$, give $\omega_Q/2\pi = 191 \pm 6$ Hz and $\Gamma_Q/2\pi = 25.3 \pm 0.8$ Hz. This experiment is repeated several times at different values of the elastic collision rate obtained by varying the final frequency of the RF knife of the evaporation ramp.

The results are compared with the predictions of the classical theory of reference [6], which are recalled in Fig. 3.

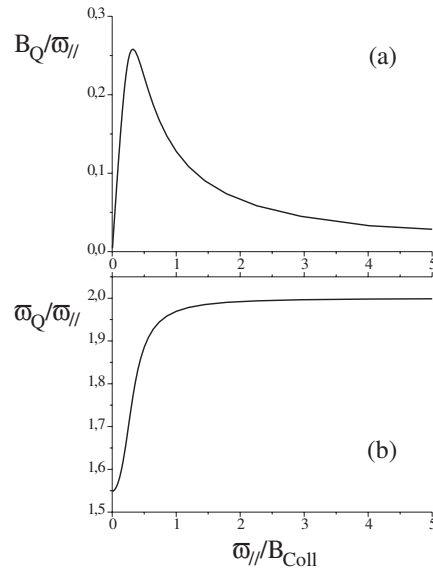


Fig. 3. Theoretical predictions of [6] for the low frequency monopole–quadrupole mode $m = 0$ of an elongated cloud of cold gas as a function of the elastic collision rate. On the upper part (Fig. 3(a)) is plotted the damping of the oscillations, and on the lower part (Fig. 3(b)) the frequency of the oscillations, both in units of $\omega_{\parallel}$, the axial (weak) frequency of the trap. (Figure taken from [6]).

These results derive both from numerical simulations and from analytical calculations, which are in excellent agreement. One notes that the ratio $\omega_Q/\omega_{||}$ decreases from 2 for the collisionless regime to 1.55 for the hydrodynamic regime, whereas $\Gamma_Q/\omega_{||}$ goes to 0 at *both* ends but reaches a maximum in between the two regimes. The results of Fig. 3(a) and Fig. 3(b) can be combined to give the curve of Fig. 4.

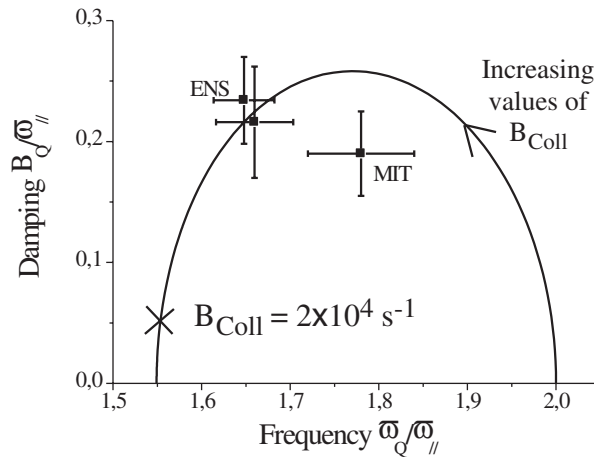


Fig. 4. Plot of the frequencies and damping rates of the lowest monopole-quadupole mode $m=0$. The solid line summarizes the theoretical calculation already mentioned in Fig. 3. The cross corresponds to the estimated value of the collision rate $\Gamma_{\text{coll}} = 2 \times 10^4 \text{ s}^{-1}$ for metastable helium as derived from [9]. The arrow indicates the displacement on the curve when Γ_{coll} increases. ENS: Experimental results of this work for metastable helium. MIT: Experimental data point of [3] for sodium.

Fig. 4 shows the experimental data we obtained. The advantage of such a presentation is that only relative values of the measured frequencies are used, which are known with good precision. One does not require knowledge of the collision rates, which is difficult due to the uncertainties in the present stage of the experiment. In Fig. 4 we plotted the points (called “ENS”) corresponding to the highest collision rates that we were able to achieve at a temperature of about $3T_c$. The comparison between experimental data and theoretical calculation allows us to make an indirect measurement of the elastic collision rate in the excited cloud. The highest collision rate that we obtained is in the range of $3.5 \times 10^3 \text{ s}^{-1}$. One remarks that we were unable to reach the expected collision rate of $2 \times 10^4 \text{ s}^{-1}$ which is indicated with a cross in Fig. 4 and which was estimated independently at the transition [9]. We also plotted the results obtained by the group of Ketterle at MIT [3] for cold Na atoms.

6. Discussion

Usually, when the initial elastic collision rate is high enough, the RF evaporation ramp enters in the so-called run-away regime, where both phase space density and Γ_{coll} increase exponentially. So we expect to measure the highest collision rate at the Bose–Einstein transition. In our case, we observed that the phase space density always increases (leading to the Bose–Einstein condensation) but on the contrary, at the very end of the evaporation ramp, the collision rate starts to decrease. The two behaviors are not incompatible since the phase space density scales like N/T^3 whereas the collision rate scales like N/T . Monitoring the evolution of the elastic collision rate along the evaporation ramp can be easily done while monitoring the Optical Density (OD) at the center of the cloud. Actually, both quantities are proportional in a harmonic trap: $\text{OD} \propto N/T \propto \Gamma_{\text{Coll}}$. The evolution of the optical density of the cloud during the evaporative cooling is plotted in Fig. 5. This plot shows that the highest elastic collision rate we can produce is obtained at about $3T_c$. Then, instead of getting deeper into the hydrodynamic regime, the elastic collision rate turns back towards lower values while approaching the transition.

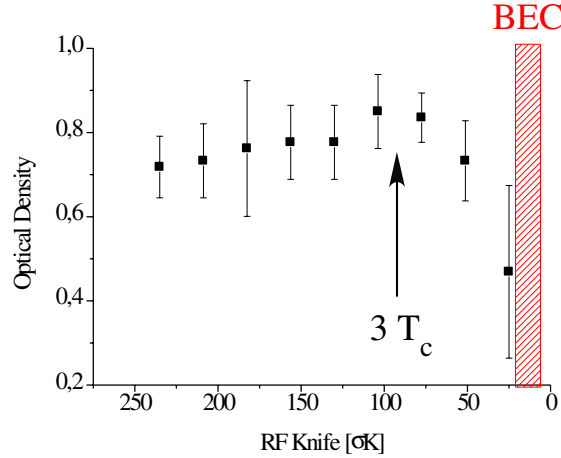


Fig. 5. Measurement of the optical density at the center of the cloud as a function of the trap depth at the end of the evaporative cooling ramp. The optical density being proportional to the elastic collision rate in a harmonic trap, this plot shows that one leaves the run-away regime below a temperature of about $3T_c$.

Actually, while studying the monopole–quadrupole excitation, the highest elastic collision rate measured in Fig. 4 ($\Gamma_{\text{Coll}}^{\text{max}} \sim 3.5 \times 10^3 \text{ s}^{-1}$) was obtained after evaporation down to about $3T_c$, and *after additional compression* of the magnetic trap. From this value we can infer the corresponding

elastic collision rate before additional compression: $2 \times 10^3 \text{ s}^{-1}$. Then, from Fig. 5 we can infer the collision rate at the critical temperature T_c which is about twice as small, leading to 10^3 collisions per second. This value is about 20 times smaller than the one derived from the measurement of the critical temperature of the phase transition.

Within our error bars, assuming 8 nm for the scattering length instead of 16 nm reduces by 4 the discrepancy between the two independent measurements of the elastic collision rate. Then, when we first estimated the collision rate knowing the critical temperature, the number of atoms at the transition was nearly twice as large as it was when we produced collective excitations, which also explains part of the discrepancy. Still it is not enough to conclude to the agreement between the two values. We are still working on improving the accuracy of both kinds of measurement to understand the discrepancy. In particular we started studying in more detail the effects of eddy currents on the measurement of the temperature. In fact, magnetic fields remaining after the switching off of the trap Zeeman shift the optical lines and modify the absorption cross section of atoms during the optical detection. This modification is not homogeneous in space and might lead to a systematic error on the effective measurement of the size of the cloud after free expansion, and, consequently, of the critical temperature.

In order to find out why we leave the run-away regime at the end of the evaporative ramp, we studied losses and heating rates. For instance we measured heating rates of $20 \mu\text{K/s}$ at $3T_c$. A possible explanation is related to inelastic Penning Ionization taking place when the density becomes high enough. A dominant process is the formation of He^+ ions and He atoms in the ground state which have very large kinetic energy originated from the internal energy of the metastable atoms (about 20 eV). These hot products might collide with trapped metastable atoms and heat them up *via* elastic collisions [21]. Estimates from numbers given in [21] lead to the right order of magnitude for the heating rate. The more hydrodynamic, the more efficient the heating process will be [22], apparently leading to a limitation in the highest elastic collision rate we can produce.

In conclusion, the route towards the hydrodynamic limit has been explored further than in any other reported experiment on collective excitation modes. Especially the measured frequency of the excited mode is strongly shifted towards the hydrodynamic regime as predicted. The experiment is still under progress, and we hope to go deeper into the hydrodynamic regime. However, intrinsic limitations due to inelastic collisions have been found.

The authors wish to thank the writers of [6] for allowing the reproduction of part of their work (Fig. 3). This work was supported by La Région Ile-de-France through SESAME contract number 521027.

REFERENCES

- [1] S. Giorgini, L.P. Pitaevskii, S. Stringari, *Phys. Rev. Lett.* **78**, 3987 (1997).
- [2] D.S. Jin, M.R. Matthews, J.R. Ensher, C.E. Wieman, E.A. Cornell, *Phys. Rev. Lett.* **78**, 764 (1997).
- [3] D.M. Stamper-Kurn, H.-J. Miesner, S. Inouye, M.R. Andrews, W. Ketterle, *Phys. Rev. Lett.* **81**, 500 (1998).
- [4] F. Dafolvo, S. Giorgini, L.P. Pitaevskii, S. Stringari, *Rev. Mod. Phys.* **71**, 463 (1999).
- [5] A. Griffin, Wen-Chin Wu, S. Stringari, *Phys. Rev. Lett.* **78**, 1838 (1997).
- [6] D. Guéry-Odelin, F. Zambelli, J. Dalibard, S. Stringari, *Phys. Rev.* **A60**, 4851 (1999).
- [7] S. Stringari, *Phys. Rev. Lett.* **77**, 2360 (1996).
- [8] A. Robert, O. Sirjean, A. Browaeys, J. Poupard, S. Nowak, D. Boiron, C.I. Westbrook, A. Aspect, *Sci. Mag.* **292**, 463 (2001).
- [9] F. Pereira dos Santos, J. Léonard, Junmin Wang, C.J. Barrelet, F. Perales, E. Rasel, C.S. Unnikrishnan, M. Leduc, C. Cohen-Tannoudji, *Phys. Rev. Lett.* **86**, 3459 (2001).
- [10] F. Pereira dos Santos, J. Léonard, Junmin Wang, C.J. Barrelet, F. Perales, E. Rasel, C.S. Unnikrishnan, M. Leduc, C. Cohen-Tannoudji, *Eur. Phys. J.* **D19**, 103 (2002).
- [11] F. Bardou, O. Emile, J.M. Courty, C.I. Westbrook, A. Aspect, *Europhys. Lett.* **20**, 681 (1992).
- [12] H.C. Mastwijk, J.W. Thomsen, P. van der Straten, A. Niehaus, *Phys. Rev. Lett.* **80**, 5516 (1998).
- [13] M. Kumakura, N. Morita, *Phys. Rev. Lett.* **82**, 2848 (1999).
- [14] P.J.J. Tol, N. Herschbach, E.A. Hessels, W. Hogervorst, W. Vassen, *Phys. Rev.* **A60**, R761 (1999).
- [15] F. Pereira Dos Santos, F. Perales, J. Léonard, A. Sinatra, Junmin Wang, F.S. Pavone, E. Rasel, C.S. Unnikrishnan, M. Leduc, *Eur. Phys. J.* **D14**, 15 (2001).
- [16] A. Browaeys, J. Poupard, A. Robert, S. Nowak, W. Rooijakkers, E. Arimondo, L. Marcassa, D. Boiron, C.I. Westbrook, A. Aspect, *Eur. Phys. J.* **D8**, 199 (2000).
- [17] Y. Castin, R. Dum, *Phys. Rev. Lett.* **77**, 5315 (1996).
- [18] P.O. Fedichev, M.W. Reynolds, U.M. Rahmanov, G.V. Shlyapnikov, *Phys. Rev.* **A53**, 1447 (1996).
- [19] V. Venturi, I.B. Whittingham, *Phys. Rev.* **A61**, 060703 (2000).
- [20] F.X. Gadéa, T. Leininger, A.S. Dickinson, to be published in *J. Chem. Phys.*
- [21] H.C.W. Beijerinck, E.J.D. Vredenburg, R. J.W. Stas, M.R. Doery, J.G.C. Tempelaars, *Phys. Rev.* **A61** 023607 (2000).
- [22] J. Schuster, A. Marte, S. Amtege, B. Sang, G. Rempe, H.C.W. Beijerinck, *Phys. Rev. Lett.* **87**, 170404 (2001).

Annexe C

Complément au chapitre 6

C.1 Combinaisons linéaires d'orbitales atomiques: construction de la base du cas (a) de Hund

Nous proposons de construire ici l'ensemble des états de la base du cas (a) de Hund, à partir des orbitales atomiques dans les deux cas $2^3S + 2^3S$, et $2^3S + 2^3P$. En l'absence de structure fine (c'est le cas pour $2^3S + 2^3S$), les vecteurs de base du cas (a) de Hund sont les états propres de l'hamiltonien électronique de la molécule. Dans le cas $2^3S + 2^3P$, seule la partie non relativiste de l'hamiltonien électronique moléculaire est diagonale dans la base du cas (a) de Hund.

C.1.1 Le cas $2^3S + 2^3S$

Nous construisons les états électroniques d'une paire d'atomes He^* à partir des états produits de deux orbitales 2^3S_1 . Chaque atome a un moment cinétique orbital nul, et un spin 1. Par conséquent le moment cinétique orbital électronique total reste nul, donc de projection nulle sur l'axe inter-atomique; il n'y a donc que des états Σ . De plus le spin total est 0, 1 ou 2, conduisant respectivement à des états moléculaires de multiplicité 1, 3 ou 5. Il existe donc 9 états électroniques Σ résultant de la combinaison linéaire de deux orbitales atomiques 2^3S .

Considérons les propriétés de symétrie de la partie de spin de la fonction d'onde moléculaire. La projection $M_S = +2$ du quintuplet résulte de la somme de deux spins 1 alignés. L'échange de ces deux spins entre eux laisse la fonction d'onde moléculaire inchangée, c'est donc un état de spin symétrique, de même que les quatre autres projections du quintuplet, et que l'état singulet. L'état triplet est un état de spin antisymétrique. L'échange des deux spins revient donc à multiplier la fonction d'onde par $(-1)^S$, avec $S = 0, 1, 2$ le spin total de la paire d'atomes.

La propriété de l'état électronique moléculaire vis-à-vis de la symétrie de réflexion est évidente (voir la figure C.1-a). En effet, les deux orbitales atomiques 2^3S ont une forme sphérique. La réflexion dans un plan contenant l'axe qui passe par le centre de ces deux sphères laisse donc la fonction d'onde orbitale totale inchangée et tous les états moléculaires correspondant à $S + S$ sont des états Σ^+ .

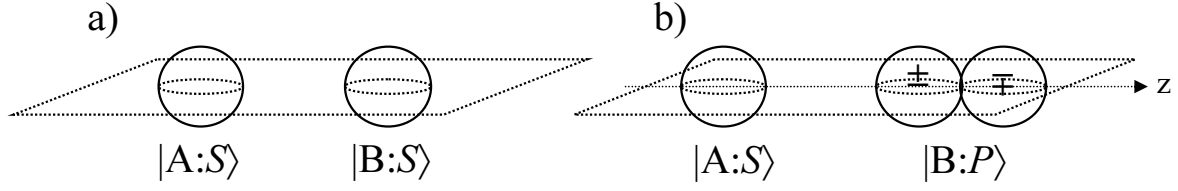


FIG. C.1 – Illustration graphique de la propriété de symétrie $\pm$, vis-à-vis d'un plan contenant l'axe interatomique. a) La réflexion de deux orbitales atomiques S , représentées par deux sphères, dans un plan contenant l'axe moléculaire, laisse la fonction d'onde orbitale de la paire inchangée. b) si l'une des deux orbitales atomiques est une orbitale P dans l'état $m = 0$, avec l'axe moléculaire comme axe de quantification, la conclusion est la même.

Enfin, nous pouvons montrer que, dans le cas d'une paire $2^3S + 2^3S$ la statistique de Bose-Einstein et les propriétés de symétrie de la fonction d'onde de spin imposent les propriétés de symétrie g/u . En effet l'atome ^4He avec ses deux électrons est un boson (de spin 1), de même que le noyau de ^4He (de spin nul). Si l'on considère une paire d'atomes de ^4He identiques, l'échange des deux atomes (noyaux plus électrons), ainsi que l'échange des seuls noyaux, doivent laisser la fonction d'onde totale de la paire invariante. En particulier, ces deux opérations réalisées successivement constituent l'échange des deux nuages électroniques entre les deux atomes.

Dans l'espace des coordonnées orbitales, l'échange des nuages électroniques d'un atome à l'autre peut être décrit comme le produit des deux opérations suivantes: a) inversion des électrons par rapport à leur propre noyaux, et b) inversion de tous les électrons par rapport au centre de masse des noyaux (c'est-à-dire symétrie u/g). La première opération multiplie la fonction d'onde orbitale par $+1$ puisque que les orbitales atomiques 2^3S sont paires (propriété de l'harmonique sphérique Y_l^m avec $l = m = 0$), et la seconde opération consiste en une multiplication par ω , avec $\omega = +1$ pour un état *gerade* et $\omega = -1$ pour un état *ungerade*.

Dans l'espace des coordonnées de spins, l'échange des deux nuages électroniques constitue l'échange de deux spins 1, soit la multiplication de la fonction d'onde de spin total par $(-1)^S$.

Ainsi, l'échange des nuages électroniques (avec leurs spins) devant laisser la fonction d'onde invariante, nous obtenons la relation $\omega \times (-1)^S = +1$, soit $\omega = (-1)^S$. En définitive, les 9 états électroniques résultant de la combinaison de deux orbitales atomiques 2^3S_1 sont donc:

$$^1\Sigma_g^+ (\times 1), ^3\Sigma_u^+ (\times 3), \text{ et } ^5\Sigma_g^+ (\times 5).$$

Les trois valeurs propres correspondantes à ces trois sous-espaces sont représentées sur la figure 4.1 du chapitre 4.

C.1.2 Le cas $2^3S + 2^3P$

Construisons maintenant les états électroniques asymptotiquement liés à $2^3S + 2^3P_J$. Ces états sont les états produits de deux spins 1 et d'un moment cinétique orbital 1 également. L'état de spin est donc identique au cas $2^3S + 2^3S$. Le moment cinétique orbital total vaut 1 et sa projection sur l'axe moléculaire ($0, \pm 1$) conduit donc à des états Σ ou Π . La symétrie

de réflexion permet de caractériser les états Σ . La figure C.1-b illustre schématiquement cette opération de symétrie. Les états Σ sont ceux pour lesquels l'orbitale atomique P est elle-même inchangée dans l'opération considérée. Le signe de la fonction d'onde orbitale totale est inchangé par cette réflexion et tous les états Σ considérés ici sont donc des états Σ^+ .

L'inversion i (symétrie centrale dans le centre de masse des noyaux) peut être décomposée en une symétrie centrale des électrons par rapport à leur propre noyau, suivi de l'échange de l'ensemble des électrons de l'atome A avec ceux de l'atome B. Notons $\hat{I}_e$ l'opérateur qui réalise l'inversion i , et appliquons cet opérateur à l'état $|A : 0,0,1,M_{S1}; B : 1,M_L,1,M_{S2}\rangle$ (l'ordre d'apparition des nombres quantiques est celui défini par la formule 6.9 du chapitre 6). La symétrie centrale des électrons par rapport à leur noyau respectif revient à une multiplication par $(-1)^0$ pour l'orbitale atomique 2^3S et par $(-1)^1$ pour l'orbitale atomique 2^3P . On obtient donc:

$$\hat{I}_e |A : 0,0,1,M_{S1}; B : 1,M_L,1,M_{S2}\rangle = -|A : 1,M_L,1,M_{S2}; B : 0,0,1,M_{S1}\rangle$$

De plus, dans l'espace des spins, l'échange des nuages électroniques revient à échanger S1 et S2 c'est-à-dire à multiplier la fonction d'onde de spin par $(-1)^S$. On peut donc aussi écrire, en notant $\vec{S} = \vec{S}_1 + \vec{S}_2$ le spin total:

$$\begin{aligned} \hat{I}_e |A : 0,0,1,M_{S1}; B : 1,M_L,1,M_{S2}\rangle &= \hat{I}_e |A : 0,0; B : 1,M_L\rangle |S,M_S\rangle \\ &= -(-1)^S |A : 1,M_L; B : 0,0\rangle |S,M_S\rangle \end{aligned}$$

On construit alors, à l'aide de l'opérateur $\hat{I}_e$ la base d'états symétrique *gerade* et antisymétrique *ungerade* suivants:

$$\frac{1}{\sqrt{2}} (1 + \omega \hat{I}_e) |A : 0,0; B : 1,M_L\rangle |S,M_S\rangle$$

où $\omega = 1$ définit les états *gerade* (g) et $\omega = -1$ *ungerade* (u).

On montre au paragraphe C.2 que l'interaction dipôle-dipôle prend une forme diagonale dans cette base. Si l'on néglige l'hamiltonien de structure fine, c'est-à-dire si l'on se place dans le cas (a) de Hund, l'hamiltonien total est diagonal dans cette base qui constitue la base des états propres de la molécule dans le cas (a) de Hund:

$$\begin{aligned} |^{2S+1}\Lambda_{u/g}\rangle &= \frac{1}{\sqrt{2}} (1 + \omega \hat{I}_e) |A : 0,0; B : 1,M_L\rangle |S,M_S\rangle \\ &= (|A : 0,0; B : 1,M_L\rangle - \omega(-1)^S |A : 1,M_L; B : 0,0\rangle) \otimes |S,M_S\rangle \quad (\text{C.1}) \end{aligned}$$

avec $\Lambda \equiv \Sigma^+$ pour $M_L = 0$ et $\Lambda \equiv \Pi$ pour $|M_L| = 1$.

À partir d'une paire d'orbitales atomiques $2^3S + 2^3P$, on construit donc 9 états Σ_u et 9 états Σ_g , qui sont tous de parité $+$, 9 états Π_u et 9 états Π_g tous dégénérés deux fois (les projections ± 1 du moment cinétique orbital sont de même énergie; à partir de ces 2 projections, on peut construire deux états de parité définie $+$ et $-$, mais toujours de même énergie). On a alors un total de 54 états.

C.2 Calcul explicite de l'interaction dipôle-dipôle résonante

C.2.1 L'interaction dipôle-dipôle retardée

Nous présentons un raisonnement simple d'électromagnétique classique qui permet de retrouver l'influence des effets de retard sur l'interaction entre deux dipôle électriques. La transformée de Fourier temporelle $\vec{A}$ du potentiel vecteur associé au rayonnement du dipôle électrique $\vec{d}_2$ s'écrit, en tout point $\vec{R}$ de l'espace, (voir par exemple [142] p.394-395):

$$\vec{A}(\vec{R}) = -\frac{i}{4\pi\epsilon_0 c} k \vec{d}_2 \frac{e^{ikR}}{R}.$$

L'application des lois de l'électromagnétisme classique $\vec{B} = \nabla \times \vec{A}$ et $\vec{E} = i(c/k)\nabla \times \vec{B}$, conduit alors à l'expression suivante pour $\vec{E}$:

$$\vec{E}(\vec{R}) = \frac{e^{ikR}}{4\pi\epsilon_0 R^3} \left\{ k^2 R^2 (\vec{u} \times \vec{d}_2) \times \vec{u} + (1 - ikR) \left(3 (\vec{u} \cdot \vec{d}_2) \vec{u} - \vec{d}_2 \right) \right\} \quad (\text{C.2})$$

avec $\vec{u} = \vec{R}/||\vec{R}||$. La solution générale pour le champ électrique rayonné par le dipôle $\vec{d}_2$ peut s'écrire, de manière équivalente, soit comme une superposition d'ondes progressives du type $\vec{\mathcal{E}}(\vec{R}, t) = \vec{E}(\vec{R})e^{-i\omega t} + c.c.$, soit comme une superposition d'ondes stationnaires du type $\vec{\mathcal{E}}(\vec{R}, t) = (\vec{E}(\vec{R}) + c.c.)\cos(\omega t)$. Cette seconde option conduit à l'expression suivante:

$$\vec{\mathcal{E}}(\vec{R}, t) = \frac{1}{4\pi\epsilon_0 R^3} \left\{ k^2 R^2 \cos(kR) (\vec{u} \times \vec{d}_2(t)) \times \vec{u} + [\cos(kR) + kR \sin(kR)] \left[3 (\vec{u} \cdot \vec{d}_2(t)) \vec{u} - \vec{d}_2(t) \right] \right\}$$

et l'interaction des deux dipôles $\vec{d}_1$ et $\vec{d}_2$ s'écrit donc $U(R, t) = -\vec{d}_1(t) \cdot \vec{\mathcal{E}}(\vec{R}, t)$:

$$U(R, t) = \frac{1}{4\pi\epsilon_0 R^3} \{ f(R) (d_{1x}(t)d_{2x}(t) + d_{1y}(t)d_{2y}(t)) - 2g(R) d_{1z}(t)d_{2z}(t) \}, \quad (\text{C.3})$$

où l'axe z est l'axe inter-atomique, et avec

$$\begin{cases} f(R) = (1 - k^2 R^2) \cos(kR) + kR \sin(kR) \\ g(R) = \cos(kR) + kR \sin(kR) \end{cases} \quad (\text{C.4})$$

Un traitement purement quantique incluant la quantification du champ électromagnétique conduit à la même formule que C.3 où $\vec{d}_1(t)$ et $\vec{d}_2(t)$ sont remplacés par les opérateurs dipôles électriques $\hat{D}_1$ et $\hat{D}_2$ [119, 120] (1964):

$$\hat{U}(R) = \frac{1}{4\pi\epsilon_0 R^3} \{ f(R) (\hat{D}_{1x}\hat{D}_{2x} + \hat{D}_{1y}\hat{D}_{2y}) - 2g(R) \hat{D}_{1z}\hat{D}_{2z} \} \quad (\text{C.5})$$

En particulier, Stephen [120] montre que la quantité complexe $-\vec{d}_1 \cdot \vec{E}(\vec{R})$, où $\vec{E}(\vec{R})$ est défini par C.2 intervient naturellement. Sa partie réelle, correspondant à C.5, donne le décalage d'énergie par rapport au système constitué de deux atomes sans interaction, et sa partie imaginaire donne l'élargissement du spectre d'émission d'un atome influencé par le second.

C.2.2 Éléments de matrice de $\hat{U}(R)$

On peut réécrire l'opérateur $\hat{U}(R)$ à l'aide des trois composantes "standard" de l'opérateur moment dipolaire électrique $\hat{Q}_m$, $m = 0, \pm 1$, reliées aux composantes de l'opérateur $\hat{D}$ par (voir par exemple [92], complément E_X):

$$\begin{aligned}\hat{D}_x &= \frac{1}{\sqrt{2}}(\hat{Q}_{-1} - \hat{Q}_1) \\ \hat{D}_y &= \frac{i}{\sqrt{2}}(\hat{Q}_{-1} + \hat{Q}_1) \\ \hat{D}_z &= \hat{Q}_0\end{aligned}$$

l'opérateur $\hat{U}(R)$ n'opère pas sur les variables de spin $S, M_S, S', M_{S'}$, on peut donc momentanément ne considérer que la restriction de $\hat{U}(R)$ au sous-espace des seules variables d'espace. Notons $|A : L, M; B : L', M'\rangle = |L, M\rangle \otimes |L', M'\rangle$ les états représentant deux atomes A et B indépendants. Dans cette base, les seuls éléments de matrice non nuls de $\hat{U}(R)$ sont ceux qui couplent une paire d'atomes $A : 2^3S - B : 2^3P$ à la paire $A : 2^3P - B : 2^3S$ pour laquelle l'excitation électronique a été transférée d'un atome à l'autre [127]:

$$\begin{aligned}4\pi\epsilon_0 R^3 \langle 1, M; 0, 0 | \hat{U}(R) | 0, 0; 1, M' \rangle &= \frac{1}{2} f(R) \langle 1, M | (\hat{Q}_{-1} - \hat{Q}_1) | 0, 0 \rangle \langle 0, 0 | (\hat{Q}_{-1} - \hat{Q}_1) | 1, M' \rangle \\ &- \frac{1}{2} f(R) \langle 1, M | (\hat{Q}_{-1} + \hat{Q}_1) | 0, 0 \rangle \langle 0, 0 | (\hat{Q}_{-1} + \hat{Q}_1) | 1, M' \rangle \\ &- 2g(R) \langle 1, M | \hat{Q}_0 | 0, 0 \rangle \langle 0, 0 | \hat{Q}_0 | 1, M' \rangle\end{aligned}$$

où $f(R)$ et $g(R)$ sont données par C.4.

Le théorème de Wigner-Eckart permet alors d'écrire les éléments de matrice de $\hat{Q}_m$ à l'aide des coefficients de Clebsch-Gordan $\langle j_1, j_2; m_1, m_2 | J, M \rangle$, et de déduire (voir par exemple, [92], exercice 8 du complément G_X):

$$\begin{aligned}\langle 1, M | \hat{Q}_m | 0, 0 \rangle &= C(L = 1, L' = 0) \langle 0, 1; 0, m | 1, M \rangle \\ &= C(L = 1, L' = 0) \times \delta_{m, M} \\ \langle 0, 0 | \hat{Q}_m | 1, M \rangle &= C(L = 0, L' = 1) \langle 1, 1; M, m | 0, 0 \rangle \\ &= C(L = 0, L' = 1) \times \frac{1}{\sqrt{3}} (-\delta_{m, 0} \delta_{M, 0} + \delta_{m, -1} \delta_{M, 1} + \delta_{m, 1} \delta_{M, -1})\end{aligned}$$

où $\delta_{m, M}$ est le symbole de Kroneker, et $C(L, L')$ est un coefficient de proportionnalité qui peut s'exprimer en fonction de l'élément de matrice du moment dipolaire électrique atomique $d = \langle 2^3P | \hat{D}_z | 2^3S \rangle$, en écrivant que:

$$\begin{aligned}\langle 1, 0 | \hat{Q}_0 | 0, 0 \rangle &= C(1, 0) \\ \langle 0, 0 | \hat{Q}_0 | 1, 0 \rangle &= C(0, 1) \times (-1/\sqrt{3})\end{aligned}$$

et en remarquant que $\hat{Q}_0 = \hat{D}_z$ est hermitique:

$$C(1, 0) = C(0, 1)^* \times (-1/\sqrt{3}) = d$$

Finalement, on obtient les éléments de matrice de l'interaction dipôle-dipôle résonante:

$$\begin{aligned}\langle 1, M; 0, 0 | \hat{U}(R) | 0, 0; 1, M' \rangle &= \langle 0, 0; 1, M' | \hat{U}(R) | 1, M; 0, 0 \rangle \\ &= \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \frac{|d|^2}{R^3} \delta_{M, M'} \{ f(R) (\delta_{M, 1} + \delta_{M, -1}) - 2g(R) \delta_{M, 0} \}\end{aligned}$$

On définit alors la constante usuelle C_3 comme: $C_3 = \frac{|d|^2}{4\pi\epsilon_0}$.

C.2.3 États propres de $\hat{U}(R)$

Nous pouvons vérifier que l'opérateur $\hat{U}(R)$ est diagonal dans la base $\{|^{2S+1}\Lambda_{u/g}\rangle\}$ des états propres du cas (a) de Hund. Pour cela, posons

$$\eta(M, R) = f(R) (\delta_{M, 1} + \delta_{M, -1}) - 2g(R) \delta_{M, 0},$$

et appliquons $\hat{U}(R)$ au ket $|^{2S+1}\Lambda_{u/g}\rangle$ tel qu'il est défini par l'expression C.1:

$$\begin{aligned}\hat{U}(R) |^{2S+1}\Lambda_{u/g}\rangle &= \hat{U}(R) (|00; 1M_L\rangle - \omega(-1)^S |1M_L; 00\rangle) |S, M_S\rangle \\ &= \frac{C_3}{R^3} \eta(M_L, R) (|1M_L; 00\rangle - \omega(-1)^S |00; 1M_L\rangle) |S, M_S\rangle \\ &= -\omega(-1)^S \frac{C_3}{R^3} \eta(M_L, R) (-\omega(-1)^S |1M_L; 00\rangle + |00; 1M_L\rangle) |S, M_S\rangle \\ &= -\omega(-1)^S \frac{C_3}{R^3} \eta(M_L, R) |^{2S+1}\Lambda_{u/g}\rangle\end{aligned}$$

Les états moléculaires caractérisés par $M_L = 0$ sont les états Σ et les états caractérisés par $M_L = \pm 1$ correspondent aux états Π . Finalement, $\hat{U}(R)$ possède quatre valeurs propres associées à quatre sous-espaces propres qui sont:

$$\begin{aligned}&+2g(R) \frac{C_3}{R^3} \text{ pour les états symétriques } ^1\Sigma_g^+, ^3\Sigma_u^+ \text{ et } ^5\Sigma_g^+ \\ &-2g(R) \frac{C_3}{R^3} \text{ pour les états antisymétriques } ^1\Sigma_u^+, ^3\Sigma_g^+ \text{ et } ^5\Sigma_u^+ \\ &-f(R) \frac{C_3}{R^3} \text{ pour les états symétriques } ^1\Pi_g, ^3\Pi_u \text{ et } ^5\Pi_g \\ &+f(R) \frac{C_3}{R^3} \text{ pour les états antisymétriques } ^1\Pi_u, ^3\Pi_g \text{ et } ^5\Pi_u\end{aligned}$$

Les termes “symétrique” et “antisymétrique” désignent les états pour lesquels $\omega(-1)^S = \pm 1$ respectivement, selon les notations initialement introduites par Dashevskaya *et al.* [127] en 1969. Selon qu'ils sont symétriques ou antisymétriques, les états propres de $\hat{U}(R)$ peuvent être interprétés comme deux dipôles disposés de manière symétrique ou antisymétrique par rapport à leur centre de masse (voir le tableau 6.2 du chapitre 6). Cette image permet une compréhension intuitive des valeurs propres de $\hat{U}(R)$.

Bibliographie

- [1] A. Einstein, *Quantentheorie des einatomigen idealen Gases*, Kgl. Preuss. Akad. Wiss., **261** (1924), A. Einstein, *Quantentheorie des einatomigen idealen Gases. Zweite Abhandlung*, Sitzungsberg. Kgl. Preuss. Akad. Wiss., **3** (1925).
- [2] S. N. Bose, *Plancks Gesetz und Lichtquantenhypothese*, Z. Phys. **26**, p. 178 (1924).
- [3] M. H. Anderson, J. R. Ensher, M. R. Matthews, C. E. Wieman, E. A. Cornell, Science **269**, p. 198 (1995); K. B. Davis, M.-O. Mewes, M. R. Andrews, N. J. van Druten, D. S. Durfee, D. M. Kurn, W. Ketterle, Phys. Rev. Lett. **75**, p. 3969 (1995); C. C. Bradley, C. A. Sackett, J. J. Tollett, R. G. Hulet, Phys. Rev. Lett **75**, 1687 (1995).
- [4] M. R. Andrews, C. G. Townsend, H.-J. Miesner, D. S. Durfee, D. M. Kurn, W. Ketterle, Science **275**, p. 637 (1997).
- [5] S. Dettmer, D. Hellweg, P. Ryytty, J. J. Arlt, W. Ertmer, K. Sengstock, D. S. Petrov, G. V. Shlyapnikov, H. Kreutzmann, L. Santos, M. Lewenstein, Phys. Rev. Lett. **87**, 160406 (2001).
- [6] S. Richard, F. Gerbier, J. H. Thywissen, M. Hugbart, P. Bouyer, and A. Aspect, Phys. Rev. Lett. **91**, 010405 (2003)
- [7] K.W. Madison, F. Chevy, W. Wohlleben, and J. Dalibard, Phys. Rev. Lett. **84**, p. 806 (2000).
- [8] C. Cohen-Tannoudji, *Cours de physique atomique et moléculaire: condensats de Bose-Einstein en rotation*, Le Collège de France, 2001.
- [9] F. Dafolvo, S. Giorgini, L. P. Pitaevskii, and S. Stringari, *Theory of trapped Bose-condensed gases*, Rev. Mod. Phys. **71**, 463 (1999).
- [10] Elizabeth A. Donley, Neil R. Claussen, Sarah T. Thompson and Carl E. Wieman, Nature **417**, p.529 (2002).
- [11] J. Cubizolles, T. Bourdel, S. J. J. M. F. Kokkelmans, G. V. Shlyapnikov, C. Salomon, cond-mat/0308018; K. E. Strecker, G. B. Partridge, and R. G. Hulet, Phys. Rev. Lett. **91**, 080406 (2003); S. Jochim, M. Bartenstein, A. Altmeyer, G. Hendl, C. Chin, J. Hecker Denschlag, and R. Grimm, cond-mat/0308095; C. A. Regal, M. Greiner, D. S. Jin, cond-mat/0308606.
- [12] O. Mandel, M. Greiner, A. Widera, T. Rom, T. W. Hänsch, and I. Bloch, <http://arxiv.org/abs/quant-ph/0308080>
- [13] Matthew P. A. Fisher, Peter B. Weichman, G. Grinstein, Daniel S. Fisher, Phys. Rev. B **40**, p. 546 (1989).
- [14] M. Greiner, O. Mandel, T. Esslinger, T.W. Hänsch and I. Bloch, Nature **415**, p.39 (2002).
- [15] N. Regnault and Th. Jolicoeur, Phys. Rev. Lett. **91**, 030402 (2003), et ses références.
- [16] J. Bardeen, L. N. Cooper, and J. R. Schrieffer, Phys. Rev. **108**, p.1175 (1957).
- [17] A. J. Leggett, J. Phys. (Paris) C **7**, p. 19 (1980).
- [18] F. Shimizu, K. Shimizu, H. Takuma, Phys. Rev. A **46**, p. R17 (1992).
- [19] M. Yasuda, F. Shimizu, Phys. Rev. Lett. **77**, p. 3090 (1996).
- [20] Martin Zinner, Peter Spoden, Tobias Kraemer, Gerhard Birkel, and Wolfgang Ertmer, Phys. Rev. A **67**, 010501 (2003).
- [21] V.P. Mogendorff, E.J.D. Vredenbregt, B.J. Verhaar, H.C.W. Beijerinck, preprint arxiv.org/abs/physics/0309053.

- [22] A. Niehaus, *Adv. Chem. Phys.* **45**, p. 399 (1981).
- [23] G. V. Shlyapnikov, J. T. M. Walraven, U. M. Rahmanov, M. W. Reynolds, *Phys. Rev. Lett.* **73**, p. 3247, (1994).
- [24] A. Robert, O. Sirjean, A. Browaeys, J. Poupard, S. Nowak, D. Boiron, C. I. Westbrook, A. Aspect, *Science Mag.* **292**, p. 461 (2001).
- [25] F. Pereira Dos Santos, J. Lónard, Junmin Wang, C. J. Barrelet, F. Perales, E. Rasel, C. S. Unnikrishnan, M. Leduc, and C. Cohen-Tannoudji, *Phys. Rev. Lett.* **86**, p. 3459 (2001).
- [26] A. Browaeys, *Piégeage magnétique d'un gaz d'hélium métastable: vers la condensation de Bose-Einstein*, thèse de doctorat, université de Paris XI (2000).
- [27] A. Robert, *Réalisation d'un condensat de Bose-Einstein d'atomes d'hélium métastable*, thèse de doctorat, université de Paris XI (2001).
- [28] F. Pereira Dos Santos, *Condensation de Bose-Einstein de l'hélium métastable*, thèse de doctorat, Université Paris VI (2002).
- [29] P. D. Lett, P. S. Julienne, W. C. Phillips, *Photoassociative spectroscopy of laser-cooled atoms*, *Rev. Phys. Chem.* **46**, p. 423 (1995).
- [30] J. Weiner, V.S. Bagnato, S. Zilio, P.S. Julienne, *Experiments and theory in cold and ultracold collisions*, *Rev. Mod. Phys.* **71**, p. 1 (1999).
- [31] W.C. Stwalley, He Wang, *Photoassociation in ultracold atoms: a new spectroscopic technique*, *J. Mol. Spec.* **195**, p. 194 (1999).
- [32] F. Masnou-Seeuws, P. Pillet, *Formation of ultracold molecules ($T \leq 200 \mu K$) via photoassociation in a gas of laser-cooled atoms*, *Advances in Atomic, Molecular, and Optical Physics* **47**, p. 53 (2001).
- [33] G. Woestenenk, *Photoassociation of Cold Metastable Helium Atoms*, PhD Thesis, Universiteit Utrecht (2001).
- [34] H. W. Moos and J. R. Woodworth, *Phys. Rev. A* **12**, p. 2455 (1975).
- [35] G. W. F. Drake, *Phys. Rev. A* **3**, p. 908 (1971).
- [36] G. Lach and K. Pachuki, *Phys. Rev. A* **64**, 042510 (2001).
- [37] Se référer par exemple à B. Saubaméa, *Refroidissement laser subrecul au nanokelvin*, thèse de doctorat, Université Paris VI (1998).
- [38] M.C. George, L.D. Lombardi, E.A. Hessels, *Phys. Rev. Lett.* **87**, 173002 (2001), et ses références; J. Castilleja, D. Livingston, A. Sanders, D. Shiner, *Phys. Rev. Lett.* **84**, p. 4321 (2000), et ses références.
- [39] voir, par exemple K. Pachucki, J. Sapirstein, *J. Phys. B* **35**, p.1783 (2002), et ses références.
- [40] G. W. F. Drake, *Atomic, Molecular and Optical Physics Handbook*, édité par G. W. F. Drake, AIP Press, Chapitre 11 (1996).
- [41] J.C.J. Koelemeij, R. J. W. Stas, W. Hogervorst, W. Vassen, *Phys. Rev. A* **67**, 053406 (2003).
- [42] M. Kumakura, N. Morita, *Jpn. J. Appl. Phys.* **31**, L 276 (1992).
- [43] H. C. Mastwijk, J. W. Thomsen, P. van der Straten, A. Niehaus, *Phys. Rev. Lett.* **80**, p. 5516 (1998).
- [44] P. J. Leo, V. Venturi, I. B. Whittingham, J. F. Babb, *Phys. Rev. A* **64**, p. 042710 (2001), et ses références.

- [45] P. O. Fedichev, M. W. Reynolds, U. M. Rahmanov, and G. V. Shlyapnikov, Phys. Rev. A **53**, p. 1447 (1996).
- [46] V. Venturi, I. B. Whittingham, P. J. Leo, G. Peach, Phys. Rev. A **60**, p. 4635 (1999).
- [47] Y. Kagan, B. V. Studinov, G. V. Shlyapnikov, JETP Lett. **42**, p. 209 (1985).
- [48] E. A. Burt, R. W. Ghrist, C. J. Myatt, M. J. Holland, E. A. Cornell, C. E. Wieman, Phys. Rev. Lett **79**, p. 337 (1997).
- [49] J. M. Gerton, D. Strekalov, I. Prodan, R. G. Hulet, Nature **408**, p. 692 (2000).
- [50] O. Sirjean, S. Seidelin, J. Viana Gomes, D. Boiron, C. I. Westbrook, A. Aspect, G.V. Shlyapnikov, Phys. Rev. Lett. **89**, p. 220406 (2002).
- [51] S. Seidelin, O. Sirjean, J. Viana Gomes, D. Boiron, C. I. Westbrook A. Aspect, J. Opt. B **5**, p. 112 (2003).
- [52] J. Söding, D. Guéry-Odelin, P. Desbiolles, F. Chevy, H. Inamori, J. Dalibard, Appl. Phys. B **69**, p.257 (1999).
- [53] O. Sirjean, *Collisions ionisantes: un nouveau diagnostic pour les condensats de Bose-Einstein d'hélium métastable*, thèse de doctorat, université Paris XI, 2003.
- [54] J. Stärck, W. Meyer, Chem. Phys. Lett. **255**, p.229 (1994).
- [55] E. Rasel, F. Pereira Dos Santos, F. Saverio Pavone, F. Perales, C.S. Unnikrishnan, and M. Leduc, Eur. Phys. J. D **7**, p. 311 (1999).
- [56] F. Pereira Dos Santos, F. Perales, J. Léonard, A. Sinatra, Junmin Wang, F. S. Pavone, E. Rasel, C.S. Unnikrishnan, M. Leduc, Eur. Phys. J. AP **14**, p. 69 (2001).
- [57] F. Pereira Dos Santos, F. Perales, J. Léonard, A. Sinatra, Junmin Wang, F. Saverio Pavone, E. Rasel, C.S. Unnikrishnan, and M. Leduc, Eur. Phys. J. D **14**, 15 (2001).
- [58] D.W. Fahey, W.F. Parks, and L.D. Scheerer, J. Phys. E: Sci. Instrum., **13**, p. 381 (1980).
- [59] J. Kawanaka, M. Hagiuda, K. Shimizu, F. Shimizu and H. Takuma, Appl. Phys. B, **56**, p. 21 (1993).
- [60] W. Rooijakkers, W. Hogervorst and W. Vassen, Opt. Comm., **123**, p. 321 (1996).
- [61] J. S. Major Jr., D. F. Welch, Electronics Lett. **29**, p. 2121 (1993).
- [62] P. Cancio, P. Zeppini, P. De Natale, S. Taccheo, P. Laporta, Appl. Phys. B **70**, p.763 (2000).
- [63] W.D. Phillips, H. Metcalf, Phys. Rev. Lett. **48**, p. 596 (1982).
- [64] E.L. Raab, M. Prentiss, A. Cable, S. Chu, D.E. Pritchard, Phys. Rev. Lett. **59**, p. 2631 (1987).
- [65] F. Bardou, O. Emile, J.M. Courty, C.I. Westbrook and A. Aspect, Europhys. Lett. **20**, p.681 (1992).
- [66] M. Kumakura and N. Morita, Phys. Rev. Lett. **82**, p. 2848 (1999).
- [67] P.J.J. Tol, N. Herschbach, E.A. Hessels, W. Hogervorst, W. Vassen, Phys. Rev. A **60**, R761 (1999).
- [68] V. Venturi and I. B. Whittingham, Phys. Rev. A **61**, 060703 (2000).
- [69] A. Browaeys, J. Poupard, A. Robert, S. Nowak, W. Rooijakkers, E. Arimondo, L. Marcassa, D. Boiron, C.I. Westbrook and A. Aspect, Eur. Phys. J. D **8**, p. 199 (2000).
- [70] D. E. Pritchard Phys. Rev. Lett. **51**, p. 1336 (1983).

- [71] W. Petrich, M. H. Anderson, J. R. Ensher, and E. A. Cornell Phys. Rev. Lett. **74**, p. 3352 (1995).
- [72] M. D. Barrett, J. A. Sauer, and M. S. Chapman Phys. Rev. Lett. **87**, 010404 (2001).
- [73] T. Weber, J. Herbig, M. Mark, H.-C. Nägerl, and R. Grimm Science **299**, p. 232 (2003).
- [74] T. Esslinger, I. Bloch, and T. W. Hänsch Phys. Rev. A **58**, R2664 (1998).
- [75] C. Cohen-Tannoudji, *Cours de physique atomique et moléculaire: piégeage non dissipatif d'atomes neutres et refroidissement évaporatif*, Le Collège de France, 1996.
- [76] D. Guéry-Odelin, *Dynamique collisionnelle des gaz d'alcalins lourds: du refroidissement évaporatif à la condensation de Bose-Einstein*, thèse de doctorat, Université Paris VI (1998).
- [77] W. Petrich, M. H. Anderson, J. R. Ensher, E. A. Cornell, Phys. Rev. Lett. **74**, p.3352 (1995).
- [78] F. Pereira Dos Santos, J. Léonard, Junmin Wang, C.J. Barrelet, F. Perales, E. Rasel, C.S. Unnikrishnan, M. Leduc, and C. Cohen-Tannoudji, Eur. Phys. J. D **19**, p. 103 (2002).
- [79] H. F. Hess, Phys. Rev. B **34**, 3476-3479 (1986).
- [80] A. G. Martin, K. Helmerson, V. S. Bagnato, G. P. Lafyatis, D. E. Pritchard Phys. Rev. Lett. **61**, p.2431 (1988).
- [81] C. Cohen-Tannoudji, *Cours de physique atomique et moléculaire: condensation de Bose-Einstein des gaz atomiques ultra froids; effets des interactions*, Le Collège de France, 1998.
- [82] C. Cohen-Tannoudji, *Cours de physique atomique et moléculaire: condensation de Bose-Einstein; gaz sans interactions*, Le Collège de France, 1997.
- [83] S. Giorgini, L. P. Pitaevskii, S. Stringari, Phys. Rev. A **54**, R4633 (1996).
- [84] Peter Arnold, Boris Tomášik, Phys. Rev. A **64**, 053609 (2001).
- [85] I. Shvarchuck, Ch. Buggle, D. S. Petrov, K. Dieckmann, M. Zielonkowski, M. Kemmann, T. G. Tiecke, W. von Klitzing, G. V. Shlyapnikov, and J. T. M. Walraven, Phys. Rev. Lett. **89**, 270404 (2002)
- [86] Kai Dieckmann, *Bose-Einstein Condensation with high atom number in a deep magnetic trap*, thèse de doctorat, Amsterdam (2001).
- [87] H. C. W. Beijerinck, E. J. D. Vredenburg, R. J. W. Stas, M. R. Doery, J. G. C. Tempelaar, Phys. Rev. A **61**, 023607 (2000).
- [88] J. Schuster, A. Marte, S. Amtage, B. Sang, G. Rempe, and H. C. W. Beijerinck, Phys. Rev. Lett. **87**, 170404 (2001).
- [89] D. Guéry-Odelin, F. Zambelli, J. Dalibard, S. Stringari, Phys. Rev. A **60**, p.4851 (1999).
- [90] M. W. Müller, A. Merz, M.-W. Ruf, H. Hotop, W. Meyer, M. Movre, Z. Phys. D **21**, p. 89 (1991).
- [91] F. X. Gadéa, T. Leininger, and A. S. Dickinson, J. Chem. Phys. **117**, p. 7122 (2002).
- [92] C. Cohen-Tannoudji, B. Diu, F. Laloë, *Mécanique quantique*, Hermann (1973).
- [93] J. Dalibard, *Collisional dynamics of ultra-cold atomic gases*, Proceedings of the International School of Physics "Enrico Fermi" Course CKL, M. Igusio, S. Stringari and C. Wieman (Eds), IOS Press, Amsterdam 1999.
- [94] K. Huang, "Statistical mechanics", Wiley & Sons, 1963.
- [95] L. Landau, E. Lifchitz, *Mécanique Quantique*, Mir (1975).

- [96] Y. Castin and R. Dum, Phys. Rev. Lett. **77**, p. 5315 (1996).
- [97] G. Pichler, S. Milosevic, D. Veza, R. Beuc, J. Phys. B **16**, p. 4619 (1983).
- [98] H.R. Thorsheim, J. Weiner, P. S. Julienne, Phys.Rev. Lett. **58**, p.2420 (1987).
- [99] P. D. Lett, K. Helmerson, W. D. Phillips, L. P. Ratcliff, S. L. Rolston, M. E. Wagshul, Phys. Rev. Lett. **71**, p. 2200 (1993).
- [100] J. D. Miller, R. A. Cline, D. J. Heinzen, Phys. Rev. Lett. **71**, p. 2204 (1993).
- [101] A. Gallagher, D. E. Pritchard, Phys. Rev. Lett. **63**, p. 957 (1989).
- [102] A. Fioretti, D. Comparat, A. Crubellier, O. Dulieu, F. Masnou-Seeuws, P. Pillet, Phys. Rev. Lett. **80**, p. 4402 (1998).
- [103] N. Herschbach, P. J. J. Tol, W. Vassen, W. Hogervorst, G. Woestenenk, J. W. Thomsen, P. van der Straten, and A. Niehaus, Phys. Rev. Lett. **84**, p. 1874 (2000).
- [104] G. Herzberg, *Spectra of Diatomic Molecules*, 2^{nde} édition (1950), D. Van Nostrand Company INC.
- [105] C. J. Williams, E. Tiesinga, P. S. Julienne, H. Wang, W. C. Stwalley, P. L. Gould, Phys. Rev. A **60**, p. 4427 (1999).
- [106] C. Drag, B. Laburthe Tolra, B. T'Jampens, D. Comparat, M. Allegrini, A. Crubellier, and P. Pillet, Phys. Rev. Lett. **85**, p. 1408 (2000).
- [107] Bruno Laburthe Tolra, Cyril Drag, and Pierre Pillet, Phys. Rev. A **64**, 061401 (2001).
- [108] Roahn Wynar, R. S. Freeland, D. J. Han, C. Ryu, D. J. Heinzen, Science **287**, p. 1016 (2000).
- [109] E. R. I. Abraham, W. I. McAlexander, C. A. Sackett, R. G. Hulet, Phys. Rev. Lett. **74**, p. 1315 (1995).
- [110] M. Walhout, U. Sterr, C. Orzel, M. Hoogerland, and S. L. Rolston, Phys. Rev. Lett. **74**, 506-509 (1995); K.-A. Suominen, K. Burnett, P. S. Julienne, M. Walhout, U. Sterr, C. Orzel, M. Hoogerland, and S. L. Rolston, Phys. Rev. A **53**, 1678-1689 (1996).
- [111] A. J. Moerdijk, W. C. Stwalley, R. G. Hulet, and B. J. Verhaar, Phys. Rev. Lett. **72**, p. 40 (1994).
- [112] R. LeRoy and R. B. Bernstein, J. Chem. Phys. **52**, p.3869 (1970).
- [113] P. Pillet, A. Crubellier, A. Bleton, O. Dulieu, P. Nosbaum, I. Mourachko, F. Masnou-Seeuws, J. Phys. B **30**, p.2801 (1997).
- [114] W. C. Stwalley, Y.-H. Uang, G. Pichler, Phys. Rev. Lett. **41**, p.1164 (1978).
- [115] H. B. G. Casimir, D. Polder, Phys. Rev. **73**, p. 360 (1948).
- [116] A. Landragin, J.-Y. Courtois, G. Labeyrie, N. Vansteenkiste, C. I. Westbrook, A. Aspect, Phys. Rev. Lett. **77**, p. 1464 (1996).
- [117] F. Luo, G. C. McBane, G. Kim, C. F. Giese, W. R. Gentry, J. Chem. Phys. **98**, p. 3564 (1993).
- [118] F. Luo, G. Kim, G. C. McBane, C. F. Giese, W. R. Gentry, J. Chem. Phys. **98**, p. 9687 (1993).
- [119] R. McLone, E. Power, Mathematika **11**, p.91 (1964).
- [120] M. J. Stephen, J. Chem. Phys., **40**, p.669 (1964).
- [121] K. M. Jones, P. S. Julienne, P. D. Lett, W. D. Phillips, E. Tiesinga and C. J. Williams, Europhys. Lett., **35**, p. 85 (1996).

- [122] R. A. Cline, J. D. Miller, D. J. Heinzen, Phys. Rev. Lett. **73**, p.632 (1994); H. Wang, P. L. Gould, W. C. Stwalley, Zeitschrift für Physik D **36**, p. 317 (1996);
- [123] M. Movre and G. Pichler, J. Phys. B, **10**, p. 2631 (1977).
- [124] H. Lefebvre-Brion, R. W. Field, *Perturbations in the spectra of diatomic molecules*, Academic Press (1986).
- [125] K. Willner, O. Dulieu, F. Masnou-Seeuws, à paraître dans J. Chem. Phys.
- [126] M. Leduc, M. Portier, J. Léonard, M. Walhout, F. Masnou-Seeuws, K. Willner, A. Mosk, *Laser Spectroscopy XVI, Proceedings of the XVI International Conference on Laser Spectroscopy*, Palm Cove, Australia (14-18 Juillet, 2003), Eds. P. Hannaford, H.-A. Bachor, K.G. Baldwin and A.I. Sidorov (World Scientific, New Jersey, London, Singapore, Hong Kong).
- [127] E.I. Dashevskaya, A.I. Voronin, E.E. Nikitin, Can. J. Phys. **47**, p. 1237 (1969).
- [128] C. Amiot, O. Dulieu, R. F. Gutterres, and F. Masnou-Seeuws, Phys. Rev. A **66**, 052506 (2002).
- [129] H. A. Bethe, E. E. Salpeter, *Quantum mechanics of one- and two-electron atoms*, Springer-Verlag (1957).
- [130] Jon T. Hougen, *The calculation of rotational energy levels and rotational line intensities in diatomic molecules*, Nat. Bur. of Standards, monograph **115**, (1970).
- [131] J. Léonard, M. Walhout, A. P. Mosk, T. Müller, M. Leduc, and C. Cohen-Tannoudji, Phys. Rev. Lett. **91**, 073203 (2003).
- [132] J. Léonard, A. P. Mosk, M. Walhout, P. van der Straten, M. Leduc, and C. Cohen-Tannoudji, quant-ph/0310006, admis pour publication dans Phys. Rev. A.
- [133] R. Napolitano, J. Weiner, C. J. Williams, P. S. Julienne, Phys. Rev. Lett. **73**, 1352 (1994).
- [134] Communication privée de P. van der Straten.
- [135] R. N. Zare, *Angular Momentum*, Wiley and Sons (1988).
- [136] V. Venturi, P. J. Leo, E. Tiesinga, C. J. Williams, I. B. Whittingham, Phys. Rev. A. **68**, 022706 (2003).
- [137] Roahn H. Wynar, *Ultra-cold molecules in an atomic Bose-Einstein Condensate*, PhD thesis, University of Texas, Austin USA (2000).
- [138] C. Boisseau, E. Audouard, J. Vigué, Europhys. Lett. **41**, p. 349 (1998), et J. Trost, C. Eltschka, H. Friedrich, Europhys. Lett. **43**, p. 230 (1998).
- [139] C. Cohen-Tannoudji, J. Dupont-Roc, G. Grynberg, *Processus d'interaction entre photons et atomes*, Interéditions / CNRS Editions, 2nd édition (1996).
- [140] T. Stace, A. N. Luiten and R. P. Kavocich, Meas. Sci. Technol. **9**, p. 1635 (1998).
- [141] P. Pinkse, A. Mosk, M. Weidemüller, M. W. Reynolds, T. W. Hijmans, and J. T. M. Walraven, Phys. Rev. Lett. **78**, p.990 (1997).
- [142] J.D. Jackson, *Classical Electrodynamics*, second edition (1975), Wiley, New York.

PHOTO-ASSOCIATION DE L'HÉLIUM MÉTASTABLE AU VOISINAGE DE LA CONDENSATION DE BOSE-EINSTEIN ET FORMATION DE DIMÈRES GÉANTS

Résumé :

Au voisinage de la condensation de Bose-Einstein, les propriétés collisionnelles d'un gaz dilué d'hélium métastable ($\text{He } 2^3S$) sont gouvernées par les collisions Penning ionisantes, et par la longueur de diffusion. Afin de sonder ces propriétés, de nouvelles expériences de photo-association (PA) ont été entreprises dans lesquelles une paire d'atomes métastables absorbe un photon pour former une molécule électroniquement excitée. En particulier, des "dimères géants" ont été produits, pour lesquels l'auto-ionisation est inhibée. Des spectres de raies ont été mesurés avec une grande précision par une méthode originale de détection "calorimétrique". Parallèlement, les potentiels électroniques à longue distance d'une paire $2^3S + 2^3P$ ont été calculés. Une approche asymptotique est présentée en détail, qui permet de reproduire avec un très bon accord les énergies de liaison des dimères géants obtenues expérimentalement.

Mots clés : Atomes ultra-froids, hélium métastable, condensation de Bose-Einstein, longueur de diffusion, photo-association, potentiels à purement longue portée, interaction dipôle-dipôle résonante.

PHOTOASSOCIATION IN METASTABLE HELIUM IN THE VICINITY OF THE BOSE-EINSTEIN CONDENSATION AND PRODUCTION OF GIANT DIMERS

Summary :

In the vicinity of Bose-Einstein condensation, the collisional properties of a dilute gas of metastable helium ($\text{He } 2^3S$) are governed by the rate of ionizing Penning collisions and the s-wave scattering length. In order to investigate these properties, we have carried out new photoassociation experiments in which a pair of free atoms absorbs a photon to produce a molecule in an excited electronic state. In particular, we have observed "giant dimers" for which the autoionizing process is inhibited. Accurate spectra have been acquired by the use of an original "calorimetric" detection scheme. In addition, we have calculated long-range electronic potentials for the $2^3S + 2^3P$ system. Our asymptotic approach is described in detail, which reproduces the measured binding energies of the giant dimers with very good accuracy.

Key words : ultra-cold atoms, metastable helium, Bose-Einstein condensation, scattering length, photoassociation, purely long-range potentials, resonant dipole-dipole interaction.