



HAL
open science

**Etudes de systèmes atomiques par spectroscopie laser.
Tests de physique fondamentale et développement d'un
étalon de fréquence optique**

Mark David Plimmer

► **To cite this version:**

Mark David Plimmer. Etudes de systèmes atomiques par spectroscopie laser. Tests de physique fondamentale et développement d'un étalon de fréquence optique. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Université Paris-Nord - Paris XIII, 2003. tel-00005070

HAL Id: tel-00005070

<https://theses.hal.science/tel-00005070>

Submitted on 24 Feb 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.

UNIVERSITE PARIS XIII

**Etudes de systèmes atomiques par spectroscopie laser.
Tests de physique fondamentale et développement d'un étalon
de fréquence optique.**

Dossier de synthèse présenté par

Mark David PLIMMER

pour obtenir

le Diplôme d'Habilitation à Diriger des Recherches

Travaux présentés le 5 décembre 2003 devant le jury composé de

M.	Martial Ducloy	Président
M.	Jean-Pierre Schermann	Rapporteur
Mme	Fernande Vedel	Rapporteur
M.	Marc Himbert	
M.	André Clairon	
M.	Christian Chardonnet	

Le troisième rapporteur (absent) était M. Antoine Weis

Résumé

Ce document décrit une ensemble de travaux effectués entre 1985 et 2003 dans le domaine de la spectroscopie laser des atomes. Il s'agit des mesures d'écart isotopiques (Gd, Xe), de la détermination de la constante de Rydberg, de la mesure du Lamb shift du niveau fondamental de l'hydrogène ainsi que de la violation de la parité dans le Cs. Un survol des candidats atomiques, moléculaires et ioniques susceptibles de fournir une horloge optique est suivi de la description d'un projet concernant l'atome d'argent. Cette expérience, entreprise au BNM-INM, Cnam, Paris, vise la réalisation de la seconde grâce à l'emploi d'une transition à deux photons de 661,3 nm sans effet Doppler excitée dans un échantillon d'atomes refroidis par laser. Les premières expériences réalisées avec un jet atomique thermique et des lasers à colorant sont présentées ainsi que le développement des sources laser solides adéquates.

Abstract

This document describes a set of laser spectroscopy experiments carried out from 1985 to 2003. We describe measurements of isotope shifts (Gd, Xe), determinations of the Rydberg constant and 1S Lamb shift in hydrogen as well as parity violation in Cs. After a review of atomic, molecular and ionic candidates for an optical clock, we describe a project using atomic silver. In this experiment undertaken at the BNM-INM, Cnam, Paris, the aim is to realise the S.I. second *via* a Doppler-free two-photon transition at 661.3 nm excited with a sample of laser-cooled atoms. We present the early results obtained using a thermal atomic beam and dye lasers and describe the development of suitable solid-state lasers.

Mots clés : Spectroscopie laser, écarts isotopiques, atome d'argent, horloges optiques, jets atomiques métastables

Keywords : Laser spectroscopy, isotope shifts, silver atom, optical clocks, metastable atomic beams

Remerciements

Je tiens à remercier J.A.R. Griffith, grâce à qui j'ai décidé de faire de la recherche en physique atomique, pour son encouragement par la suite. J'exprime ma reconnaissance aux membres du Clarendon Laboratory, Oxford (Patrick Baird, Derek Stacey, Pat Sandars, Kem Woodgate, Chris Foot, Chris Goodwin et George Matthews) de leur soutien aux cours de ma thèse ainsi que pour l'intérêt qu'ils ont cordialement manifesté depuis cette époque. Je remercie Ed Hinds et Malcolm Boshier de leur aide au cours de ma thèse, puis de la possibilité d'effectuer un séjour postdoctoral à Yale University, me montrant ainsi l'esprit du travail "à l'américaine". Mes remerciements vont également aux autres membres de leur équipe pour tout ce qu'ils m'ont appris là-bas (Serge Haroche, Dana Berkeland, Charles Sukenik, Vahid Sandoghdar, Dongyun Cho, Karin Sangster, Tim Roach). Les cours de mécanique de précision de Tony Massini se sont révélés d'une valeur inestimable par la suite. Je tiens à exprimer ma gratitude envers les directeurs du Laboratoire Kastler Brossel, Jacques Dupont-Roc et Michèle Leduc, de m'avoir accueilli dans leur laboratoire pour des séjours postdoctoraux. Je tiens à exprimer ma sincère gratitude à François Biraben, Lucile Julien et Bernard Cagnac de m'avoir fait confiance en m'invitant à effectuer un séjour dans leur équipe, d'avoir su me transmettre une part de leur énorme savoir-faire ainsi que de m'avoir permis de perfectionner mon français. Merci aussi à François Nez et Sophie Bourzeix de tout ce qu'ils m'ont appris au cours de cette période. Je serais toujours reconnaissant envers l'équipe de Marie-Anne Bouchiat (Jocelyne Guéna, Philippe Jacquier, Michel Lintz et Dominique Chauvat) de deux années très agréables aux cours desquelles j'ai abordé un domaine scientifique très différent à travers une expérience de physique fondamentale parmi les plus difficiles à mettre en œuvre. Je leur exprime également ma reconnaissance de l'intérêt qu'ils ne cessent manifester pour mes travaux de recherche au BNM-INM. Je remercie les Professeurs Claude Morillon et Marc Himbert de m'avoir embauché en tant que Maître de Conférences au Cnam ainsi que pour le soutien qu'ils ont apporté aux projets me concernant. Outre ses capacités de chercheur et son écoute continue, Patrick Juncar a eu la gentillesse de lire une première version de ce document et d'avoir fait part de ses critiques d'origines scientifiques directement liées à notre domaine de recherche. Je remercie Saïda Guellati-Khélifa pour sa chaleureuse introduction au monde des atomes froids. Une partie de cet ouvrage est le résultat direct des missions au Japon et en Angleterre en compagnie de Hugh Klein, David Knight et Josh Silver dont je garde de très bons souvenirs ; merci au gouvernement britannique de m'avoir permis d'y participer, à Marc Himbert de m'avoir financé et à Brian Ferrar, Tomoko Watanabe et Kazuhiko Sugiyama entre autres, de leur accueil. Je remercie Isabelle Boudon et Isabelle Lherminier de leurs *Übersetzungen* ainsi que pour leur soutien constant. Claire Smith a fourni de nombreux articles difficiles à trouver en France. Enfin et surtout, un grand merci aux protagonistes principaux (Stéphane Guérandel, Thomas Badr, Sylvestre Challemel du Rozier et Yann Louyer) ainsi que tous les autres participants à l'expérience sur l'argent. Sans leur apport, ce document n'aurait jamais vu le jour.

Liste des sigles

BBO	Borate de barium
BIPM	Bureau International des Poids et Mesures
BNM	Bureau National de Métrologie
BNM-INM	BNM-Institut National de Métrologie
BNM-LPTF	BNM-Laboratoire Primaire du Temps et des Fréquences (actuelle composante du BNM-SYRTE)
BNM-SYRTE	BNM-Systèmes de Référence Temps et Espace (ex-BNM-LPTF)
CNAM	Conservatoire National des Arts et Métiers
ELSA	Équipe Lasers Solides et Applications (IOTA)
ENS	École Normale Supérieure
IOTA	Institut d'Optique Théorique et Appliquée
LAC	Laboratoire Aimé Cotton
LHA	Laboratoire de l'Horloge Atomique (actuelle composante du BNM-SYRTE)
LKB	Laboratoire Kastler Brossel (ENS) (ex-Laboratoire de Spectroscopie Hertzienne de l'ENS)
LPL	Laboratoire de Physique des Lasers
MIM	Métal-isolant-métal
MIT	Massachusetts Institute of Technology
MPQ	Max Planck Institut für Quantenoptik
NBS	National Bureau of Standards (aujourd'hui NIST)
NIST	National Institute of Standards and Technology (ex-NBS)
NPL	National Physical Laboratory
NRC-CNRC	National Research Council (of Canada) - Conseil National de la Recherche Canadienne
PM	Photomultiplicateur
PTB	Physikalische Technische Bundesanstalt
PV	Parity Violation (violation de la parité)
QED	Quantum Electrodynamics (Electrodynamique quantique)
SI	Système International (des unités)
YAG	Grenat d'yttrium et d'alumine
YLF	Fluore d'yttrium et de lithium

Table des matières

1	Introduction	13
2	Spectroscopie laser haute résolution des systèmes atomiques	15
2.1	Spectroscopie du gadolinium sur jet atomique	15
2.2	Mesure des écarts isotopiques dans le xénon	15
2.3	Détermination du Lamb shift et de la constante de Rydberg	18
2.3.1	La transition 1S-2S dans l'hydrogène	18
2.3.2	Spectroscopie à deux photons des transitions 2S- n S, n D dans l'hydrogène .	20
2.3.3	La transition 1S-3S dans l'hydrogène	22
3	Violation de la parité dans le césium	25
3.1	Motivations	25
3.2	La deuxième expérience de l'ENS et ma participation	26
3.3	Conclusion	28
4	Spectroscopie à deux photons de l'atome de rubidium	31
5	Des horloges optiques : quel système faudrait-il choisir ?	35
5.1	Pourquoi développer une horloge optique ?	35
5.2	Molécule, ion ou atome ?	36
5.2.1	Molécules	36
5.2.1.1	Molécules polyatomiques	36
5.2.1.2	Molécules diatomiques	37
5.2.2	Des ions piégés	38
5.2.2.1	Généralités	38
5.2.2.2	Ions <i>versus</i> atomes	41
5.2.3	Les atomes candidats à une horloge optique	42
5.2.4	Systèmes possédant des transitions à un photon	42
5.2.5	Systèmes possédant des transitions à deux photons	44
6	Développement d'une horloge optique basée sur l'atome d'argent	49
6.1	Le projet du BNM-INM	49
6.1.1	Défis du projet	49
6.1.2	Calcul du taux des transitions à deux photons	50
6.1.3	Détection d'atomes d'argent métastables	50
6.1.3.1	Quenching par champ électrique	51

6.1.3.2	Fluorescence induit par photon lointain IR	51
6.1.3.3	Ionisation par fil chaud plus spectromètre de masse	51
6.1.3.4	Ionisation par bombardement électronique	52
6.1.3.5	Effet Auger	52
6.1.3.6	Photoionisation	52
6.1.3.7	Fluorescence UV induite par un laser visible	52
6.1.4	Amélioration de la connaissance de la fréquence de la transition à 661 nm .	53
6.1.4.1	Spectroscopie laser à 547,7 nm	53
6.1.4.2	Spectroscopie laser à 206,1 nm	55
6.1.5	Stabilisation en fréquence du laser à colorant	56
6.1.6	Recherche de la transition à deux photons de 576 nm	57
6.1.7	Développement des sources lasers solides pompées par diode laser	59
6.1.8	Refroidissement laser de l'atome d'argent	60
6.1.9	Un condensat de Bose Einstein, un réseau optique ou une fontaine ?	61
6.1.10	État actuel de l'expérience et des perspectives	62

7 Conclusion

63

Table des figures

2.1	Schéma des transitions avec les longueurs d'onde en nanomètres [7] pour une étude de la variation avec J de l'écart isotopique dans le Gd. Il s'agissait de comparer des raies ayant un niveau supérieur commun. Au cours de ma thèse [1], nous n'avons obtenu le spectre que d'une seule raie, celle à 574,466 nm.	16
2.2	Transitions dans l'atome de xénon [12]. Celle à deux photons de 249 nm a été étudiée au cours de ma thèse pour déterminer des écarts isotopiques [1, 3]. La détection se faisait <i>via</i> la fluorescence à 828 nm puis à 147 nm. La transition à deux photons de 2,19 μm a été proposée comme étalon de fréquence optique par Rolston et Phillips [13, 14].	17
2.3	Schéma partiel de la structure grosse de l'atome d'hydrogène avec en italiques la longueur d'onde des transitions en nanomètres. La comparaison des transitions 1S-2S et 2S-4P [6] et celle de 1S-3S et 2S-6S [17] a fourni des valeurs du Lamb shift du niveau 1S (L_{1S}). Les transitions à deux photons 2S-8S (omise de la figure) et 2S-8D [18] ont permis de déterminer la valeur de la constante de Rydberg R_∞ . Des mesures absolues de la fréquence de la transition 1S-2S [4, 5, 19] ont également mené à la détermination de L_{1S}	19
3.1	Schéma des transitions impliquées dans les expériences de mesure de la violation de la parité à l'ENS, Paris. Le laser pompe excite une composante hyperfine de la transition M1 interdite 6S-7S. La détection dans la première expérience [43, 44, 45] employait la fluorescence totale à 1,36 μm tandis que dans la seconde [47] l'émission stimulée sur une seule composante hyperfine à 1,47 μm est utilisée.	27
4.1	Schéma partiel des niveaux d'énergie de l'atome de Rb. Le refroidissement laser se fait à l'aide de la raie à 780 nm. Pour clarté, la structure hyperfine a été omise. La résonance à deux photons de 778 nm, détectée via la fluorescence à 420 nm, a été étudiée dans des cellules pour faciliter la mesure de la constante de Rydberg dans l'hydrogène [62, 63] ainsi que pour les télécommunications [64]. Son taux de transition pour une intensité laser donnée est relativement élevé, du fait de la proximité du niveau relais $5p\ ^2P_{3/2}$. Elle a été observée avec des atomes froids à l'aide d'un laser pulsé par l'équipe de Strathclyde [65] et au BNM-INM, avec une source laser continue [66, 59].	32

5.1	Diagramme partiel des niveaux d'énergie de l'atome d'argent avec leur largeur naturelle. Pour plus de clarté, nous avons omis les niveaux des configurations $4d^9 5snp$ dont la prise en compte est indispensable pour évaluer les taux d'excitation à deux photons. Outre des transitions à deux photons $4d^{10} 5s^2 S_{1/2} \rightarrow 4d^{10} ns^2 S_{1/2}$, l'atome possède des résonances étroites liant l'état fondamental aux états $4d^9 5s^2 {}^2D_{3/2,5/2}$ susceptibles de fournir des horloges optiques. L'atome peut être refroidi par une laser accordée sur la raie D2 à 328 nm. Les atomes dans l'état métastable $5s^2 {}^2D_{5/2}$ peuvent être détectés via la fluorescence à 206, 328 ou 338 nm induite par un laser à 548 nm qui les excite vers le niveau $6p^2 P_{3/2}$. Notons qu'un photon de 328 nm n'a pas tout à fait suffisamment d'énergie pour ioniser des atomes à partir de l'état $5s^2 {}^2D_{5/2}$	46
6.1	Mesures spectroscopiques pour localiser la position du niveau $4d^9 5s^2 {}^2D_{3/2}$. Les incertitudes des mesures sont données en dessous. Les fréquences des raies à 206, 515, 328, 338, 419, 515 et 548 nm ont été déterminées par Pickering et Zilio [142]. Dans leur article, la valeur pour l'énergie du niveau $4d^9 5s^2 {}^2D_{3/2}$ provient de seule une raie vers 515 nm, dont l'attribution à l'argent s'avérerait erronée. Les mesures des fréquences des raies à 1937 et 2358 nm sont dues à Nave [154]	58
7.1	Spectre à deux photons de la transition $4d^{10} 5s^2 S_{1/2} \rightarrow 4d^9 5s^2 {}^2D_{3/2}$ dans l'Ag étalonné par battement de fréquences du laser exciteur avec un second laser asservi sur une composante hyperfine de la raie 111R(18-1) de la molécule $^{127}I_2$	65

Liste des tableaux

5.1	Quelques étalons de fréquence optique basées sur des transitions moléculaires. Pour le laser HeNe à 633nm, l'incertitude recommandée est environ 4 fois supérieure à celle provenant de la mesure par Acef et coll. [76].	36
5.2	Étalons de fréquence optiques basés sur un ion unique piégé. A l'exception du Ba ⁺ , des études se poursuivent sur tous ces candidats. Les indices désignent les longueur d'onde et fréquence d'horloge ainsi que les rayonnements requis pour le refroidissement laser.	40
5.3	Étalons de fréquence optiques basés sur des atomes neutres. Les indices désignent les longueur d'onde et fréquence d'horloge ainsi que les rayonnements requis pour le refroidissement laser. Des mesures de fréquence par peigne femtoseconde ont été effectuées pour l'H, le Ca et le Sr.	43
6.1	Intensités de saturation $I_{sat} = (\pi hc)/(3\lambda^3\tau)$ des transitions dans l'atome d'argent où τ est la durée de vie de l'état excité. Dans la dernière colonne, la paramètre I'_{sat} tient compte de la structure fine et hyperfine ainsi que le rapport de branchement (1 % dans le cas de la raie à 548 nm). Le paramètre Γ_{laser} désigne la largeur spectrale de la source laser excitatrice.	55
6.2	Fréquence du centre de gravité de la raie $4d^{10}5s^2S_{1/2} \rightarrow 4d^{10}6p^2P_{3/2}$ à 206,1 nm de l'atome d'Ag. Toutes les méthodes employées une lampe à décharge. Notre incertitude est supérieure à celle donnée dans [140] pour tenir compte un déplacement collisionnel éventuel.	56

Chapitre 1

Introduction

Ce document décrit un ensemble de travaux scientifiques effectués entre 1985 et 2003 dans cinq équipes françaises et étrangères. Il s'agit de l'étude de plusieurs systèmes atomiques (Gd, H, Xe, Cs, Rb, Ag) par spectroscopie laser dans le but soit de réaliser des tests de physique fondamentale, soit pour le développement d'étalons optiques. Dans le cas de l'hydrogène, les deux objectifs se confondent. La plupart des études concernent l'emploi de sources laser continues pour interroger des atomes présents dans une cellule, un jet thermique effusif ou bien dans un piège magnéto-optique. Certains de ces projets sont des expériences de très longue haleine, leurs difficultés comprenant le faible rapport signal sur bruit et la lutte contre des effets systématiques.

Les travaux de thèse, présentés dans le chapitre 2 sont mentionnés dans un souci de continuité. Comme nous le verrons, ils ont fortement influencé le déroulement des projets entrepris par la suite. Dans le même chapitre sont traitées des expériences effectués au cours des séjours post-doctoraux, certaines ayant un lien direct avec les projets de thèse. Le chapitre 3 décrit ma participation à une expérience pour mesurer la violation de la parité dans l'atome de césium. C'est au premier vu un projet radicalement différent des autres traités dans ce document, mais des points communs subsistent. Dans le chapitre 4 sont mentionnées des expériences de spectroscopie à deux photons de l'atome du rubidium. La majeure partie de cette synthèse est consacrée au développement d'une horloge optique basée sur une transition très fine de l'atome d'argent. Le chapitre 5, contenant un survol des étalons de fréquence optiques, souligne l'intérêt de l'atome d'argent tandis que le chapitre 6 décrit le déroulement de l'expérience du Bureau National de Métrologie-Institut National de Métrologie (BNM-INM). Ce projet tire pleinement profit des expériences décrites auparavant ainsi que des liens établis avec les équipes de recherche correspondantes. Un bilan de l'ensemble des travaux épilogue clôt l'ouvrage.

Ce document est une synthèse des travaux mentionnés ci-dessus. Un lecteur souhaitant en savoir davantage trouvera des descriptions détaillées dans les publications citées ainsi que dans des mémoires d'ingénieurs et des thèses. Toutefois, certains détails techniques inédits seront fournis concernant des études en cours, notamment sur l'atome d'argent. La version présentée ici est légèrement différente de celle soumise aux rapporteurs début septembre 2003. Elle tient compte d'une part des questions soulevées et des remarques faites lors de la discussion suivant la soutenance orale et d'autre part, des résultats significatifs obtenus début novembre 03.

Chapitre 2

Spectroscopie laser haute résolution des systèmes atomiques

Au cours de ma thèse [1] j'ai entrepris des expériences de spectroscopie laser du gadolinium [2] et du xénon [3]. J'ai également participé à des mesures du Lamb shift et de la constante de Rydberg dans l'hydrogène, d'abord en thèse [4, 5], puis au cours des séjours post-doctoraux à Yale University [6] ainsi qu'au Laboratoire de Spectroscopie Hertzienne de l'École Normale Supérieure (aujourd'hui Laboratoire Kastler Brossel).

2.1 Spectroscopie du gadolinium sur jet atomique

Le gadolinium, terre rare, possède sept isotopes stables et beaucoup de transitions dans le visible à partir des niveaux de la configuration fondamentale $4f^7 5d 6s^2$ (figure 2.1). Il s'agissait d'effectuer des mesures d'écartis isotopiques dans plusieurs transitions visibles et d'en examiner la dépendance en le moment cinétique J des niveaux impliqués. Une description détaillée en est présentée dans ma thèse [1]. Des travaux similaires (jamais publiés) avaient été entrepris par l'équipe de mon ancien tuteur de l'université de Birmingham J.A.R. Griffith (voir la thèse de G.M. Hayes [8]). Nous avons commencé par la transition $4f^7 5d 6s^2 \ ^9D(F = 4) \rightarrow 4f^7 5d 6s 6p \ ^9D(F' = 4)$ vers $\lambda = 574,466$ nm. L'expérience consistait en la spectroscopie laser perpendiculaire à un jet atomique thermique, la détection se faisant par fluorescence induite. La difficulté principale était liée à la haute température nécessaire à évaporer un flux atomique suffisant (1400 °C) couplée à l'extrême réactivité chimique du Gd chaud. Des essais avec un four chauffé par bombardement électronique (2 kV, 100 mA) ont permis d'observer des spectres [2]. Les priorités de l'équipe étant toutefois des projets de plus grande envergure, cette expérience a été interrompue. Signalons que l'équipe de Kronfeldt (Berlin) a publié à cette époque les résultats d'une étude similaire [9, 10, 11].

2.2 Mesure des écartis isotopiques dans le xénon

Il s'agissait des mesures des écartis isotopiques par spectroscopie à deux photons de 249 nm sans effet Doppler (figure 2.2). La longueur d'onde nécessaire pour exciter la transition $5p^6 \ ^1S_0 \rightarrow 5p^5 6p \ 2p_5$ (notation de Paschen, $5p^6 \ ^1S_0 \rightarrow 6p \ [1/2]_0$ en notation de couplage $j - \ell$) se situait suffisamment proche de 243 nm pour permettre de profiter du même montage développé à Oxford

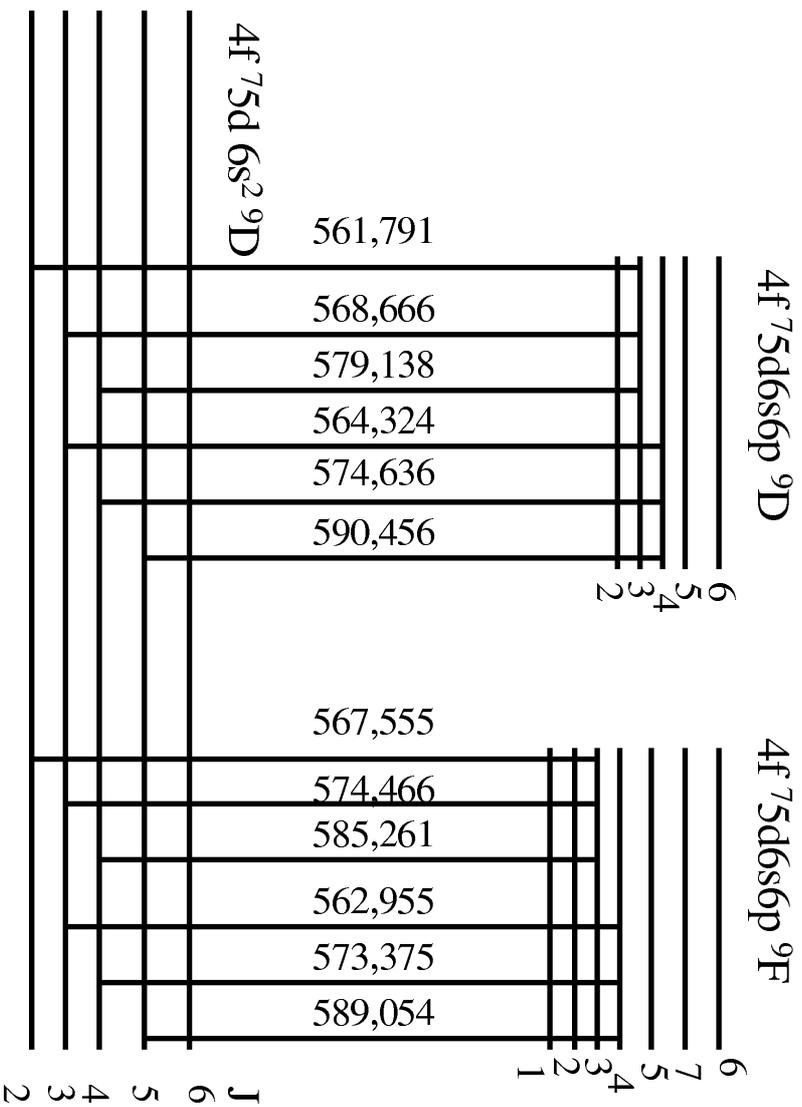


FIG. 2.1 – Schéma des transitions avec les longueurs d'onde en nanomètres [7] pour une étude de la variation avec J de l'écart isotopique dans le Gd. Il s'agissait de comparer des raies ayant un niveau supérieur commun. Au cours de ma thèse [1], nous n'avons obtenu le spectre que d'une seule raie, celle à 574,466 nm.

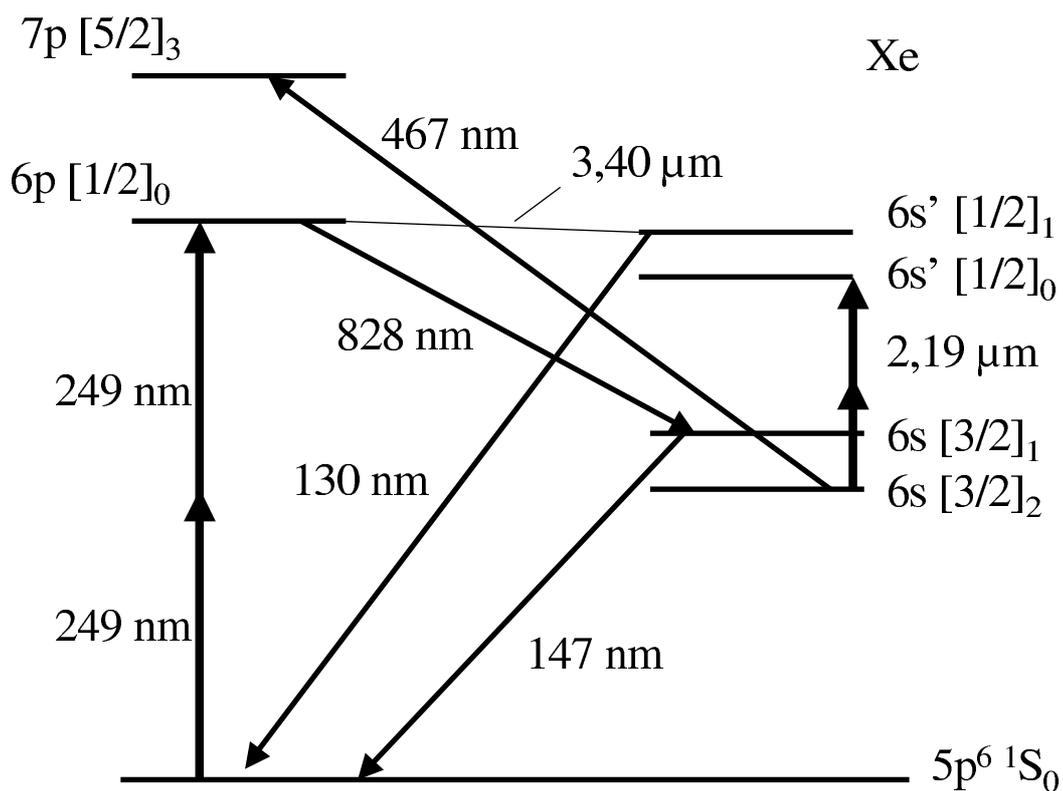


FIG. 2.2 – Transitions dans l'atome de xénon [12]. Celle à deux photons de 249 nm a été étudiée au cours de ma thèse pour déterminer des écarts isotopiques [1, 3]. La détection se faisait *via* la fluorescence à 828 nm puis à 147 nm. La transition à deux photons de $2,19 \ \mu\text{m}$ a été proposée comme étalon de fréquence optique par Rolston et Phillips [13, 14].

pour la transition 1S-2S dans l'hydrogène (voir section 2.3.1). L'intérêt de l'étude concernait le fait qu'il n'y ait aucun changement d'électron s entre les deux configurations. La contribution à l'écart isotopique liée au volume nucléaire était donc *a priori* petite. Nous avons déterminé les écarts isotopiques entre les huit isotopes stables avec des incertitudes inférieures au mégahertz [3]. La comparaison de ceux-ci avec ceux de la raie $5p^56s\ 1s_5 \rightarrow 5p^57p\ 3p_8$ (notation de Paschen, $6s\ [3/2]_2 \rightarrow 7p\ [5/2]_3$ en notation de couplage $j - \ell$) à 467 nm mesurés par Schneider [15] ont révélé que la contribution due à la distribution de charge nucléaire était plus importante dans notre cas. Nous avons attribué cette différence à un effet d'écran des électrons s par des électrons p . Notons finalement que le xénon métastable est un autre candidat atome neutre d'une horloge optique [13, 14] (voir paragraphe 5.2.5).

2.3 Détermination du Lamb shift et de la constante de Rydberg

Au cours de ma thèse et des séjours post-doctoraux, j'ai participé à des études de transitions dans l'hydrogène et le deutérium (figure 2.3). Une revue des ces travaux ainsi que des mesures effectuées par d'autres équipes est présentée dans la référence [16], article joint en annexe. Dans les sections suivantes sont indiquées mes contributions aux différents aspects de ces projets.

L'hydrogène est l'atome le plus simple, composé d'un proton autour duquel gravite un électron. Par conséquent, les positions des niveaux d'énergie de ce système à deux corps peut être calculées avec une très faible incertitude (quelques dizaines de kilohertz). L'existence des transitions de faible largeur naturelle, notamment 1S-2S, a poussé des expérimentateurs à développer des techniques de spectroscopie de plus en plus sensibles afin d'effectuer des mesures au même niveau d'exactitude que celui des calculs. Ainsi, ce système permet une confrontation entre théories de physique fondamentale (électrodynamique quantique ou QED) et expérience. De plus, la mesure des énergies des états permet de déterminer des constantes fondamentales, notamment la constante de Rydberg. Enfin, grâce à leur facteur de qualité élevé ($>10^9$ pour une résonance optique observée avec une largeur inférieur au mégahertz), certaines transitions peuvent servir d'étalons de fréquence. En revanche, l'hydrogène atomique est difficile à étudier pour plusieurs raisons. D'abord, il faut dissocier les molécules H_2 . La légèreté de l'atome fait que sa vitesse est élevée à température ambiante ($\simeq 3000\text{ ms}^{-1}$), ce qui augmente les effets Doppler du premier et second ordre ainsi que l'élargissement par temps de transit. Il est possible de refroidir l'atome par des techniques cryogéniques mais le refroidissement laser requiert du rayonnement continu à 121,6 nm, notoirement difficile à générer [20]. D'ailleurs, l'absence des transitions visibles partant de l'état fondamental 1S nécessite soit de développer des sources UV ($\lambda \leq 243\text{ nm}$), soit de réaliser une source d'atomes dans l'état métastable 2S. Contrairement à d'autres atomes, la quasi-dégénérescence des niveaux de parité opposée donne lieu à un effet Stark linéaire. (On peut toutefois éviter l'effet Zeeman du premier ordre car le proton a un spin $I = 1/2$ permettant des transitions entre sous-niveaux hyperfins avec $m_F = 0$).

2.3.1 La transition 1S-2S dans l'hydrogène

La transition entre l'état fondamental et le niveau métastable à une largeur naturelle de 1,3 Hz. On peut l'exciter à l'aide de deux photons de 243 nm. Le facteur de qualité de la résonance observée avec sa largeur naturelle serait 2×10^{15} . Aussi, cette transition est étudiée depuis de nombreuses

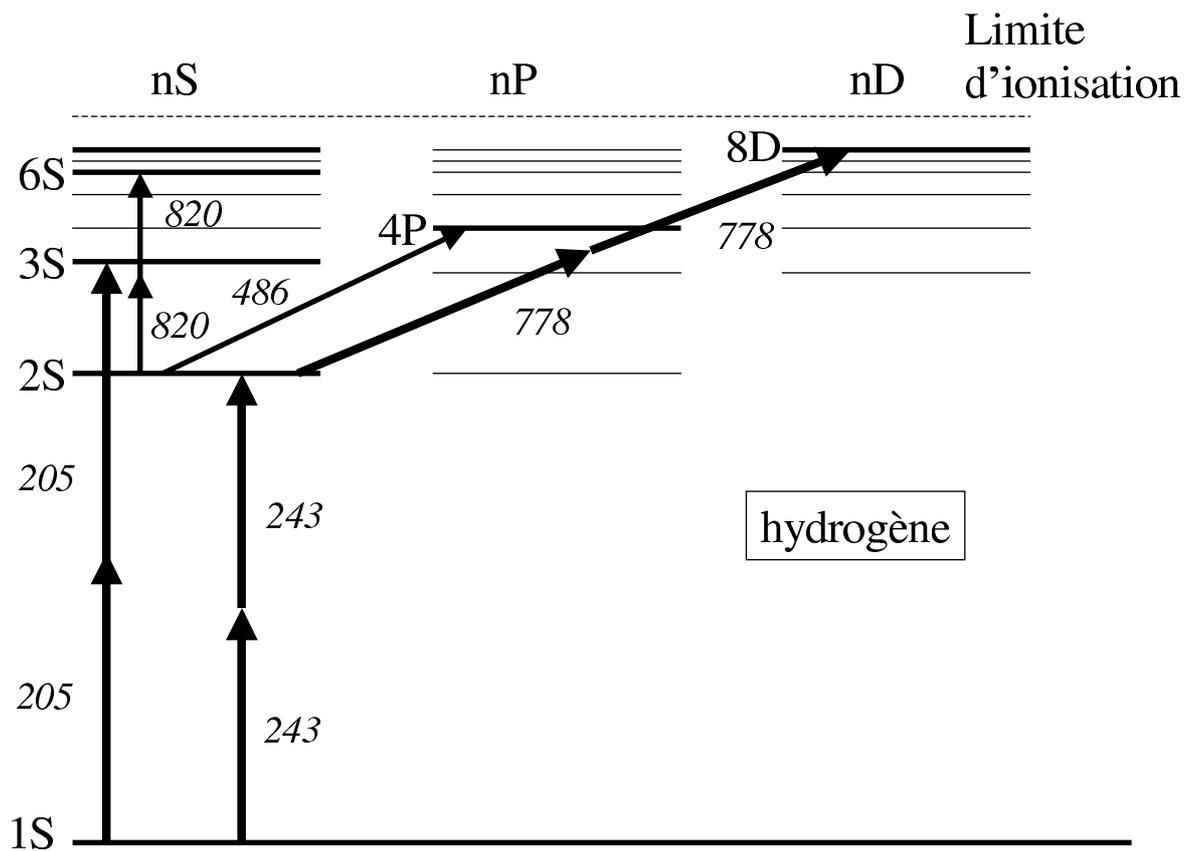


FIG. 2.3 – Schéma partiel de la structure grosse de l'atome d'hydrogène avec en italiques la longueur d'onde des transitions en nanomètres. La comparaison des transitions 1S-2S et 2S-4P [6] et celle de 1S-3S et 2S-6S [17] a fourni des valeurs du Lamb shift du niveau 1S (L_{1S}). Les transitions à deux photons 2S-8S (omise de la figure) et 2S-8D [18] ont permis de déterminer la valeur de la constante de Rydberg R_∞ . Des mesures absolues de la fréquence de la transition 1S-2S [4, 5, 19] ont également mené à la détermination de L_{1S} .

années, à la fois pour la mesure des constantes fondamentales (constante de Rydberg R_∞ , rapport des masses protonique et électronique m_p/m_e) et des tests de l'électrodynamique quantique (Lamb shift du niveau 1S). Les travaux les plus connus sont ceux de Hänsch, effectués d'abord à Stanford University puis au Max Planck Institut für Quantenoptik (MPQ), Garching [19] mais d'autres équipes ont également contribué à l'avancement du sujet [21]. A Oxford, l'équipe de Stacey, Baird et Woodgate a fait une mesure de la fréquence de la transition dans l'hydrogène et le deutérium [4, 5, 22]. Ces travaux ont été poursuivis par d'anciens membres de cette équipe (Boshier et Hinds) à Yale University [6]. J'ai participé à la première expérience en réalisant la cavité de surtension nécessaire à augmenter la puissance laser à 243 nm autour de la région d'interaction où les atomes étaient étudiés dans une cellule. La largeur expérimentale (quelques mégahertz) était dominée par des collisions entre les atomes. Le rayonnement à 243 nm a été généré par doublage de fréquence d'un laser à colorant à 486 nm. L'étalonnage de la mesure se faisait via le raccordement de la fréquence du laser à 486 nm à celle d'une raie de tellure moléculaire $^{130}\text{Te}_2$. Cette expérience a fourni à l'époque les meilleures valeurs du Lamb shift du niveau 1S dans l'hydrogène et le deutérium. Une autre interprétation, si l'on acceptait la justesse des calculs QED, déterminait la constante de Rydberg [4, 5].

Dans l'expérience de Yale, le montage pour l'excitation à deux photons de 243 nm était similaire. Une boîte en dural remplaçait la cellule en Pyrex et le doublage de fréquence avait lieu dans une cavité externe. La différence essentielle portait sur l'étalonnage de la mesure. Il s'agissait de comparer les fréquences des transitions 1S-2S et 2S-4P dans l'hydrogène, suivant l'idée employée d'abord par Wieman et Hänsch [23]. Selon le modèle de Bohr, leur fréquences serait dans un rapport exact de quatre. Les corrections relativistes, radiatives et l'effet du volume nucléaire modifient légèrement ce rapport. Ainsi, l'énergie du photon à 486 nm doublée en fréquence pour exciter la transition 1S-2S, sera différente de celle du photon excitant la raie 2S-4P. Cette différence se chiffre à quelques gigahertz et peut se mesurer directement par des méthodes hétérodynes optiques. Sa détermination donne accès directement aux termes correctifs. Pour l'interrogation de la transition visible, nous avons construit un jet d'hydrogène métastable. C'était la mise en pratique de l'étude théorique menée au cours de ma thèse. Des molécules d'hydrogène ont été dissociées par une décharge micro-onde. Pour peupler l'état 2S, nous avons bombardé les atomes perpendiculairement au jet à l'aide d'un canon à électrons. La population d'atomes métastables était détectée via l'émission des électrons d'une plaque métallique. L'excitation de la résonance 2S-4P par un laser perpendiculaire au jet collimaté provoquait une diminution de la population 2S. Bien après mon départ de l'équipe, ces mesures, effectuées seulement dans l'hydrogène, ont permis de déterminer la valeur du Lamb shift du niveau 1S avec une incertitude de 51 kHz [6]. Une description détaillée du projet est fournie dans la thèse de Dana Berkeland [24].

2.3.2 Spectroscopie à deux photons des transitions 2S- n S, n D dans l'hydrogène

Outre la transition 1S-2S de l'hydrogène, la mesure d'autres résonances a permis de déterminer la valeur de la constante de Rydberg. C'est le cas notamment des transitions à deux photons 2S- n S ou 2S- n D, étudiées depuis 1983 par Biraben et collègues à l'ENS, Jussieu. Leurs premières mesures déterminait les fréquences des transitions 2S-8D, 10D et 12D [25, 26, 27]. Les résonances à deux photons étaient excitées par spectroscopie à deux photons sans effet Doppler. Pour augmenter le temps d'interaction atome-laser, le laser exciteur était colinéaire à un jet d'hydrogène

métastable. Une cavité de surtension autour du jet augmentait la puissance dans la région d'interaction d'un facteur 100 environ. Au bout du jet, le nombre d'atomes métastables étaient sondé par quenching dans un champ électrique et détection du rayonnement Lyman- α . L'excitation d'une transition vers un niveau supérieur provoque une diminution de la population de l'état métastable 2S, $\approx 95\%$ des atomes nS , nD se désexcitant par cascade radiative vers le niveau fondamental 1S. L'étalonnage de la mesure se faisait par comparaison avec une laser HeNe étalon à 633 nm, en l'occurrence celui de l'INM (appelé "INM-12"). Lors des premières mesures, le raccordement se faisait par l'intermédiaire d'une cavité Fabry Perot. Il s'agissait donc de déterminer un rapport de longueurs d'onde par une méthode interférométrique. Dans cette expérience, les effets systématiques étaient bien différents de ceux des expériences d'Oxford ou de Yale. En particulier, le déplacement lumineux, négligeable pour la transition 1S-2S excité dans une cellule thermique ¹, est ici la principale cause d'élargissement des raies (quelques centaines de kilohertz) et source de décalage de fréquence de leur centre. Sa prise en compte requiert que l'on effectue des acquisitions à des intensités lumineuses différentes afin d'extrapoler la valeur de la fréquence à puissance nulle. Grâce d'une part à une étude détaillée des formes de raies de transition et d'autre part à la détermination des déphasages dus aux fronts d'onde dans l'interféromètre Fabry Perot, l'incertitude relative de la mesure $1,7 \times 10^{-10}$ n'était limitée que par celle du laser étalon ($1,6 \times 10^{-10}$).

Deux démarches ont été effectuées afin d'augmenter l'exactitude : une meilleure détermination de la fréquence du laser étalon et l'amélioration de la méthode de raccordement de la fréquence laser à celle-ci. Le séjour à l'ENS Jussieu de septembre 89 à février 91 m'a donné l'occasion de participer à cette phase de l'expérience. La fréquence du laser HeNe étalon serait mesurée par une chaîne de multiplication de fréquence montée au BNM-LPTF (actuel BNM-SYRTE). Le meilleur raccordement tirerait profit d'une coïncidence de fréquence entre celle des transitions 2S-8S, 8D dans l'hydrogène $\nu_{2S-8S,D}$, et la différence de celles de lasers étalon HeNe à 633 nm et $3,39 \mu\text{m}$:

$$\left(\frac{1}{2}\right)\nu_{2S-8S,D} - \nu_{(3,39)} \simeq \nu_{\text{HeNe}/I_2}. \quad (2.1)$$

Les différences essentielles par rapport à l'expérience précédente étaient liées aux sources lasers. Un premier laser Ti :saphir remplaçait le laser à colorant pour exciter les transitions. Un second laser, identique au premier (et que j'ai aidé à construire) servait à faire la somme de fréquences avec un laser HeNe à $3,39 \mu\text{m}$ (88 THz) afin de synthétiser 633 nm. La fréquence de battement entre cette lumière et celle d'une source étalon à 633 nm (HeNe/ I_2) (473 THz) fournirait la valeur de la fréquence de la source à 778 nm (385 THz). Pour ce faire, le laboratoire avait construit un laser HeNe/ CH_4 . L'étalon à cette longueur d'onde était fourni par R. Felder du Bureau International des Poids et Mesures (BIPM) et le laser maison était étalonné en permanence par battement de fréquence. Il n'était pas stabilisé sur une raie moléculaire mais la fréquence de battement était maintenue constante grâce à une boucle de rétro-action que j'ai élaborée. Un autre aspect de l'expérience concernait l'obtention d'une meilleure stabilité à court terme des lasers par rapport au laser à colorant employé précédemment. La meilleure méthode adoptée partout est celle des bandes latérales ou Pound-Drever-Hall [28]. La phase du laser est modulée à une fréquence ν_{mod} typiquement 5 à 30 MHz à l'aide d'un modulateur électro-optique externe. La lumière réfléchiée d'une cavité Fabry Perot de haute finesse est récupérée par une photodiode dont le signal est mélangé avec l'os-

¹Dans une cellule, la largeur observée se chiffre aux alentours du mégahertz, cf. 2 kHz pour le déplacement lumineux. En revanche, pour les expériences les plus poussées avec un jet à <10 K (Garching), la prise en compte du déplacement de 200 Hz à 1,2 kHz était indispensable [19].

cillateur pilotant le modulateur. Le signal d'erreur résultant possède à la fois une pente raide vers le point de consigne ainsi qu'une plage de capture égale à $2v_{mod}$. La pente importante permet de réduire efficacement les fluctuations de fréquence tandis que la large plage de capture confie une robustesse à la boucle d'asservissement. Ma contribution concernait la réalisation de la modulation de la phase d'un laser et l'obtention d'un signal d'erreur adéquat. Pour ce faire, j'ai employé un laser HeNe couplé à une cavité Fabry Perot courte. Lorsque le système marchait avec le premier laser Ti :saphir, je l'ai dupliqué pour le second. Malgré ces améliorations, le vrai défi du projet, relevé par François Nez dans le cadre de sa thèse [29], concernait la mesure de la fréquence de battement de 89 GHz entre les deux faisceaux à 633 nm, d'abord avec une diode métal-isolant-métal (MIM) puis, plus facilement, à l'aide d'une diode Schottky.

Dans le cadre du projet, j'ai également commencé l'étude d'un filament chauffé indirectement pour augmenter le flux H(2s). Bien que ce montage n'ait finalement jamais servi, le travail m'a permis de mieux connaître le montage du canon à électrons, fait utile plus tard dans le cadre de jet d'argent métastable au BNM-INM (voir chapitre 6).

L'expérience à conduit à une détermination en 1993 de la constante de Rydberg avec une incertitude relative de $2,2 \times 10^{-11}$. Depuis, la mesure directe de la fréquence des transitions 2S-8S/8D [18] puis 2S-12D [30, 31] par la même équipe ainsi qu'un ajustement par moindres carrés d'autres paramètres ont permis une évaluation de cette constante avec une incertitude de $7,7 \times 10^{-12}$ [32]. L'incertitude relative sur la valeur recommandée par CODATA 1998 [33], obtenue de l'ajustement de toutes les constantes fondamentales, est de $7,6 \times 10^{-12}$. Les expériences sur jet métastable produit par bombardement électronique semblent avoir atteint leur limite. L'obstacle majeur est l'évaluation du déplacement lumineux qui exige une connaissance des trajectoires atomiques traversant le faisceau laser. Pour mieux faire, il serait souhaitable soit de peupler optiquement le niveau métastable soit d'étudier une transition provenant de l'état fondamental (plus d'atomes). Dans le premier cas, il y a déjà une expérience en cours au MIT où des atomes d'hydrogène confinés dans un piège magnétique sont excités dans l'état 2S via deux photons à 243 nm [34]. Pour mieux contrôler les effets systématiques, il serait utile d'étudier plusieurs transitions du type 2S-nS. Nous verrons plus tard (ch. 6) que les sources laser que nous développons actuellement au BNM-INM pour étudier l'atome d'argent permettrait également d'exciter la transition 2S-3S. Nous envisageons à ce sujet une collaboration avec une équipe du NPL, Angleterre, qui dispose déjà d'un jet métastable peuplé par bombardement électronique [35]. Signalons enfin une troisième possibilité, l'étude des transitions entre niveaux de Rydberg circulaires [36].

2.3.3 La transition 1S-3S dans l'hydrogène

L'autre projet de l'équipe de Biraben concernait une mesure du Lamb shift dans l'hydrogène et le deutérium par comparaison des fréquences des transitions 1S-3S et 2S-6S. La première transition à une largeur naturelle de 1 MHz, ce qui est bien plus important que celle de la fameuse résonance 1S-2S. Toutefois, l'incertitude des expériences menées jusque-là était dominée par la contribution de la transition 2S-4P ou celle d'une raie du tellure moléculaire. Nous rappelons au lecteur que, pendant ce temps, l'équipe de Yale se servait de la raie 2S-4P tandis que celle de Garching travaillait sur la transition 2S-4S à deux photons de 972 nm. Par rapport à celle-ci, la transition 2S-6S

à une plus faible largeur naturelle (250 kHz au lieu de 972 kHz) ainsi qu'une probabilité d'excitation environ quatre fois plus favorable. Il était donc raisonnable de supposer faire une mesure du Lamb shift capable de concurrencer celles employant la transition 1S-2S. En réalité, l'étude de la transition 1S-3S est bien plus difficile. D'une part, elle requiert des photons à 205 nm. D'autre part, pour une intensité laser égale, la probabilité de transition est 10 fois plus faible que celle de la raie 1S-2S. Ma contribution à l'expérience concernait la construction d'un jet atomique d'hydrogène pour l'excitation et la détection de la résonance 1S-3S. L'excitation aurait lieu dans une cavité de surtension dont l'un des miroirs se situait sous vide, près de la région d'interaction atome-laser. Le vrai défi du projet était cependant la génération de suffisamment de puissance à 205 nm [37]. Ceci se faisait par doublages successifs d'une source à 820 nm, l'un des lasers Ti :saphir. La première étape, la génération de 410 nm par doublage dans un cristal de LBO dans une cavité externe, permettait d'obtenir plus de 400 mW de lumière violette ². Il en était très différent pour le doublage de 410 nm à 205 nm, le sujet de thèse de Sophie Bourzeix [38]. Le doublage a lieu dans un cristal de BBO placé dans une cavité de surtension. Le montage diffère d'une cavité classique sur plusieurs aspects. D'abord, pour minimiser la dégradation du cristal provoqué par la lumière UV, la cavité en anneau et le cristal sont placés dans une atmosphère d'oxygène à une pression de 2×10^5 Pa. L'extraction du faisceau doublé se fait non pas avec un miroir dichroïque mais avec un prisme. Enfin, pour éviter la diminution de puissance provoquée par des effets de rétrodiffusion dans le cristal, la longueur de la cavité est modulée pour que la cavité ne soit pas résonnante que périodiquement. Ceci donne lieu à des impulsions de durée 30 ms, temps long devant la durée de vie de l'état 3S (160 ns). Le montage permet d'obtenir l'équivalent de 1 mW de puissance continue à 205 nm. La cavité de surtension linéaire autour du jet permettait d'augmenter d'un facteur dix la puissance stockée. Après de très longues recherches de la transition 1S-3S, l'équipe a réussi à déterminer le Lamb shift du niveau 1S avec une incertitude de 46 kHz (cf. les mesures de Yale (51 kHz) [6] et de Garching (60 kHz) [39]). Une nouvelle mesure est envisagée qui profiterait d'un rapport signal sur bruit plus élevé, une meilleure connaissance de l'effet Doppler du second ordre [40] ainsi que de la mesure de fréquence à l'aide d'un peigne femtoseconde [41]. Grâce à cette dernière technique, on pourrait même imaginer un jour l'étude de la transition 1S-4S ($\lambda = 194$ nm) où le rayonnement serait synthétisé par mélange de fréquences dans un cristal de borate de barium (BBO). Signalons enfin que la source laser développée pour 205 nm a pu nous aider au Cnam dans la cadre du projet sur l'atome d'argent (chapitre 6).

²Ce travail avait fait en l'occurrence l'objet d'un stage de François Balembos, de l'Ecole Supérieure d'Optique, avec qui nous collaborons actuellement - voir chapitre 6.

Chapitre 3

Violation de la parité dans le césium

Mon deuxième séjour postdoctoral au Laboratoire Kastler Brossel a eu lieu dans l'équipe de M.-A. Bouchiat. Il s'agissait de participer à leur seconde expérience destinée à la mesure de l'effet de l'interaction électro-faible dans l'atome de Cs. Une revue du sujet est fournie dans la référence [42].

3.1 Motivations

L'échange des bosons Z^0 entre le noyau et les électrons s'accompagne d'une violation de la parité (ci-après PV, *Parity Violation*) dans l'interaction atome-lumière : elle se manifeste par l'existence d'une asymétrie droite-gauche dans une probabilité de transition atomique. Sa mesure permet de déterminer la valeur de Q_W , la charge faible du noyau et de tester ainsi différents modèles de l'unification électrofaible dont le Modèle Standard. Dans des transitions radiatives usuelles, l'asymétrie est si petite (10^{-15} pour l'hydrogène 1S-2P) qu'elle est indétectable. On ne peut l'observer que pour des transitions atomiques "interdites" dans lesquelles les règles de sélection de l'interaction électromagnétique font que cette dernière est suffisamment inhibée pour ne plus masquer l'interaction faible. C'est particulièrement le cas d'une transition $nS - n'S$ pour un atome alcalin à un électron de valence. De plus, cette asymétrie croît approximativement comme Z^3 d'où l'intérêt d'étudier des atomes lourds, mais l'extraction d'une valeur de Q_W à partir de mesures de physique atomique nécessite des calculs de structure atomique. Or ce sont les atomes alcalins, (hormis l'hydrogène et l'hélium) qui se prêtent aux calculs atomiques les plus fiables. Aussi la transition 6S-7S dans le césium, l'alcalin stable le plus lourd, est-il système de choix. Les expériences elles-mêmes sont de deux types : 1) mesure d'un pouvoir rotatoire d'une vapeur pour un faisceau laser accordé sur une transition dipolaire magnétique ($M1$) permise dans les atomes plus lourds que Cs (Tl, Pb, Bi) et 2) sur une transition $M1$ interdite excitée en présence d'un champ électrique, recherche d'un terme d'interférence électrofaible mettant en jeu l'amplitude dipolaire électrique violant la parité E_1^{PV} et l'amplitude dipolaire électrique induite par le champ appliqué. Dans le premier cas, le rapport signal sur bruit est plus important. Dans le second, l'amplitude de transition est plus faible mais le signe de l'effet est impair dans le renversement du champ électrique, ce qui aide à sa discrimination vis-à-vis des effets systématiques. Et surtout, c'est aujourd'hui encore dans le Cs que les calculs atomiques sont les plus fiables et les plus exacts.

Il faut souligner que les expériences pour mesurer cet effet sont d'une difficulté rarissime.

D'une part, même dans des les cas les plus favorables, l'effet lui-même est très faible. La transition 6s-7S du Cs a une force d'oscillateur de 5×10^{-14} en absence de champ électrique (amplitude de transition de 10^{-11} par rapport à celle d'une transition dipolaire électrique usuelle, asymétrie de 10^{-6} pour une transition assistée par l'effet Stark). D'autre part, il existe une pléthore d'effets systématiques susceptibles d'imiter la signature recherchée. Contrairement aux expériences de spectroscopie haute résolution où l'origine des effets est souvent prévisible (effet Zeeman ou Stark, décalage Doppler), les effets systématiques dans les expériences PV résultent parfois de la combinaison d'imperfections électriques, magnétiques, géométriques ou optiques jusqu'alors insoupçonnées. Il est donc indispensable que plusieurs expériences indépendantes soient effectuées sur le même système afin de donner confiance dans le résultat final. Dans les expériences de type interférence Stark, la quantité mesurée est E_1^{PV}/β , β étant la polarisabilité vectorielle de la transition. En 1982 et 1983, l'équipe Bouchiat avait réalisé une première détermination de ce rapport avec une incertitude globale finale de 12% [43, 44, 45]. Il s'agissait d'une étude de la transition 6S-7S à 539,4 nm excitée dans une vapeur de Cs par un faisceau laser de polarisation circulaire en présence d'un champ électrique transverse. Le signal détecté était la polarisation de la fluorescence émise sur la transition 7S-6P_{1/2} à 1,36 μm (figure 3.1). L'effet PV est impair sous renversement de l'hélicité de la lumière incidente ainsi que sous inversion du signe du champ électrique. L'incertitude expérimentale de 12 % d'origine statistique était limitée par l'efficacité de détection des photons émis par désexcitation radiative du niveau 7S (5×10^{-4}) compte tenu de la nécessité de filtrer une seule composante de structure fine et d'analyser sa polarisation. En 1985, l'équipe a proposé une nouvelle méthode expérimentale dans le but de faire une mesure au niveau du pour cent, c'est à dire avec une certitude expérimentale comparable à celle des calculs atomiques.

3.2 La deuxième expérience de l'ENS et ma participation

L'idée de base de ce nouveau projet était d'augmenter de trois ordres de grandeur l'efficacité de détection en utilisant une méthode basée sur l'émission stimulée [46].

Pour ce faire, un second faisceau laser (sonde), superposé au faisceau excitateur est accordé sur une composante hyperfine de la transition 7S-6P_{3/2} à 1,47 μm . L'expérience emploie des impulsions laser. Une impulsion du laser vert (15 ns) de polarisation linéaire excite la transition 6S-7S en présence d'un champ électrique longitudinal. Des impulsions sonde, de durée 20 ns, sont envoyées d'abord 6 ns après celle du faisceau excitateur, puis, 1 ms plus tard lorsque il n'y a plus d'atomes 7S excités. La polarisation linéaire des impulsions sonde est analysée grâce à un polarimètre à double voie fonctionnant en mode équilibré. La différence des signaux associés à ces impulsions ainsi qu'au basculement du champ électrique permet d'extraire l'asymétrie liée à l'effet PV. Le principe de cette expérience est très différent de celui de la première expérience réalisée par la même équipe. Il est aussi très différent de celui du projet de Wieman à Boulder qui emploie un faisceau excitateur continu très intense et de polarisation circulaire pour peupler l'état 7S dans un jet pompé optiquement, placé en champs électriques et magnétiques transverses croisés. L'observable est alors la différence de population dans l'état initial causée par le renversement de polarisation du faisceau excitateur ou bien du signe des champs électrique et magnétique (voir [48] pour une description très complète de cette expérience).

C'est à la seconde expérience parisienne que j'ai participé de mars 1993 à février 1995. Ma contribution concernait l'étude d'un effet lié à la présence des dimères Cs₂ dans la vapeur qui

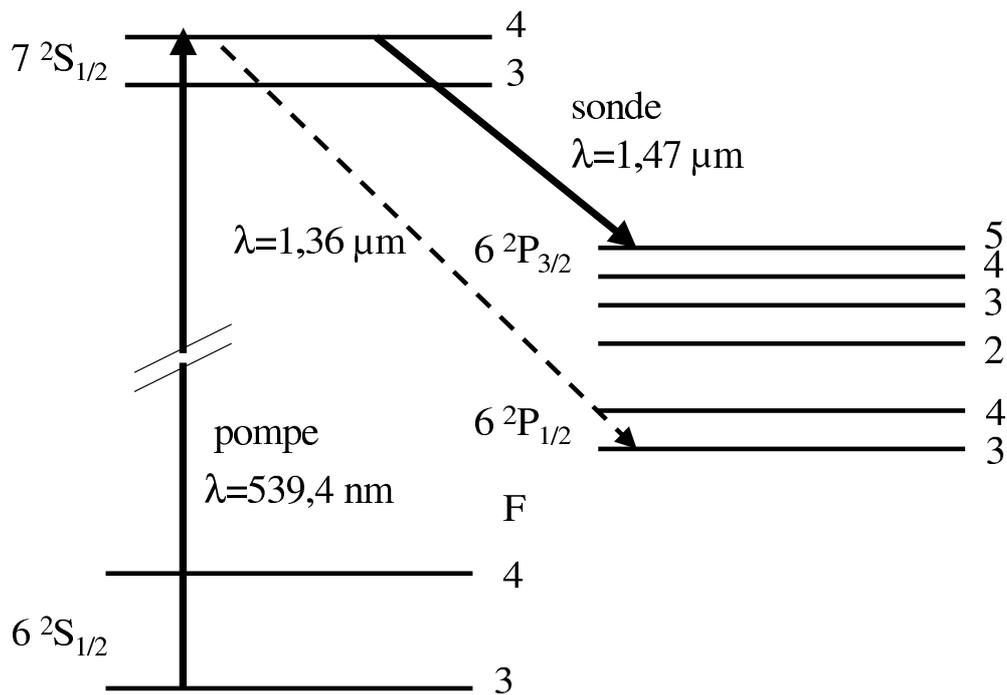


FIG. 3.1 – Schéma des transitions impliquées dans les expériences de mesure de la violation de la parité à l'ENS, Paris. Le laser pompe excite une composante hyperfine de la transition M1 interdite $6S-7S$. La détection dans la première expérience [43, 44, 45] employait la fluorescence totale à $1,36\ \mu\text{m}$ tandis que dans la seconde [47] l'émission stimulée sur une seule composante hyperfine à $1,47\ \mu\text{m}$ est utilisée.

perturbait la carte du champ électrique appliqué et pouvait contribuer à l'apparition d'un effet systématique. Le faisceau exciteur dissocie une fraction des molécules produisant des atomes dans l'état excité 5D. Ceux-ci sont ionisés par un second photon à 539,4 nm. La séparation des charges sous l'effet du champ électrique longitudinal donne lieu à un champ électrique de même symétrie que celle de faisceau exciteur (symétrie radiale). Si les deux faisceaux, exciteur et sonde, sont parfaitement superposés, l'effet moyen du champ électrique radial est nul. Toutefois, s'il subsiste un léger décalage des deux faisceaux, il se produit, *en présence d'un champ magnétique transverse*, un signal imitant la signature de l'effet PV recherché. Des expériences de polarimétrie en mode pulsé permettent de mettre en évidence la distribution du champ électrique radial. Ma contribution à l'expérience concernait la mesure et le contrôle des positions des faisceaux laser, M. Lintz étant responsable de la compensation des champs magnétiques. La compréhension des effets systématiques associés au champ magnétique transverse nous a amenés à conduire en parallèle une étude approfondie des effets magnéto-optiques dans un champ magnétique longitudinal sur un système à trois niveaux (les états 6S, 7S et 6P_{3/2} du Cs) [49]. Ici, la possibilité de varier la polarisation ainsi que le délai entre impulsions pompe et sonde nous a permis d'élucider les phénomènes mis en jeu. Il s'est ensuivi une étude du même système en présence d'un champ magnétique transverse, approfondi par la suite dans le cadre de la thèse de D. Chauvat [50]. De plus, les techniques de déplacement et de contrôle des positions des faisceaux ont permis d'étudier des effets géométriques liés au polarimètre et d'augmenter par conséquent son exactitude [51, 52]. L'idée mise en œuvre s'est révélée très fructueuse. Elle consiste à insérer juste avant le polarimètre, une lame $\lambda/2$ qui a pour effet de réaliser sur la polarisation du faisceau sonde à analyser une symétrie entre les états de polarisation détectés dans chaque voie. Dans cette opération, le déséquilibre du polarimètre lié à la polarisation change de signe tandis qu'un faux déséquilibre d'origine géométrique, causé par un changement d'incidence ou de position ou encore par des parasites électriques ne change pas. Enfin, une méthode pour amplifier l'angle de rotation de polarisation du faisceau sonde provoqué par la violation de parité a été proposée et testée [53]. L'ensemble du montage expérimental tel qu'il était à cette époque est décrit dans l'article [54] joint en annexe.

3.3 Conclusion

Compte tenu d'autres difficultés liées aux cellules à Cs placées dans un champ électrique longitudinal de 2 kV/cm sur 8 cm, une première mesure PV avec ce montage n'a pu avoir lieu que très récemment [47]. L'incertitude actuelle (juin 03) est de 7,5 %. Le problème du champ électrique radial lié aux dimères Cs₂ a pu être très réduit par l'emploi des cellules en saphir ou en alumine, surchauffées pour dissocier les molécules. Toutefois, les positions des faisceaux sont toujours stabilisées pour minimiser l'effet résiduel ainsi que d'autres effets gênants dépendant du centrage des deux faisceaux dans la cellule. De plus, les améliorations apportées à la méthode polarimétrique analysant un faisceau impulsionnel se sont confirmées comme étant tout à fait fructueuses : il est dorénavant possible de détecter, par cette méthode, des changements de direction de la polarisation aussi faibles que 10⁻⁷ rad en utilisant le fait qu'ils sont corrélés avec le basculement d'un paramètre de l'expérience, ici le sens du champ électrique. Signalons que, dans l'intervalle, l'équipe de Boulder a publié un résultat avec une incertitude statistique de 0,35 % ([48, 55, 56]), les calculs de physique atomique permettant une détermination de Q_W au niveau de 0,5 à 1 % [57]. Toutefois, étant donné l'extrême difficulté de ce type d'expérience et l'importance du résultat, un contrôle

indépendant de la valeur expérimentale demeure indispensable. Avec des améliorations simples pour augmenter le rapport signal sur bruit, l'emploi de meilleures cellules pour mieux prévenir des effets systématiques et l'acquisition de plus de données, l'équipe parisienne pense atteindre une incertitude expérimentale voisine de 1 % [58].

Chapitre 4

Spectroscopie à deux photons de l'atome de rubidium

Lors de mon arrivée dans l'équipe "longueurs" au BNM-INM, j'ai eu l'occasion de travailler avec Saïda Guellati sur la réalisation d'un piège magnéto-optique de Rb. En tant que responsable du projet, celle-ci a encadré la thèse d'Emmanuel Frétel [59]. De mon côté, outre la réalisation de différentes parties du montage expérimental (laser repompeur, optique de détection à 420 nm), j'ai encadré le stage de Stéphane Guérandel traitant de la spectroscopie en cellule [60]. L'idée initiale de P. Juncar était de faire des expériences de spectroscopie à deux photons des transitions liant l'état fondamental à des niveaux de Rydberg. Il s'agissait alors de transposer aux atomes froids les travaux à Boulder de Lee, Helmke et Hall [61], effectuées par franges de Ramsey sur un jet thermique où des largeurs de raies aussi faibles que 17 kHz avaient été obtenues. Pour la partie spectroscopique, l'équipe disposait *a priori* d'un laser à colorant de très grande pureté spectrale (fluctuations de fréquence de quelques kilohertz sur une seconde). En pratique, la remise en route de celui-ci s'avérait longue et pénible (voir section 6.1.5). Aussi, une fois le piège magnéto-optique réalisé, nos études se sont dirigées plutôt vers l'utilisation de sources diodes laser, plus faciles d'emploi. Suite à des travaux de l'équipe de Biraben [62], notre collègue Yves Millerieux avait déjà réalisé en collaboration avec le BNM-LPTF un étalon de fréquence basée sur les transitions 5S-5D vers 778 nm (385 THz) (figure 4.1).

Outre la commodité de la source optique, la probabilité d'excitation à deux photons pour une intensité laser donnée est relativement élevée, du fait du faible désaccord entre la fréquence du photon et le niveau relai $5p\ ^2P_{3/2}$. Ainsi, on peut obtenir un signal observable avec seulement 5 mW. La cellule est chauffée à environ 50 °C et la détection de la transition se fait via la fluorescence 6P-5S à 420 nm. Le travail de stage de S. Guérandel a permis de réaliser deux montages de cellule ainsi que l'optique de détection (photomultiplicateur et filtre interférentiel). L'un des montages a servi par la suite à faciliter l'observation de la transition sur les atomes piégés [66]. Les travaux en cellule ont été repris par S. Guellati dans le cadre du mémoire d'ingénieur Cnam de Didier Chagniot [67]. En revanche, les travaux de spectroscopie à deux photons sur les atomes froids n'ont pas été poursuivis. D'abord, la résolution obtenue en cellule (largeur à mi-hauteur 500 kHz à la fréquence d'un photon), n'est déjà pas loin de la largeur naturelle de la transition (300 kHz). En revanche, il a été mis en évidence au BNM-LPTF des déplacements collisionnels de la transition excitée dans une cellule [68]. Ces décalages fréquentiels sont attribués aux impuretés dont la contribution varie d'une cellule à l'autre. L'utilisation d'un piège magnéto-optique permettrait d'éviter cet effet mais

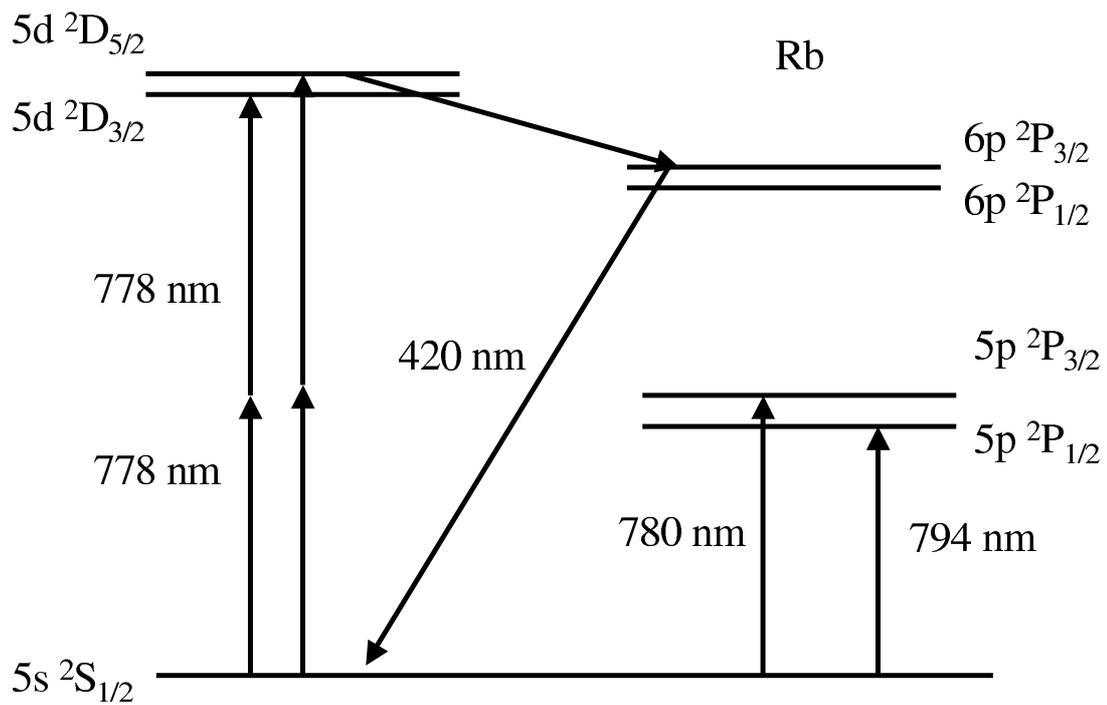


FIG. 4.1 – Schéma partiel des niveaux d'énergie de l'atome de Rb. Le refroidissement laser se fait à l'aide de la raie à 780 nm. Pour clarté, la structure hyperfine a été omise. La résonance à deux photons de 778 nm, détectée via la fluorescence à 420 nm, a été étudiée dans des cellules pour faciliter la mesure de la constante de Rydberg dans l'hydrogène [62, 63] ainsi que pour les télécommunications [64]. Son taux de transition pour une intensité laser donnée est relativement élevé, du fait de la proximité du niveau relais $5p\ ^2P_{3/2}$. Elle a été observée avec des atomes froids à l'aide d'un laser pulsé par l'équipe de Strathclyde [65] et au BNM-INM, avec une source laser continue [66, 59].

le nombre d'atomes interrogés est faible et l'intensité lumière élevée provoque un déplacement lumineux plus grand que celui des montages en cellule [59]. Le faible gain en résolution et peut-être en exactitude ne semblait pas justifier l'emploi d'un montage beaucoup plus complexe. Une solution plus simple serait l'emploi d'un jet atomique thermique. Une étude spectroscopique à deux photons des états plus élevés à l'aide du laser à colorant aurait pu mener à terme à l'obtention des résonances plus étroites. Toutefois, compte tenu de l'importance de l'effet Stark continu sur les états de Rydberg, l'équipe a préféré étudier un autre système plus susceptible de réaliser un étalon du futur, à savoir l'atome d'argent. Le montage du piège magnéto-optique sert actuellement dans une expérience au Laboratoire Kastler Brossel, Jussieu, pour déterminer le rapport h/M_{Rb} et ainsi une valeur de la constante de structure fine α [69]. En somme, on peut considérer que le projet du BNM-INM a permis d'acquérir des connaissances de travail avec des atomes froids. Néanmoins, comme il le sera décrit dans le chapitre 6, l'étude de l'argent atomique refroidi devra relever bien plus de défis.

Chapitre 5

Des horloges optiques : quel système faudrait-il choisir ?

Dans la suite de ce document, nous présenterons une expérience pour réaliser une horloge optique basée sur une transition ultra-fine de l'atome d'argent. Ce projet, démarré en septembre 1996, constitue la majeure partie du travail effectué dans le cadre de ma recherche au BNM-INM. Dans ce chapitre, nous avancerons des arguments pour le développement d'une horloge plus performante que les meilleures existantes. Un survol des candidats pour un étalon de fréquence optique permettra de justifier le choix de l'argent atomique. Le chapitre 6 sera consacré à l'élaboration du projet expérimental et aux résultats d'ores et déjà obtenus.

5.1 Pourquoi développer une horloge optique ?

L'unité de temps du Système International (S.I.), la seconde, est actuellement définie via la transition micro-onde entre les niveaux hyperfins de l'état fondamental du ^{133}Cs , la fréquence de résonance étant 9 192 661 770 Hz. La stabilité d'une horloge est directement liée au facteur de qualité Q de la résonance, c'est-à-dire le rapport de la fréquence à la largeur à mi-hauteur de la courbe. Concrètement, pour un rapport signal sur bruit S/B obtenu dans un temps d'intégration T , la variance d'Allan d'un oscillateur $\sigma_y(\tau)$ après un temps τ est donnée par

$$\sigma_y(\tau) = A \frac{1}{Q} \frac{1}{S/B} \sqrt{\frac{T}{\tau}} \quad (5.1)$$

où la constante A dépend de la forme de la courbe de résonance [70]. Dans la meilleure horloge à Cs actuelle (la fontaine du BNM-SYRTE) [71], la largeur de raie avoisine 1 Hz, ce qui correspond à $Q \simeq 10^{10}$. Si l'on était capable d'interroger une transition optique avec une largeur de raie et rapport signal sur bruit comparables, on pourrait augmenter la stabilité d'un facteur $5 \cdot 10^4$. Une meilleure stabilité permettrait un test plus probant des effets systématiques et, ainsi, la réalisation d'une horloge plus exacte. Une telle horloge permettrait d'améliorer la définition de la seconde et aurait des retombées dans les domaines de physique fondamentale (variation possible des constantes) et appliquée (systèmes de navigation). De nombreux projets sont en cours dans différents laboratoires où les candidats explorés sont des molécules, des atomes refroidis par laser

TAB. 5.1 – Quelques étalons de fréquence optique basées sur des transitions moléculaires. Pour le laser HeNe à 633nm, l'incertitude recommandée est environ 4 fois supérieure à celle provenant de la mesure par Acef et coll. [76].

Molécule	Source laser	ν (THz)	λ	stabilité relative	exactitude relative	Référence
OsO ₄	CO ₂	29	10,2 μm	$3 \cdot 10^{-14}/\sqrt{\tau}$	qq Hz	[77]
CH ₄	HeNe	88,4	3,39 μm		$3 \cdot 10^{-12}$	[78]
C ₂ H ₂	Diode	192	1,56 μm	$5 \cdot 10^{-13}$ à 2 s	10^{-9}	[79, 80]
I ₂	HeNe	473	632,8	$2 \cdot 10^{-13}$ à 1000 s	5,1 kHz= $1,1 \cdot 10^{-11}$	[81], [76]
I ₂	Nd :YAG $\times 2$	563	532 nm		5,2 kHz= $9 \cdot 10^{-12}$	[82]
I ₂	Ar ⁺	583	514,5 nm			[83]
I ₂	Ar ⁺	598	501,7 nm			[83]
Te ₂	Colorant	617	486 nm		0,6 MHz	[84]

ou bien des ions uniques piégés. Un bon résumé de l'état des expériences récentes se trouve dans [72] et [73].

5.2 Molécule, ion ou atome ?

Il y a plusieurs candidats pour des étalons de fréquence optiques. Ici est présenté un résumé d'une conférence invitée sur ce sujet où j'ai comparé molécules, ions et atomes [74]. Des lecteurs anglophones souhaiteraient éventuellement consulter un article de revue traitant des mêmes thèmes [75].

5.2.1 Molécules

Des étalons de fréquence basés sur des transitions moléculaires profitent de la tension de vapeur élevée de ces espèces autour de la température ambiante ainsi que des faibles déplacements Stark et Zeeman. Les inconvénients sont la faible force d'oscillateur des raies et des déplacements collisionnels de fréquences dépendant de la température. Le tableau 5.1 en montre quelques exemples parmi les plus importants.

5.2.1.1 Molécules polyatomiques

Dans le domaine des molécules, les systèmes polyatomiques sont étudiés avec des lasers à gaz fonctionnant dans l'IR. Avant le développement des peignes de fréquence [41], les lasers CO₂ et HeNe (88,4 THz), asservis sur des transitions moléculaires ont servi de lien pour raccorder des fréquences optiques à celle de l'horloge à Cs. En particulier, des lasers à CO₂ vers 29 THz sont employés pour exciter les molécules de OsO₄ et SF₆. Ici, les largeurs naturelles des transitions sont inférieures au hertz et c'est l'élargissement par temps de transit, en jet ou en cellule, qui domine la largeur de la résonance. Par exemple, le facteur de qualité est environ 7×10^{10} pour des transitions à deux photons de la molécule SF₆ [85]. Pour le laser asservi sur la molécule OsO₄, la déviation d'Allan relative obtenue par l'équipe de Chardonnet à Villetaneuse est $3 \cdot 10^{-14}/\sqrt{\tau}$ [86] et l'exactitude mieux que 10 Hz.

Une autre molécule importante est le méthane qui peut-être excité par un laser HeNe à 88,4 THz. L'exactitude des meilleures sources (structure hyperfine résolue) était déjà meilleure que 3×10^{-12} en 1999 [78] et sera peut-être augmentée grâce à l'emploi des peignes femtoseconde. Ce laser a été employé dans la mesure de la vitesse de la lumière qui a conduit à la définition du mètre en 1983 [87]. Il a également servi en tant qu'élément de chaîne de fréquence dans des expériences sur l'hydrogène atomique et sur l'ion $^{115}\text{In}^+$, à Garching et à Paris, pour déterminer la constante de Rydberg (chapitre 2.3). Signalons que d'autres molécules polyatomiques sont exploitées pour des tests de physique fondamentale, notamment la violation de la parité [88]. Il s'agit là de détecter une différence de fréquence d'absorption entre énantiomères de la molécule CHFClBr. Ces expériences sont complémentaires de celles entreprises depuis de longues années sur des systèmes atomiques (voir Ch 3).

Dans le domaine du proche IR, la molécule d'acétylène (C_2H_2) présente un intérêt particulier pour les télécommunications. La deuxième harmonique de sa raie d'absorption à $\lambda = 1,556 \mu\text{m}$ a une coïncidence avec la transition à deux photons de 778 nm dans le Rb [62] (chapitre 4), ce qui facilite une détermination de sa fréquence [89]. Parmi les équipes ayant développé des étalons basés sur le C_2H_2 , citons celles de Nakagawa (ElectroCommunications University, Chofu, Japon) [79], et de Têtu (Université de Laval, Québec) [64].

5.2.1.2 Molécules diatomiques

La molécule diatomique la plus étudiée est l'iode ($^{127}\text{I}_2$) qui possède de nombreuses résonances dont les fréquences coïncident avec des raies des lasers à gaz (HeNe à 640, 633, 612 et 543 nm, Ar^+ à 514,5 et 501 nm). Dans le cas du laser à argon ionisé, les sources sont coûteuses, encombrantes et non sans danger. Plus récemment, la disponibilité des sources à laser solide pompé par diode laser a renouvelé l'intérêt en cette molécule. Le laser à Nd :YAG doublé en fréquence à 532 nm permet d'accéder à des transitions de largeur naturelle de l'ordre de 100 kHz. Dans ce travail, il faut tenir compte du déplacement dû à des collisions entre molécules d'iode, qui varie avec la température du point froid de la cellule ($500 \text{ Hz}/^\circ\text{C}$). L'exactitude semble toutefois être limitée au niveau de quelques kilohertz par le déplacement fréquentiel associé aux collisions avec des impuretés dans les cellules scellées. Autrement dit, même si l'on arrivait à une stabilisation thermique au millième de degré près, la pureté des cellules poserait encore un problème.

D'autres sources, actuellement en cours de réalisation, telles que le laser Yb :YAG permettent de générer 510 nm et sonder des transitions plus fines (largeur 10 kHz). Comme nous le verrons plus tard, le projet sur l'atome d'argent tire profit de ce type de laser (en l'occurrence Nd :YLF) pour fournir les rayonnements nécessaires au refroidissement laser ainsi qu'à l'excitation de la transition d'horloge. En tout cas, les sources lasers solides pompées par diode laser permettent de réaliser des étalons de fréquence compacts et transportables basés sur des molécules en cellules. Si les déplacements collisionnels étaient mieux maîtrisés, ces systèmes fourniraient des exactitudes comparables avec des horloges à Cs à jet et de meilleure stabilité à court terme ($< 10 \text{ s}$).

Le spectre de l'iode moléculaire n'allant pas au-delà de 501 nm, d'autres molécules sont employées comme références à des fréquences plus élevées. En particulier, la molécule $^{130}\text{Te}_2$ dont les raies près de 486 nm ont servi pour étalonner des mesures de fréquences dans l'hydrogène [4, 5, 6] et le positronium [84].

Notons finalement que des fréquences de transitions moléculaires sont calculables à partir d'un certain nombre de paramètres [90]. Ainsi, quelques mesures de grande exactitude permettent

d'améliorer la connaissance de tout le spectre. Par exemple, la mesure de la fréquence de quelques raies à 10 kHz près, telles les transitions à 780 et 778 nm dans le Rb, permet de prédire les fréquences de toutes les raies de l'iode dans cette plage à un niveau de ≤ 150 kHz. Notre projet sur l'atome d'argent a déjà profité de la disponibilité (sous forme d'un logiciel *IodineSpec* de chez TuI Optics devenu TOPTICA) d'un meilleur atlas [91] que celui du Laboratoire Aimé Cotton [92] pour affiner la fréquence de la raie à 547,7 THz [93]. À terme, la mesure de la fréquence de la transition d'horloge grâce à un peigne femtoseconde [41] permettra d'améliorer la valeur des fréquences d'absorption dans l'iode aux alentours de 453 THz. En fait, il semble que le plus utile serait la mesure d'un nombre de fréquences avec une exactitude plutôt du mégahertz dans les régions 514 à 532 nm et 666 à 780 nm. Ceci permettrait de réduire l'incertitude de l'atlas de 30 MHz à 1 MHz [94] sur ces plages.

Nous venons de voir que ces systèmes fourniront des étalons de fréquences comparables à certaines horloges à Cs actuelles mais pas une nouvelle définition de la seconde, du fait de la difficulté de ralentir et piéger des molécules. Il y a déjà eu des appareils pour ralentir des molécules polaires [95] et certaines espèces ont déjà été piégées grâce à l'emploi de moyens lourds, notamment dans un piège magnétique [96]. Quant aux ions moléculaires, on peut les piéger grâce à leur charge électronique, mais les refroidir à l'aide d'un ion atomique dans le même piège est bien plus difficile. Compte tenu de la difficulté actuelle de piéger et refroidir des molécules, les projets d'horloge visant une exactitude meilleure que 10^{-15} concernent plutôt des ions piégés et des atomes refroidis.

5.2.2 Des ions piégés

Nous présenterons quelques avantages des ions avant d'aborder les différents candidats pour une horloge optique. Précisons qu'il s'agit des ions atomiques positifs, simplement ionisés. Les ions négatifs n'ont souvent qu'un seul état lié. Les ions positifs doublement ionisés ont des transitions dans l'UV lointain, difficiles d'accès avec des sources laser. Les ions moléculaires se prêtent mal au refroidissement laser du fait de l'absence de transitions fermées.

5.2.2.1 Généralités

Un ion unique piégé est depuis longtemps considéré comme l'étalon de fréquence idéal [97]. D'une part, il est possible de le piéger pendant des temps très longs (des heures voire plus). D'autre part, les effets systématiques peuvent être réduits en principe au niveau de 10^{-18} . Il s'agit là de minimiser l'effet Stark et Zeeman, les déplacements collisionnels (vide poussé $<10^{-9}$ mbar ou 10^{-12} hPa) ainsi que l'effet Doppler du second ordre (refroidissement laser). Les ions étaient d'abord étudiés pour des transitions radio-fréquences notamment le $^{199}\text{Hg}^+$ (40,5 GHz). Par la suite, l'amélioration de la pureté spectrale des sources laser a permis d'interroger des transitions optiques ultra-fines dans les mêmes systèmes. La détection de la transition d'horloge se fait en général par la méthode des sauts quantiques. L'ion est refroidi sur une transition permise et l'on détecte les photons diffusés. L'excitation de la transition d'horloge se manifeste alors par l'absence de fluorescence car, une fois dans l'état métastable, l'ion n'est plus couplé au laser de refroidissement. Lorsque le niveau métastable se désexcite, la fluorescence sur la transition permise réapparaît. Cette méthode peut être également appliquée à des ensembles d'ions ou d'atomes pour détecter une transition vers un état de longue durée de vie. Dans ce cas, l'intensité de fluorescence

sera réduite mais pas forcément éteinte. Le tableau 5.2 contient un résumé des transitions d'horloge optiques étudiées dans les ions.

L'ion mercure Étudié depuis de longues années par l'équipe du NIST, Boulder, l'ion mercure $^{199}\text{Hg}^+$ détient le record mondial pour la résonance optique la plus fine jamais observée (5 Hz) [98]. Il s'agit de la transition quadripolaire électrique à 282 nm entre l'état fondamental $5d^{10}6s^2\text{S}_{1/2}$ et l'état métastable $5d^96s^2\text{D}_{5/2}$ qui n'est pas sans rappeler celle de l'atome d'argent (voir section 5.2.5 ci-dessous). La largeur naturelle est inférieure au hertz. La source excitatrice, un laser à colorant à 560 nm doublé en fréquence, a une pureté spectrale remarquable (fluctuations $< 0,2$ Hz sur 30 s) [108]. Toutefois, cet ion n'est pas favorisé sur tous les plans car le montage expérimental est très complexe. Le refroidissement laser de l'ion requiert du rayonnement à 194 nm, longueur d'onde difficile à synthétiser. De plus, pour éviter des collisions avec la vapeur de mercure, un environnement cryogénique est nécessaire. L'effet systématique principal (un décalage de l'ordre du hertz) concerne l'effet Stark dû à l'interaction du moment quadripolaire atomique avec le gradient de champ électrique intrinsèque au piège de Paul. Il est proposé d'éliminer cette contribution en moyennant des mesures effectuées successivement en présence de trois champs magnétiques orthogonaux.

L'ion barium La fréquence de la transition $5d\text{ }^2\text{D}_{3/2} \rightarrow 5d\text{ }^2\text{D}_{5/2}$ vers 24 THz dans l'ion ^{138}Ba a déjà été mesurée en 1993 par l'équipe du NRC-CNRC [100]. Cette mesure représentait à l'époque la détermination la plus exacte d'une fréquence de transition optique dans un ion unique confiné. Aujourd'hui, l'ion n'est plus étudié pour réaliser un étalon de fréquence optique, du fait du facteur de qualité plus intéressant que présentent des transitions dans d'autres espèces. Signalons toutefois l'existence d'un projet de violation de la parité en cours dans l'équipe de Fortson (U. Washington, Seattle) [109].

L'ion strontium Du fait des sources laser plus commodes (diodes lasers), l'ion strontium est étudié dans deux laboratoires (NPL, Teddington et NRC-CNRC, Ottawa). La largeur naturelle de la transition d'horloge $5s\text{ }^2\text{S}_{1/2} - 4d\text{ }^2\text{D}_{5/2}$ à 674 nm (445 THz) est inférieure au hertz. La résolution expérimentale actuelle est limitée par la stabilité du laser excitateur. Il y a eu des mesures de fréquences par les deux équipes pour l'ion $^{88}\text{Sr}^+$ qui exhibe une structure Zeeman [110]. L'équipe du NPL a deux pièges de cet ion, un fait très utile pour caractériser des effets systématiques. L'autre isotope $^{87}\text{Sr}^+$ permet d'éviter le déplacement Zeeman du premier ordre mais son étude est plus délicate. Des travaux à ce sujet sont poursuivis au NPL.

L'ion ytterbium L'ion $^{171}\text{Yb}^+$ possède trois transitions d'horloge : quadripolaire électrique à 411, 435 et octupolaire à 467 nm. Il est étudié dans trois laboratoires (PTB, Braunschweig 411, 435 nm, Université de Kyoto 411 nm, NPL 467 et 411 nm). Cet ion permet de s'affranchir de l'effet Zeeman du premier ordre. L'intérêt de la raie à 467 nm concerne sa largeur naturelle, la durée de vie de l'état excité ayant été estimée à quelques années [102]. La largeur de la résonance sera toujours limitée par celle du laser. Interroger cette transition n'est toutefois pas simple du fait du nombre de lasers nécessaires : 369 nm pour refroidir puis 935 et 638 nm respectivement pour pomper les ions excités vers les niveaux métastables $^2\text{D}_{3/2}$ et $^2\text{F}_{7/2}$. Néanmoins, il est *a priori*

TAB. 5.2 – Etalons de fréquence optiques basés sur un ion unique piégé. A l'exception du Ba⁺, des études se poursuivent sur tous ces candidats. Les indices désignent les longueur d'onde et fréquence d'horloge ainsi que les rayonnements requis pour le refroidissement laser.

Ion	Transn d'horloge	ν_{hor} (THz)	λ_{hor} (nm)	$\lambda_{refr.}$ (nm)	Stabilité	Exactitude	Référence
¹⁹⁹ Hg ⁺	5d ¹⁰ 6s ² S _{1/2} - 5d ⁹ 6s ² ² D _{5/2}	1064	282	194		1.10 ⁻¹⁴ = 11 Hz	[98]
⁸⁸ Sr ⁺	5s ² S _{1/2} -4d ² D _{5/2}	445	674	422+1092	3.10 ⁻¹² /√τ ≤ 100 s	2.2.10 ⁻¹³ =100 Hz	[99]
¹³⁸ Ba ⁺	5d ² D _{3/2} - 5d ² D _{5/2}	24	12,48 μm	493+650	3.10 ⁻¹² /√τ ≤ 1 s	4.10 ⁻¹¹ =1 kHz	[100]
¹⁷² Yb ⁺	6s ² S _{1/2} - 5d ² D _{5/2}	729	411	369+935		5.5.10 ⁻¹⁰ =0,4 MHz	[101, 102]
¹⁷¹ Yb ⁺	6s ² S _{1/2} - 5d ² D _{3/2}	690	435	369 + 935	4.10 ⁻¹⁵ /√τ	6 Hz	[103]
¹⁷² Yb ⁺	6s ² S _{1/2} - 4f ² F _{7/2}	642	467	369 + 935		1,1.10 ⁻⁹ =0,7 MHz	[102]
¹⁷¹ Yb ⁺	6s ² S _{1/2} - 4f ² F _{7/2}	642	467	369 + 935		3,6.10 ⁻¹³ = 230 Hz	[104]
¹¹⁵ In ⁺	5s ² 1S ₀ - 5s5p ³ P ₀	1267	236,5	230	1.10 ⁻¹⁵ /√τ ≤ 1 s	2.10 ⁻¹³ =230 Hz	[105]
⁴³ Ca ⁺	4s ² S _{1/2} - 3d ² D _{3/2}	411	729	397+866	-	-	[106, 107]

possible de réduire les effets systématiques (Zeeman et Stark alternatif) au niveau du 10^{-18} [111] et ce système reste l'un des plus intéressants dans les années à venir.

L'ion indium Cet ion a l'avantage de posséder une transition entre des états avec $J = 0$, libre du moment quadripolaire et donc l'effet Stark associé. De plus, la fréquence de la transition d'horloge vers $\lambda=237$ nm (largeur naturelle inférieure au hertz) correspond à la quatrième harmonique de celle du laser Nd :YAG à 946 nm, source intrinsèquement très stable (largeur du laser <4 Hz pour un temps d'intégration de 26 s.). Du coup, des résonances très fines ont déjà été observées dans ce système par l'équipe de Walther (MPQ, Garching) et une mesure de la fréquence effectuée [105]. Quant aux inconvénients, les sources laser pour refroidir l'ion sont à 230,6 nm et l'effet Zeeman quadratique (< 1 kHz/G²=100 mHz/(μ T)²) est plus important, par exemple, que pour la raie à 467 nm dans l'ion $^{171}\text{Yb}^+$ (-1,9 mHz/(μ T)²) [112]. C'est à mon avis l'un des candidats les plus intéressants, surtout si l'on parvient à trouver un laser solide pour le refroidissement.

L'ion calcium Cet ion est le seul étudié en France, étudié d'abord au LHA, Orsay [106] et actuellement par l'équipe de F. Vedel à Marseille [107]. L'intérêt de cet ion réside dans la commodité des sources laser nécessaires pour le refroidissement (397 nm plus repompeur à 866 nm) et la transition d'horloge (729 nm). Le facteur de qualité de cette dernière est de 10^{15} . Puisque seul l'isotope rare $^{43}\text{Ca}^+$ (abondance naturelle 0,14 %) avec ($I = 7/2$) possède une transition entre des états avec $m_F = 0$, les travaux se poursuivent pour l'instant sur l'isotope ^{40}Ca ($I = 0$), le plus abondant. Des sauts quantiques ont été observés mais il demeure les questions d'une part de refroidir suffisamment l'ion pour s'affranchir des effets Doppler et d'autre part de stabiliser davantage la fréquence du laser d'horloge.

5.2.2.2 Ions *versus* atomes

Les ions fourniront sans doute des horloges d'une grande exactitude, dépassant à terme celle des meilleures horloges à micro-ondes actuelles. Toutefois, le fait de n'avoir qu'un seul ion implique des temps d'intégration très longs pour obtenir une stabilité suffisante et tester ainsi des effets systématiques au même niveau. L'avantage des atomes est que l'on puisse en piéger et en refroidir un grand nombre ($N_{at} \simeq 10^6$ à 10^8). Dans le cas où la stabilité de l'horloge est limitée par le bruit de projection quantique [71, 113], elle est proportionnelle à $1/\sqrt{N_{at}}$. Ainsi, pour une résonance expérimentale de largeur comparable, un échantillon d'atomes fournirait une stabilité mille fois meilleure que celle d'un ion unique pour un même temps d'intégration. En contrepartie, l'exactitude dépend des collisions entre atomes. De plus, puisqu'un ion unique est bien localisé dans l'espace (volume $\simeq 1 \mu\text{m}^3$ dans le régime Lamb-Dicke), des gradients de champ magnétique sont moins gênants que dans les cas des atomes occupant un volume de taille $\simeq 1 \text{mm}^3$. Pour inhiber les collisions, Katori a suggéré d'employer un réseau optique "magique" pour confiner les atomes [114]. Afin de s'en servir comme étalon de fréquence, il faudra alors compenser le déplacement lumineux induit par la lumière du réseau. Ceci pourrait se faire par un choix astucieux de la fréquence du laser créant le réseau, de telle sorte que le déplacement soit le même pour les deux niveaux de la transition d'horloge. Katori effectue actuellement de telles expériences sur l'atome de strontium [115, 116] (voir aussi section 5.2.4).

5.2.3 Les atomes candidats à une horloge optique

Des transitions atomiques sont depuis longtemps étudiées pour fournir des étalons permettant de définir le Mètre [78]. Il s'agissait, au début, de la mesure de la longueur d'onde dans le vide et dans l'air. Depuis une quinzaine d'années, le développement du refroidissement laser a permis de songer à l'obtention des résonances optiques aussi étroites que celles observées avec les ions piégés [117]. Plus récemment, la réalisation des peignes femtosecondes a facilité la mesure de fréquences des transitions dans tout le domaine du visible, tant pour des atomes que pour des ions [41]. Ainsi, il ne s'agit plus de trouver des raies avec des coïncidences permettant de fabriquer une chaîne de fréquences mais plutôt de déceler le meilleur système en terme de stabilité et exactitude. Puisque les atomes alcalins, faciles à refroidir par laser, ne possèdent pas de transition étroite, l'attention des chercheurs s'est tournée vers d'autres systèmes ayant des raies fines mais parfois plus difficiles à refroidir. Les études portent essentiellement ou bien sur des transitions à un photon dans des alcalino-terreux (Ca, Mg, Sr) ¹ et la terre rare Yb ou bien sur les transitions à deux photons dans l'hydrogène, le xénon métastable ou l'argent. Nous verrons qu'il ne s'agit pas toujours de la recherche de la transition la plus étroite mais d'un compromis entre la largeur de raie, le rapport signal sur bruit et la maîtrise des grandeurs d'influence. (Par exemple, si la largeur naturelle de la raie est bien inférieure à celle du laser, la forte intensité laser requise pour l'observation de la transition donne lieu à un déplacement lumineux non-négligeable). Avant de présenter l'atome d'argent, nous passerons en revue les autres candidats actuellement à l'étude (tableau 5.3).

5.2.4 Systèmes possédant des transitions à un photon

Dans les alcalino-terreux et l'ytterbium, il existe des raies intercombinaisons étroites. Celles-ci sont employées comme transition d'horloge et souvent pour refroidir davantage les atomes que ne le permet la raie de résonance beaucoup plus large ($4s^2\ ^1S_0-4s4p\ ^1P_1$ à 423 nm, de largeur 35 MHz pour le Ca, par exemple).

Le calcium Dans le Ca, la transition $4s^2\ ^1S_0-4s4p\ ^3P_1$ a une largeur de 400 Hz. Par conséquent, il n'est pas nécessaire de disposer d'une source laser ultra-stable pour l'interroger. Autrefois étudiée par spectroscopie Ramsey-Bordé (spatiale) sur des jets atomiques, la transition est aujourd'hui sondée avec les atomes froids par l'analogie temporelle de la même technique. Les travaux menés sur cet atome d'abord à la PTB, Braunschweig [124] puis au NIST, Boulder [120] ont connu un succès remarquable. L'équipe américaine a raccordé la fréquence à celle de l'ion mercure grâce à un peigne femtoseconde, mesurant ainsi la fréquence à 46 Hz près [119]. La raie de résonance est employée pour du refroidissement Doppler jusqu'à 2 mK. (L'isotope ⁴⁰Ca ayant I=0, il n'y a pas de refroidissement Sisyphe.) Dans ces conditions, il subsiste des déplacements de fréquences associés aux imperfections des fronts d'onde des faisceaux laser interrogeant la transition d'horloge. Ces effets diminuent avec la vitesse des atomes. Pour cette raison, dans les expériences les plus récentes, une seconde étape de refroidissement est employée sur la raie d'intercombinaison [125]. (Notons que dans une transition à deux photons par exemple, dans l'hydrogène ou l'argent, cet effet est strictement absent). De nouveaux résultats sont attendus.

¹Il existe également dans le Sr une transition à deux photons de 993 nm d'intérêt métrologique, la largeur naturelle étant 540 Hz [114].

TAB. 5.3 – Etalons de fréquence optiques basés sur des atomes neutres. Les indices désigne la longueur d'onde et fréquence d'horloge ainsi que les rayonnements requis pour le refroidissement laser. Des mesures de fréquence par peigne femtoseconde ont été effectuées pour l'H, le Ca et le Sr.

Atome	Transn d'horloge	ν_{hor} (THz)	λ_{hor}	$\lambda_{refr.}$ (nm)	Stabilité	Exactitude	Référence
H	$1s^2S_{1/2}-2s^2S_{1/2}$	2467	2×243 nm	121,6		$2 \cdot 10^{-14} = 46$ Hz	[19]
Ag	$4d^{10}5s^2S_{1/2} - 4d^95s^2^2D_{5/2}$	907	2×661 nm	328			[118]
Xe	$6s[3/2]_2-6s'[1/2]_0$	274	$2 \times 2,19$ μ m	882			[13]
Ca	$4s^2^1S_0-4s4p^3P_1$	457	657 nm	423	$5 \cdot 10^{-14}$ à 1 s	$1 \cdot 10^{-14} = 46$ Hz	[119][120]
Mg	$3s^2^1S_0-3s3p^3P_1$	656	457 nm	285			[121]
Sr	$5s^2^1S_0 - 5s5p^3P_0$	430	698 nm	426		20 kHz	[122]
Yb	$6p^2^1S_0-6s6p^3P_1$	540	556 nm	399			[123]

Le magnésium Cet alcalino-terreux a une raie d'intercombinaison $3s^2\ ^1S_0 \rightarrow 3s3p\ ^3P_1$ à 457 nm, de largeur 31 Hz [121]. Hormis la largeur naturelle plus faible, c'est un candidat moins favorisé par rapport au calcium du fait d'une part de sa masse plus légère et d'autre part, du rayonnement à 285 nm nécessaire au refroidissement laser. Néanmoins, il y a eu des calculs du déplacement collisionnel attendu dans le cas d'une horloge à atomes froids, développé à l'université de Copenhague [126]. En plus des articles cités, mentionnons également que la transition est étudiée par le groupe de Bagayev à Novosibirsk [127].

Le strontium Le succès des expériences sur le Ca a stimulé des recherches sur le Sr. Cet alcalino-terreux possède, en plus d'une raie de résonance à 461 nm, un nombre de transitions étroites susceptibles de fournir une horloge optique [114]. Ce système a été d'abord piégé par les équipes de Hall [128] et Katori [129]. Ce dernier a démontré ensuite la possibilité de refroidir sur la raie intercombinaison $5s5p\ ^1S_0 - ^3P_1$ à $\lambda = 689$ nm, de largeur 7 kHz qui peut elle-même servir de transition d'horloge [130]. Il devient possible d'obtenir des atomes plus froids et ainsi de réduire les déplacements de fréquence de la transition d'horloge liés à la vitesse des atomes. Outre celle-ci, l'atome possède une autre raie intercombinaison $5s5p\ ^1S_0 - ^3P_2$ à $\lambda = 671$ nm, de largeur bien inférieure au hertz ainsi qu'une transition à deux photons de 993 nm vers l'état $5s5d\ ^1D_2$ de largeur 540 Hz. Dans l'isotope ^{87}Sr il existe enfin une autre transition $5s^2\ ^1S_0 - 5s5p\ ^3P_0$ à 698 nm dont la largeur naturelle est estimée à 10^{-3} Hz. L'équipe du BNM-SYRTE dirigée par Pierre Lemonde, poursuit activement un projet d'horloge basée sur cet atome. Très récemment, ils ont observé la transition à 698 nm avec un échantillon d'atomes confinés dans un piège magnéto-optique et ont mesuré sa fréquence à 20 kHz près [122]. L'équipe de Katori a observé, à son tour, la même résonance, mais dans un réseau "magique" pour compenser le déplacement lumineux [116].

L'ytterbium Cet atome possède plusieurs isotopes stables et a déjà été étudié par spectroscopie laser sur jet atomique collimaté en 1974 [131]. Il a été proposé comme étalon de fréquence par Hall et coll. en 1989 [117]. Le refroidissement laser se fait sur la raie de $6p^2\ ^1S_0 - 6s6p\ ^1P_1$ à 398,8 nm. C'est la raie d'intercombinaison $6p^2\ ^1S_0 - 6s6p\ ^3P_1$ à 555,6 nm qui servirait d'étalon, la durée de vie de l'état excité étant 875 ns. Ce système est actuellement étudié par l'équipe de Yabuzaki [123] qui a notamment réalisé un piège magnéto-optique utilisant uniquement la raie à 555,6 nm. Le laboratoire national de métrologie coréen (Korean Institute of Standards and Science) serait également en train de développer une horloge optique basée sur cet atome [132].

5.2.5 Systèmes possédant des transitions à deux photons

Des transitions à deux photons permettent de lier des états atomique de même parité. Il y en a dans tous les alcalins, celle du Rb ($5S-5D$ à 778 nm) ayant déjà fourni un étalon de fréquence. Toutefois, les transitions à deux photons de largeur avoisinant le hertz se trouve plutôt dans d'autres systèmes. Par rapport aux transitions à un photon interrogées par la méthode Ramsey-Bordé, l'effet Doppler du premier ordre est strictement absent ². En revanche, le déplacement lumineux, proportionnel à l'intensité laser, doit être chiffré. Etant donné que le taux de transition varie comme la

²Dans la mesure de la transition $1S-2S$ dans l'hydrogène [19], Bordé a calculé une correction de 10 Hz parce que, pour des raisons pratiques, le waist du faisceau laser ne coïncidait pas avec la région d'interaction

carré de l'intensité laser, l'extrapolation à intensité nulle est délicate car le signal décroît rapidement. Bien que la technique de spectroscopie à deux photons permette d'éliminer l'effet Doppler du premier ordre, il est toujours souhaitable d'employer un échantillon d'atomes froids. D'une part, l'effet Doppler du second ordre et l'élargissement par temps de transit sont réduits. D'autre part, du fait de la plus faible largeur de résonance, la probabilité de transition est augmentée pour une intensité laser donnée. En réduisant cette intensité, on minimise le déplacement lumineux.

L'hydrogène Comme nous en avons largement discuté dans le chapitre 2.3, l'atome d'hydrogène possède beaucoup de transitions à deux photons à partir du niveau fondamental $1s$ et métastable $2S$. C'est la transition $1S-2S$, de largeur naturelle $1,3$ Hz qui est la plus étroite. Sa fréquence a été mesurée avec une incertitude relative de $2 \cdot 10^{-14}$ par l'équipe de Hänsch. Il est difficile de faire du refroidissement laser sur cet atome car l'on requiert des photons à $121,6$ nm. Néanmoins, l'équipe de Hänsch en a synthétisé en petite quantité [20]. Par ailleurs, Kleppner et coll. ont déjà observé la transition $1S-2S$ avec un échantillon d'atomes confinés dans un piège magnétique [21]. On peut raisonnablement s'attendre à des résultats encore meilleurs pour la mesure de cette fréquence.

Le xénon métastable Rolston et Phillips ont considéré une transition à deux photons de $2,19 \mu\text{m}$ et de largeur naturelle 2 Hz [13] (figure 2.2). Cependant, des études préliminaires ont montré une diminution de la durée de vie de l'état métastable induite par le rayonnement du corps noir [14]. Pour cette raison, ainsi que la difficulté de réaliser une source laser commode pour interroger la transition d'horloge, le développement d'étalon optique a été interrompu.

L'argent Comme les alcalins, l'atome d'argent possède beaucoup de transitions à deux photons liant l'état fondamental $4d^{10}5s^2 S_{1/2}$ à des niveaux excités des configurations $4d^{10}nS$ et $4d^{10}nD$. Citons comme exemple, la transition $4d^{10}5s^2 S_{1/2} \rightarrow 4d^{10}6s^2 S_{1/2}$ à deux photons de 440 nm qui pourrait se détecter via la fluorescence à 338 et 328 nm de la cascade radiative via les niveaux $5p^2 P_{1/2}$ et $5p^2 P_{3/2}$ (figure 5.1). Toutefois, compte tenu de la largeur naturelle de la transition de $5,6(2,8)$ MHz³, la raie présente peu d'intérêt métrologique. Il en est de même pour les autres raies vers les niveaux $4d^{10}nS$ et $4d^{10}nD$. Les niveaux de Rydberg ont des largeurs plus faibles mais ils seraient perturbés par l'effet Stark. En revanche, l'argent se distingue des alcalins du fait de l'existence d'autres configurations, notamment les états $4d^9 5s^2^2 D_{3/2}$ (excitable par deux photons de 576 nm) et $4d^9 5s^2^2 D_{5/2}$ (deux photons de 661 nm). La première est intéressante puisque l'état excité à une largeur naturelle estimée de 4 kHz et pourrait devenir un étalon de fréquence secondaire. Il se désexcite via les états $4d^{10}5p^2 P$ d'où l'émission de 328 et 338 nm. La seconde transition, vers le niveau métastable avec sa largeur $\simeq 0,8$ Hz [134], (ou $1,0(3)$ Hz selon nos calculs [135]) est la candidate à une horloge optique. Signalons que l'argent a un autre niveau métastable $4d^9 5s 5p^4 F_{9/2}$ de durée de vie > 1 ms [136]. Toutefois, la transition octupolaire électrique entre l'état fondamental et celui-ci requerra un photon de $\lambda = 169,8$ nm ($\bar{\nu} = 58\,901,9 \text{ cm}^{-1}$). Du fait des règles de sélection de parité, on ne pourrait pas l'étudier par excitation à deux photons sans effet Doppler. Par contre, on pourrait très bien exciter (avec effet Doppler du premier ordre) les niveaux $4d^9 5s^2^2 D_{5/2}$ et $4d^9 5s^2^2 D_{3/2}$ à l'aide des photons de $330,2$ et 283 nm. Les expériences seraient alors les analogues de celles effectuées sur les terres rares. Cependant, l'intérêt de l'argent

³Valeur estimée à partir des codes de Cowan [133]

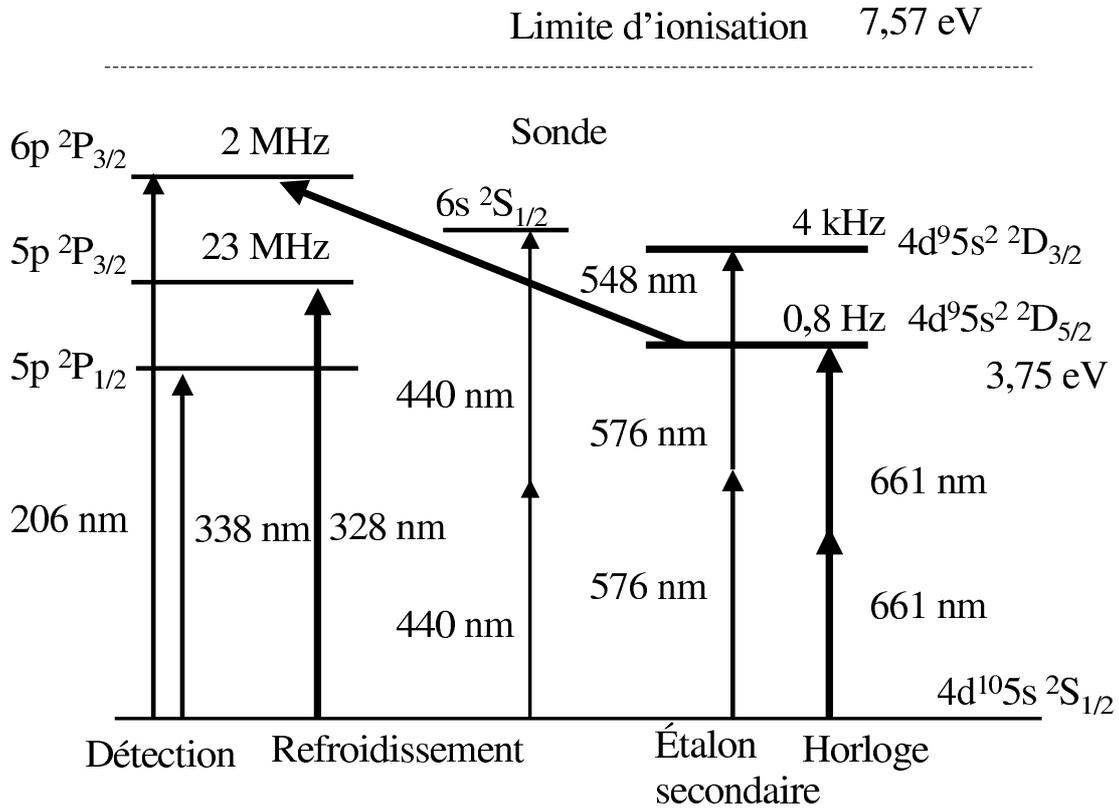


FIG. 5.1 – Diagramme partiel des niveaux d'énergie de l'atome d'argent avec leur largeur naturelle. Pour plus de clarté, nous avons omis les niveaux des configurations $4d^9 5snp$ dont la prise en compte est indispensable pour évaluer les taux d'excitation à deux photons. Outre des transitions à deux photons $4d^{10} 5s^2 \ ^2S_{1/2} \rightarrow 4d^{10} ns^2 \ ^2S_{1/2}$, l'atome possède des résonances étroites liant l'état fondamental aux états $4d^9 5s^2 \ ^2D_{3/2,5/2}$ susceptibles de fournir des horloges optiques. L'atome peut être refroidi par une laser accordée sur la raie D2 à 328 nm. Les atomes dans l'état métastable $5s^2 \ ^2D_{5/2}$ peuvent être détectés via la fluorescence à 206, 328 ou 338 nm induite par un laser à 548 nm qui les excite vers le niveau $6p^2 \ ^2P_{3/2}$. Notons qu'un photon de 328 nm n'a pas tout à fait suffisamment d'énergie pour ioniser des atomes à partir de l'état $5s^2 \ ^2D_{5/2}$.

réside principalement dans la possibilité d'éliminer l'effet Doppler. Ainsi, dans ce qui suit, nous ne parlerons que des transitions à deux photons.

Si l'atome d'argent possède, comme l'hydrogène, une transition à deux photons de largeur naturelle avoisinant le hertz, la longueur d'onde de 661,3 nm est plus commode que celle de l'hydrogène (243 nm, figure 2.3). La transition dans l'Ag a été proposée comme étalon de fréquence par J.L. Hall et coll. en 1976 [134] puis de nouveau en 1989 [117]. Le spin nucléaire des deux isotopes stables de $I=1/2$ donne lieu à une structure hyperfine, ce qui permet des transitions entre niveaux avec $m_F = 0$ et donc insensibles à l'effet Zeeman du premier ordre. De plus, l'existence d'une structure hyperfine de l'état fondamental fournit la possibilité de faire du refroidissement Sisyphe des atomes [137]. A ce propos, l'équipe de Walther a déjà refroidi un échantillon de cet atome à l'aide de la raie de résonance à 328 nm [118, 138, 139]. Dans le prochain chapitre, nous présenterons l'expérience du BNM-INM visant la réalisation d'une horloge optique basée sur cet atome.

Chapitre 6

Développement d'une horloge optique basée sur l'atome d'argent

Ici nous présenterons le déroulement du projet du BNM-INM, les progrès faits ailleurs ainsi que les perspectives à court et moyen terme.

6.1 Le projet du BNM-INM

Nous avons démarré le projet argent en septembre 1996, peu avant le début de la thèse de Stéphane Guérandel. En tant que responsable du projet, ma contribution a inclus l'encadrement de trois doctorants (S. Guérandel [133], Thomas Badr [140] et, avec F. Balembois à l'IOTA, Orsay, Yann Louyer [135]) ainsi qu'un élève ingénieur (Sylvestre Challemel du Rozier [141]). Outre la direction des grandes lignes du projet et la réalisation de certaines parties du montage expérimental, j'ai établi des contacts avec d'autres équipes travaillant sur le même atome et invité des chercheurs étrangers à nous rejoindre. Ainsi, nous avons eu des échanges entre notre laboratoire et celui de Walther au MPQ Garching. J'ai d'ailleurs participé à la traduction de deux thèses provenant de cette équipe [138, 139]. Des mesures de longueurs d'onde optiques par l'équipe de Juliet Pickering (Imperial College, Londres) [142] ont facilité la recherche des transitions. En plus des deux publications ci-joints [93, 143], le lecteur intéressé peut trouver des descriptions détaillées de différents aspects du projet se trouvant dans leurs thèses et mémoires respectifs [133, 140, 141]. Dans ce qui suit, je fournirai un aperçu des grandes lignes du projet, tout en montrant les liens avec la recherche faite auparavant. Après avoir fait le point sur l'expérience, nous verrons les perspectives à court, moyen et long terme.

6.1.1 Défis du projet

Nous avons décidé d'adopter une approche complémentaire à celle de Walther et travailler dans un premier temps avec un jet thermique. Il s'agissait alors de détecter des atomes d'argent métastables. Il fallait aussi calculer le taux de transition à deux photons et chiffrer ainsi la puissance laser requise. De plus, pour exciter la transition à deux photons, l'équipe "longueurs" disposait déjà d'un laser à colorant. Nous avons donc préféré employer cette source plutôt qu'une diode laser compte tenu de sa puissance supérieure (500 mW à 661 nm au lieu de 100 mW pour une

diode laser). Ainsi, nous aurions besoin d'une cavité de surtension moins performante autour de la région d'interaction. Néanmoins, la stabilisation en fréquence de ce laser était et demeure l'un des défis majeurs du projet. Une autre question à aborder était la connaissance de fréquence de la transition. Quant au refroidissement laser, nous avons initialement préféré attendre des résultats de l'équipe de Garching. Il semble clair depuis que quelques dizaines de milliwatts à 328 nm sont nécessaires pour piéger plus de 10^6 atomes. Aussi, avons-nous commencé à développer des sources laser destinées à cette tâche. A l'heure actuelle, il semble que l'équipe allemande ait interrompu leur travaux sur l'Ag.

6.1.2 Calcul du taux des transitions à deux photons

Pour chiffrer le taux de transition à deux photons $\Gamma_{F \rightarrow F'}$ entre un niveau fondamental $4d^{10}5s^2S_{1/2} F$ et un niveau excité $4d^95s^2^2D_{5/2} F'$. S. Guérandel [133] puis Y. Louyer [135] ont calculé les éléments de matrice nécessaires à l'aide des codes de Cowan [144]. Nous trouvons

$$\Gamma_{0 \rightarrow 2} = 2,7 \times 10^{-8} \frac{P^2}{S^2} \frac{1}{\Gamma_e} \quad (6.1)$$

$$\Gamma_{1 \rightarrow 2} = 1,8 \times 10^{-8} \frac{P^2}{S^2} \frac{1}{\Gamma_e} \quad (6.2)$$

$$\Gamma_{1 \rightarrow 3} = 6,3 \times 10^{-8} \frac{P^2}{S^2} \frac{1}{\Gamma_e}. \quad (6.3)$$

où P est la puissance du faisceau laser de section S et Γ_e la largeur à mi-hauteur de la résonance. (Un calcul plus raffiné prendrait en compte l'effet de distribution de vitesses et élargissement par temps de transit - voir la thèse de T. Badr [140]). Les taux des transitions $4d^{10}5s^2S_{1/2} F \rightarrow 4d^95s^2^2D_{3/2} F'$, sont plus faibles d'un facteur deux environ, du fait des coefficients angulaires.

En ce qui concerne les incertitudes, les calculs des durées de vie des niveaux des configurations $4d^{10}5p$, $4d^{10}6p$ etc. donnent des valeurs environ 2/3 des valeurs expérimentales. L'incertitude sur les niveaux d'énergie étant négligeable par comparaison, nous pourrions nous tromper d'un facteur deux sur le calcul de l'expression du taux de transition. A titre de comparaison, pour une intensité laser identique, le taux serait environ dix fois plus faible que celui de la transition hydrogène $1S-2S$, excité par deux photons de $\lambda = 243$ nm. Dans notre expérience, nous disposons de plus de puissance à 661 nm (2 W au lieu de 10 mW) tandis que les sources d'hydrogène ont des flux d'atomes comparables à celui de notre jet thermique effusif d'argent ($\simeq 10^{17} \text{ s}^{-1} \text{str}^{-1}$ pour un dissociateur à H_2 à 300 K suivi d'une fente). Puisque dans des conditions d'excitation identiques les taux sont similaires pour 576 et 661 nm, une expérience sur la première transition (en principe, plus facile à détecter) pourrait alors servir de test du taux de transition pour la seconde.

6.1.3 Détection d'atomes d'argent métastables

Pour détecter des atomes d'argent métastables, nous avons mis au point un jet thermique dans lequel des atomes étaient excités par bombardement électronique. L'enceinte à vide en acier inoxydable amagnétique comprend trois chambres évacuées chacune par une pompe turbo moléculaire à environ 10^{-7} mbar. Des vannes à tiroir permettent d'isoler une chambre de l'autre et facilitent

l'intervention sur une partie du montage lorsque les autres sont sous vide. La structure en croix DN160 ISO K s'est inspirée du montage développé à Yale University pour le jet hydrogène métastable. Par rapport à celui-ci, nous avons préféré mettre des joints en Viton (et non en Cu) et avons inclus plus de rails de fixation à l'intérieur. L'argent est évaporé à 1200 °C dans un four situé dans la première chambre. La conception de celui-ci, un tube en Ta chauffé résistivement, est calquée sur un modèle de l'Université de Birmingham [145]. Nous avons d'abord adopté un tube long (10 cm) plié avant de passer, plus récemment, à des structures droites, plus faciles à fabriquer. Le canon à électrons de la deuxième chambre est basé sur celui employé par Biraben pour l'hydrogène [146]. Nous l'avons choisi car il permet de faire de la spectroscopie laser colinéaire à un jet atomique, ce qui était notre intention au départ. Dans la troisième chambre, différents systèmes de détection d'atomes métastables ont été essayés, d'abord sans recours à un laser puis, malgré tout, à l'aide d'un laser à colorant. Nous avons cherché à tout prix à éviter l'emploi d'un deuxième laser à colorant du fait du coût et complexité supplémentaires. Voici un résumé des méthodes considérées.

6.1.3.1 Quenching par champ électrique

Il s'agit d'appliquer un champ électrique statique pour provoquer la désexcitation radiative de l'état métastable en mélangeant les fonctions d'onde des états $5s^2 \ ^2D_{5/2}$ métastable et $5p \ ^2P_{3/2}$ (durée de vie 7 ns). Rappelons nous que pour l'état $2s \ ^2S_{1/2}$ de l'hydrogène séparé du niveau $2p \ ^2P_{1/2}$ par le Lamb shift (1058 MHz), le champ requis est de l'ordre de 100 Vcm^{-1} . Pour l'argent la séparation est de 6,9 THz et l'élément de matrice dipolaire électrique plus faible ($0,29ea_0$ vs. $2,1ea_0$ pour H). Le champ requis excède ainsi 10^6 Vcm^{-1} . Par prudence, nous n'avons jamais exploré expérimentalement cette piste.

6.1.3.2 Fluorescence induit par photon lointain IR

Il serait *a priori* possible d'induire une transition vers le niveau $5p \ ^2P_{3/2}$ via l'absorption d'une source lumineuse. Toutefois, l'écart fréquentiel correspondant a une longueur d'onde de $41 \ \mu\text{m}$. Cette valeur se situe dans un domaine où il n'est pas évident de disposer d'une source de rayonnement cohérent. La transition vers le niveau $5p \ ^2P_{1/2}$ requerra $15 \ \mu\text{m}$ mais est interdite car $\Delta J = 2$.

6.1.3.3 Ionisation par fil chaud plus spectromètre de masse

Lorsque qu'un atome s'approche d'une surface métallique dont le travail d'extraction dépasse l'énergie d'ionisation de l'atome, l'atome est ionisé. L'ion étant attiré par sa charge image, on chauffe la surface pour l'évaporer. L'ion est détecté à l'aide d'un Channeltron. Cette méthode sert depuis longtemps dans la détection des alcalins par des surfaces de W, Pt ou Re. Nous avons tenté de l'adapter à l'argent, l'idée simple étant que seuls les atomes métastables seraient ionisés. Puisque notre ruban de rhénium émettait des ions en l'absence du jet d'argent, nous avons employé un spectromètre de masse afin de discriminer des atomes d'argent d'autres espèces détectées. Nous avons réussi à détecter des atomes de potassium dans un jet test mais jamais des atomes d'argent métastables. La raison en était peut-être la forte température d'évaporation de l'Ag ; les atomes du jet formait vraisemblablement en quelques minutes une mono-couche sur la feuille de rhénium, la rendant inactive.

6.1.3.4 Ionisation par bombardement électronique

Il était possible d'employer le spectromètre de masse en tant qu'analyseur de gaz résiduel grâce à un canon à électrons situé près de l'entrée de celui-ci. Ainsi, nous avons bombardé à 12 V le jet d'argent dans l'état fondamental et détecté les deux isotopes stables. Toutefois, le signal de $\simeq 1000$ coups/s donnait peu d'espoir de voir des atomes métastables, présents dans une fraction un million de fois plus faible.

6.1.3.5 Effet Auger

L'effet Auger est le complément de l'ionisation par fil chaud. Ici on emploie un métal dont le travail d'extraction de la surface métallique est inférieur à l'énergie d'excitation de l'atome métastable. Ainsi, lorsque l'atome se rapproche de la surface, un électron est éjecté. Cette méthode avait été déjà employée avec succès par Blachman et coll. en 1966 dans leurs mesures de la structure hyperfine de l'argent métastable [136]. Son efficacité est estimée à environ 10^{-3} mais la méthode n'est pas très commode dans la mesure où il faut déposer continûment du métal sur la surface active, d'habitude un alcalin. Nous l'avons tenté rapidement, sans succès, en essayant de récolter des électrons éjectés d'une plaque césiée grâce à une anode en acier inoxydable. Il nous manquait à l'époque un électromètre de sensibilité suffisante (capable de détecter 10^{-13} A).

6.1.3.6 Photoionisation

Des photons de longueur d'onde inférieure à 324 nm ont assez d'énergie pour ioniser de l'argent métastable. Nous avons essayé de détecter des électrons ou ions d'argent à l'aide d'un Channeltron en présence de l'éclairage d'une lampe à xénon. L'expérience fut un échec du fait du fond créé par la lampe UV en absence du jet d'argent. En toute honnêteté, étant donné d'une part notre ignorance de la section efficace de photo-ionisation et d'autre part l'absence de précautions prises pour réduire la quantité de lumière diffusée, il nous est difficile de conclure quant à la faisabilité réelle de cette méthode.

6.1.3.7 Fluorescence UV induite par un laser visible

Compte tenu des résultats négatifs de toutes les méthodes décrites ci-dessus, il était indispensable de vérifier que nous produisions tout de même des atomes d'argent métastables. Nous avons donc effectué une expérience de détection de la fluorescence UV induite par un laser visible. Il s'agit d'employer un laser à colorant pour exciter des atomes de l'état métastable vers le niveau $5d^{10}6p\ ^2P_{3/2}$ de durée de vie 80 ns. Les atomes dans cet état se désexcitent vers l'état fondamental, soit directement en émettant des photons à 206 nm, soit via les états $5p\ ^2P$ avec l'émission de 328 et 338 nm. Les photons sont alors récoltés par un photomultiplicateur protégé d'un filtre adéquat. Cette méthode a réussi. Le rapport signal sur bruit (de 15 à 60 selon les expériences) a permis de faire une étude de la raie verte dans le but d'affiner nos connaissances de l'énergie du niveau métastable $4d^95s^2\ ^2D_{5/2}$. Ces expériences, décrites dans la section suivante et en grand détail dans les thèses de S. Guérandel [133] et T. Badr [140], ont donné lieu à deux articles joints en annexe [93, 143]. Toutefois, il s'agissait là de balayer la fréquence du laser vert pour obtenir le spectre d'une composante hyperfine de la raie dans l'un ou l'autre isotope stable. La stabilisation en fréquence du laser sur une des ces composantes a été entreprise plus tard dans le cadre du mémoire

d'ingénieur de S. Challemel du Rozier [141]. Pour ce faire, nous avons tiré profit des sources laser HeNe stabilisées sur l'iode moléculaire. En effet, la fréquence du laser à colorant à laquelle se rajoutait celle d'un modulateur acousto-optique, était stabilisée sur le flanc d'un pic de transmission d'une cavité Fabry Perot confocale. La longueur de cette cavité était elle-même stabilisée par asservissement du sommet d'un autre pic sur celle du laser HeNe à 633 nm. Enfin, la fréquence du laser HeNe est asservie sur une composante hyperfine de la raie 127R(11-5) de la molécule I_2 . En choisissant la composante moléculaire, on peut toujours s'arranger pour que la fréquence du laser vert avoisine celle de la transition de l'argent. L'écart résiduel est alors rattrapé à l'aide du modulateur acousto-optique, balayable sur environ 100 MHz. Outre son utilisation pour la détection d'atomes d'argent métastable, ce dispositif permettrait de maintenir à long terme (dérive < 2 MHz sur quelques heures) la fréquence du laser à colorant à une valeur souhaitée.

6.1.4 Amélioration de la connaissance de la fréquence de la transition à 661 nm

L'énergie du niveau métastable $4d^9 5s^2 \ ^2D_{5/2}$ peut se déduire à partir de la différence des fréquences des transitions $4d^9 5s^2 \ ^2D_{5/2} \rightarrow 4d^{10} 6p \ ^2P_{3/2}$ et $4d^{10} 5s \ ^2S_{1/2} \rightarrow 4d^{10} 6p \ ^2P_{3/2}$. Larkins et Hannaford [147] avait mesuré les longueurs d'onde (547,7 et 206,1 nm respectivement) des ces raies émises par une lampe à cathode creuse, à l'aide d'un monochromateur à réseau. Il existait également une ancienne mesure de Rasmussen [148] de 1940. A notre insu, Dinger et coll. [149] avait déterminé la fréquence de la raie verte sur un jet rapide par comparaison avec des résonances dans l'iode moléculaire. Nous avons décidé de faire nos propres mesures des fréquences de ces transitions. Dans le premier cas, il s'agissait d'employer notre jet métastable et les lasers à colorant dont nous disposions. Dans le second, nous avons collaboré avec l'équipe de Biraben qui avait développé une source laser vers 205 nm pour étudier la transition 1S-3S de l'atome d'hydrogène. En même temps, nous avons sollicité l'aide de Juliet Pickering qui avait fait des mesures avec une lampe à cathode creuse [142] mais avec une plus faible incertitude que celle de Larkins et Hannaford [147].

6.1.4.1 Spectroscopie laser à 547,7 nm

Nous avons entrepris deux expériences à l'aide du jet métastable. Dans les deux cas, le jet était collimaté et la transition était excitée par un laser perpendiculaire au jet. La détection se faisait par collection de la fluorescence UV.

6.1.4.1.1 Etalonnage par cavité Fabry Perot Dans la première expérience ([143] joint en annexe), un seul laser était employé pour déterminer la fréquence, l'écart isotopique et la structure hyperfine de l'état $6p \ ^2P_{3/2}$. L'étalonnage des mesures se faisait à l'aide d'une cavité Fabry Perot d'intervalle spectral libre 147 MHz. La fluorescence UV détectée était celle de la raie à 206 nm. La fréquence de la transition a été mesurée par raccordement avec la composante a_1 de la raie 70R(27-1) de la molécule $^{127}I_2$. Pour la détermination de l'écart isotopique et la structure hyperfine, nous avons profité de la très bonne connaissance de l'écart hyperfin du niveau métastable dans chaque isotope [136] pour étalonner l'échelle des fréquences. Ainsi, nous avons pu mesurer la fréquence à 60 MHz près, incertitude limitée par celle de l'atlas de l'iode [92, 150]. Notre détermination de

l'écart isotopique à 5,4 MHz près se trouve en accord avec les autres résultats de moins bonne résolution [149]. Nos valeurs des constantes de structure hyperfine dans les isotopes ^{107}Ag et ^{109}Ag sont en accord avec des mesures plus exactes obtenues par effet Hanle [151].

6.1.4.1.2 Etalonnage par battement de fréquences Dans une seconde expérience [93], nous avons employé deux lasers à colorant. L'un d'entre eux excitait la transition dans l'argent tandis que la fréquence du second était asservie sur la composante hyperfine de l'iode moléculaire mentionnée ci-dessus. La fréquence de battement entre ces sources permettait d'étalonner en temps réel l'axe des fréquences. De plus, pour certaines de ces mesures, nous avons détecté non pas la fluorescence à 206 nm mais plutôt à 328 et 338 nm, ce qui donne un rapport signal sur bruit plus important (60 au lieu de 15). Pour exploiter le mieux les données, nous avons utilisé les valeurs des constantes hyperfines de Bengtsson et coll. [151] afin de déterminer la fréquence de chaque composante hyperfine et ainsi l'écart isotopique. Notre incertitude de 0,5 MHz se trouve 10 fois plus faible que celle de notre mesure précédente. Notre mesure de la fréquence du centre de gravité de la transition $4d^9 5s^2 \ ^2D_{5/2} \rightarrow 4d^{10} 6p \ ^2P_{3/2}$ a bénéficié de la disponibilité d'un nouvel atlas pour l'iode (TOPTICA [91]) donnant la valeur avec un écart type de 12 MHz. Encore une fois, les mesures étaient en accord avec celles d'autres équipes. D'ailleurs, nous avons trouvé un meilleur accord avec Larkins et Hannaford [147] et Pickering et Zilio [142], dû essentiellement à une différence de 25 MHz par rapport à la fréquence de la raie de l'iode donnée par l'atlas du laboratoire Aimé Cotton [92, 150].

6.1.4.1.3 Formes des raies L'incertitude des mesures est largement suffisante pour ne pas limiter la détermination de l'énergie du niveau métastable $4d^9 5s^2 \ ^2D_{5/2}$. Il serait possible de les améliorer mais les lasers sont actuellement utilisés pour les expériences de spectroscopie à deux photons, notre vraie mission pour ainsi dire. Le montage de détection de S. Challemel du Rozier permettrait une étude approfondie de la forme des raies et éventuellement une meilleure détermination de la constante de structure hyperfine de l'état $6p \ ^2P_{3/2}$. En effet, les intensités relatives des composantes hyperfines dans nos expériences ne sont jamais dans les rapports théoriques 1 :9 :14 obtenus des considérations de moment cinétiques. De plus, les formes des raies sont plus lorentziennes que gaussiennes, alors que nous nous attendions à l'inverse étant donné la largeur Doppler de 10 MHz et largeur naturelle de 2 MHz. Les composantes les plus intenses sont plus larges. Tout ceci suggérerait qu'il y a saturation des transitions. Dans le cas d'un atome à deux niveaux, l'intensité de saturation d'une transition de longueur d'onde λ vers un niveau de durée de vie τ est donnée par [137]

$$I_{sat} = \frac{\pi h c}{3 \lambda^3 \tau} \quad (6.4)$$

où h est la constante de Planck et c la vitesse de la lumière (tableau 6.1). En général, cette expression doit être modifiée à I'_{sat} pour tenir compte de la structure fine et hyperfine et éventuellement du rapport de branchement. Pour la raie de 547,7 nm, nous trouvons $I_{sat}=1,6 \text{ mWcm}^{-2}$, une valeur plus de mille fois inférieure à celle employée lors de nos mesures ! Il serait donc intéressant d'acquérir de nouveaux spectres à plus faible intensité laser. L'appareil de détection à 328 et 338 nm plus performant mis en place pour le montage à deux photons devrait faciliter cette tâche. Avec un seul laser et un balayage pas-à-pas de la fréquence, nous devrions pouvoir résoudre les composantes $F = 2 \rightarrow F' = 2$ et $F = 2 \rightarrow F' = 1$ de la transition à 547,7 nm et effectuer ainsi une meilleure détermination des écarts hyperfins.

TAB. 6.1 – Intensités de saturation $I_{sat} = (\pi hc)/(3\lambda^3\tau)$ des transitions dans l'atome d'argent où τ est la durée de vie de l'état excité. Dans la dernière colonne, la paramètre I'_{sat} tient compte de la structure fine et hyperfine ainsi que le rapport de branchement (1 % dans le cas de la raie à 548 nm). Le paramètre Γ_{laser} désigne la largeur spectrale de la source laser excitatrice.

Transition	λ (nm)	τ (ns)	I_{sat} (mW.cm ⁻²)	I'_{sat} (mW.cm ⁻²)
$4d^{10}5s^2S_{1/2} \rightarrow 4d^{10}6p^2P_{3/2}$	206,1	80	30	28
$4d^{10}5s^2S_{1/2} \rightarrow 4d^{10}5p^2P_{3/2}$	328,1	8	85	204
$4d^{10}5s^2S_{1/2} \rightarrow 4d^95s^2^2D_{5/2}$	330,6	2×10^8	3×10^{-6}	$> 3 \times 10^{-6} \times (\Gamma_{laser}/0,8 \text{ Hz})$
$4d^95s^2^2D_{5/2} \rightarrow 4d^{10}6p^2P_{3/2}$	547,7	80	1,6	$4,6 \times 10^{-2}$

6.1.4.2 Spectroscopie laser à 206,1 nm

La principale source d'incertitude sur la connaissance de l'énergie du niveau métastable provient de la mesure de la fréquence de la raie $4d^{10}5s^2S_{1/2} \rightarrow 4d^{10}6p^2P_{3/2}$ à 206,1 nm. Outre la détermination par Larkins et Hannaford [147] obtenu par monochromateur, Pickering et Zilio ont également entrepris une étude à l'aide d'un spectromètre à transformée de Fourier [142]. Leur incertitude pour le centre de gravité de la raie est de 60 MHz. Nous avons donc essayé d'effectuer une mesure par spectroscopie laser en sollicitant l'aide de Biraben et collègues qui disposent d'une source à cette longueur d'onde (voir section 2.3.3). L'expérience, décrite brièvement dans la thèse de T. Badr [140, 152], a consisté en l'interrogation des atomes dans une lampe à cathode creuse par absorption Doppler simple avec détection par effet opto-galvanique. La mesure n'était pourtant pas triviale car le montage expérimental avait été conçu pour l'étude d'une raie fine (hydrogène 1S-3S, largeur 1 MHz) à 205 nm. Ici, la largeur Doppler de la raie vaut 3 GHz environ. La fréquence du laser à 364 THz ($\lambda = 824$ nm), augmentée de celle d'un modulateur acousto-optique, était asservie sur un pic de transmission d'une cavité Fabry Perot (ISL= 300 MHz). Afin d'enregistrer le spectre de la raie d'Ag, la fréquence du laser était balayée autour de celle de chaque pic, d'un pic au suivant successivement. Pour générer 206 nm, il a fallu chauffer le cristal doubleur à 30 °C afin de réaliser l'accord de phase. La puissance disponible, 1 mW avec un diamètre d'environ 1 mm, n'a pas permis de saturer la transition mais était suffisante pour l'obtention d'un signal (rapport S/B >10). L'étalonnage de la fréquence était fournie par la connaissance de la position des pics de la cavité Fabry Perot, déjà comparées avec des transitions dans le Rb, l'hydrogène ainsi que l'iode moléculaire. En ajustant les paramètres d'une superposition de gaussiennes, nous avons trouvé le centre d'un spectre à 3 MHz près. Toutefois, la mauvaise connaissance de l'écart isotopique limitait la mesure du centre de gravité à 20 MHz près. De plus, puisque nous nous intéressons à la fréquence d'une composante hyperfine d'un isotope donnée, l'incertitude est encore plus importante (environ 77 MHz, provenant de la mauvaise connaissance de l'écart massique spécifique). Il subsiste enfin la question du déplacement collisionnel car nous avons employé une cellule remplie d'argon à 4,0 Torr (= 5,3 hPa). Une valeur approximative serait de 40 MHz. Une comparaison avec les autres mesures sur cette raie est donnée tableau 6.2. L'accord avec le résultat de Pickering est à moins de 2σ .

En résumé, bien que cette expérience ait permis de mieux connaître la fréquence de la raie

TAB. 6.2 – Fréquence du centre de gravité de la raie $4d^{10}5s^2S_{1/2} \rightarrow 4d^{10}6p^2P_{3/2}$ à 206,1 nm de l'atome d'Ag. Toutes les méthodes employées une lampe à décharge. Notre incertitude est supérieure à celle donnée dans [140] pour tenir compte d'un déplacement collisionnel éventuel.

Equipe	Référence	Valeur (MHz)
Biraben/INM	[140]	1 454 017 694(45)
Larkins et coll.	[147]	1 454 017 375(240)
Pickering et coll.	[142]	1 454 017 555(60)

à 206 nm (écart type environ 50 MHz pour chaque composante hyperfine), il demeure intéressant de réduire encore les plages de valeurs. Mieux on connaîtra la fréquence des composantes à 661,2 nm, plus la recherche de cette transition à deux photons sera facilitée. Pour cette raison, nous sommes en train de construire un jet atomique afin d'étudier la raie $4d^{10}5s^2S_{1/2} \rightarrow 4d^{10}6p^2P_{3/2}$ par fluorescence induite. L'argent sera évaporé dans un four similaire à celui employé pour le jet métastable. Après collimation par une fente, le jet croisera à 90° le faisceau laser à 206 nm. Nous détecterons de la fluorescence à 328 et 338 nm à l'aide d'un photomultiplicateur. Il devrait être possible de connaître la fréquence de chaque composante à mieux qu'un mégahertz près. Outre la première détermination de l'écart isotopique de cette raie, la mesure permettrait de réduire l'incertitude sur la position du niveau métastable $4d^9 5s^2 ^2D_{5/2}$ à 12 MHz près, soit 6 MHz à la fréquence d'un photon.

6.1.5 Stabilisation en fréquence du laser à colorant

Afin d'interroger la transition d'horloge, il est nécessaire de disposer d'une source laser de très haute pureté spectrale. D'une part, on n'aimerait pas que la largeur du laser limite la résolution. D'autre part, plus la résolution est grande, plus la probabilité de transition est augmentée pour une puissance laser donnée. Cette dernière considération est importante pour les transitions à deux photons car il s'agit de minimiser le déplacement lumineux. Alors que l'équipe de Walther a choisi d'employer une diode laser en système maître-esclave, nous disposions déjà d'un laser à colorant en principe très performant (Coherent modèle 699-21 amélioré maison). En effet, dans le cadre de son mémoire d'ingénieur [153], Jacques Gagnière avait démontré une stabilité à court terme de l'ordre de $4 \text{ kHz}/\sqrt{s}$. Pour ce faire, la fréquence du laser était asservie sur le flanc d'une cavité Fabry Perot en Invar. La correction des fluctuations haute fréquence était effectuée grâce à l'insertion dans la cavité laser d'un modulateur électro-optique. L'estimation du jitter du laser s'est faite à l'aide d'un spectre de la molécule $^{127}\text{I}_2$ (composante e de la raie 62P(17-1)) interrogée en cellule à faible pression par absorption saturée, et de largeur à mi-hauteur de 600 kHz. La pente raide du flanc permettait d'analyser les fluctuations de fréquence du laser.

Le projet de thèse de T. Badr était tout simplement de faire encore mieux ! Le laser serait le même mais la technique d'asservissement sur le flanc d'une cavité Fabry Perot serait remplacée par celle des bandes latérales [28]. De plus, la cavité en Invar a été remplacée par une en Zérodur, plus stable thermiquement. Malheureusement, entre la fin du mémoire de Gagnière et le début de la thèse de Badr, l'état du laser à colorant s'était considérablement dégradé. Il a fallu en effet tout recommencer. Fin 2000, c'est-à-dire au bout de plus de trois ans de thèse (dont une année consacrée aux expériences de spectroscopie décrites ci-dessus), il existait un nouveau montage

de stabilisation de la fréquence de laser à colorant. Le signal d'erreur provenant de la cavité de finesse 500 fournit une estimation du jitter à court terme (1 s) inférieur à 10 kHz. Toutefois, il nous reste à acquérir un spectre atomique ou moléculaire étroit afin d'en faire un test plus probant. Même si cette valeur est loin derrière l'état de l'art pour un laser à colorant (jitter < 0,2 Hz sur >30 s [108]), les performances sont largement suffisantes pour permettre des expériences sur un jet thermique. Nous avons donc décidé de rechercher la transition à deux photons de 576 nm $4d^{10}5s^2\ ^2S_{1/2} \rightarrow 4d^95s^2\ ^2D_{3/2}$ de l'argent.

6.1.6 Recherche de la transition à deux photons de 576 nm

L'état $4d^95s^2\ ^2D_{3/2}$ se désexcite via les niveaux $4d^{10}5p\ ^2P_{3/2}$ et $^2P_{1/2}$ émettant ainsi des photons à 328 et 338 nm, longueurs d'onde que nous avons déjà détectées. Nous avons voulu entreprendre cette expérience pour tester notre spectromètre à deux photons, avant d'aborder la transition vers l'état métastable dont la détection requiert un appareillage plus lourd. Une cavité de surtension a été réalisée autour de la région d'interaction, à l'extérieur de l'enceinte du jet atomique munie de hublots inclinés à l'angle de Brewster. Du fait de la difficulté de coupler le faisceau laser dans ce résonateur, la puissance intra-cavité était de l'ordre de 2 W lors de nos premières tentatives d'observation de la transition. La détection de la fluorescence se faisait par un photomultiplicateur UV protégé par des filtres interférentiels. Nos recherches de la résonance en mars 2001 n'ont pas porté fruits. Nous avons mis en cause à ce stade l'emploi d'un vieux photomultiplicateur de photocathode trop petite. Néanmoins, à cette époque tout le montage (les deux lasers, les asservissements, le jet atomique) fonctionnait. La fréquence du laser a été balayée par pas de 30 kHz sur des intervalles de 8 MHz environ. L'étalonnage de la fréquence se faisait par battement de fréquence avec l'autre laser à colorant, la fréquence de celui-ci étant asservie sur une composante hyperfine de la raie R111(18-1) de l' I_2 . La fréquence de cette composante est donnée au mégahertz près par l'atlas TOPTICA. Pickering et Zilio [142] spécifient la fréquence de la transition de l'Ag avec un écart type de 210 MHz soit 105 MHz pour chaque photon. Nous avons cherché en vain sur une plage de ± 300 MHz autour de la valeur spécifiée. Il n'existe pourtant pas une mesure spectroscopique permettant de mieux localiser la position du niveau $5s^2\ ^2D_{3/2}$.

Nous avons donc sollicité tout récemment une mesure de la fréquence de la transition $5s^2\ ^2D_{3/2} \rightarrow 4d^{10}5p\ ^2P_{1/2}$ à $\lambda=1937,2$ nm (figure 6.1) de la part de G. Nave (NIST, Gaithersburg) dont nous attendons avec impatience les résultats. Combinée avec la mesure de la raie de 338 nm (incertitude 45 MHz)[142], celle-ci devrait permettre d'affiner la plage de recherche de la transition à deux photons de 576 nm¹.

Depuis la soutenance de la thèse de T. Badr (fin mai 2001), il n'y a pas eu de nouvelle campagne d'acquisition avec deux lasers à colorant (excitateur et référence). Le montage expérimental a pourtant subi des améliorations mais de nombreuses pannes techniques ont sérieusement entravé l'avancement de l'expérience sur ce front. En ce qui concerne les points positifs, le montage de

¹Contrairement à nos attentes, les résultats de Nave pour cette transition ainsi que pour celle de $5s^2\ ^2D_{3/2} \rightarrow 4d^{10}5p\ ^2P_{3/2}$ à $\lambda=2358$ nm, communiqués en octobre 2003, ont infirmé la valeur de l'énergie de Pickering et Zilio, jugée donc fautive d'environ 2 GHz ou 10 écarts types. Les auteurs ont avancé en tant qu'explication, la confusion d'une raie vers 515 nm provenant de l'argon, gaz tampon de leur décharge, avec celle de l'argent. Munis de nouvelles valeurs de fréquence plus fiables, nous nous sommes remis à la recherche de la transition à deux photons (voir Ch. 7)

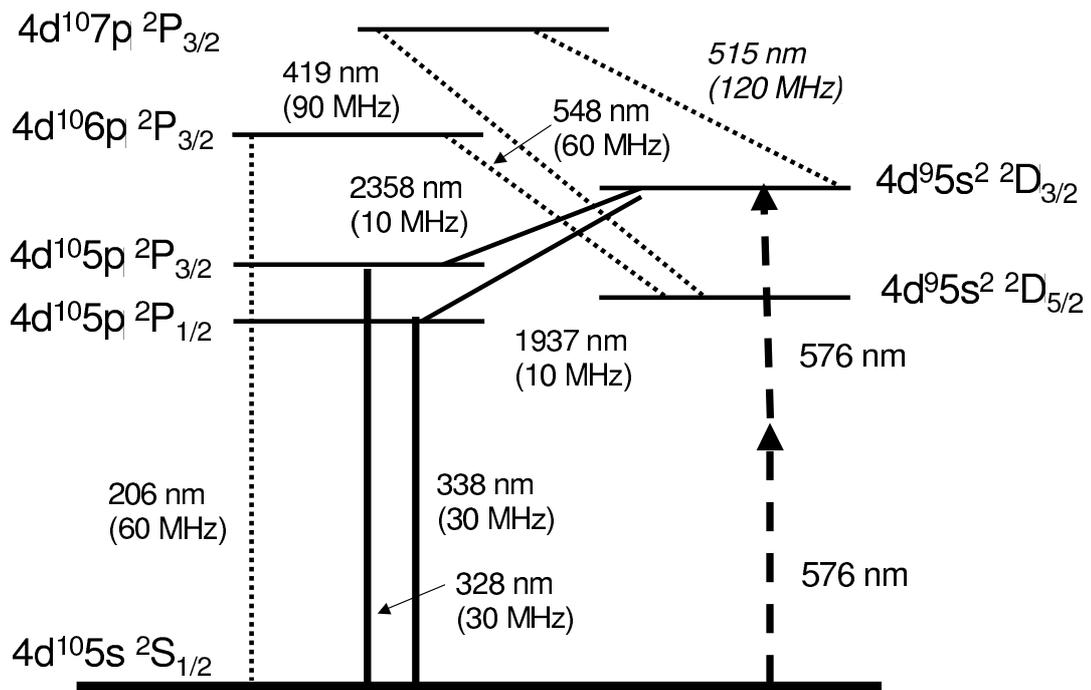


FIG. 6.1 – Mesures spectroscopiques pour localiser la position du niveau $4d^9 5s^2 \ ^2D_{3/2}$. Les incertitudes des mesures sont données en dessous. Les fréquences des raies à 206, 515, 328, 338, 419, 515 et 548 nm ont été déterminées par Pickering et Zilio [142]. Dans leur article, la valeur pour l'énergie du niveau $4d^9 5s^2 \ ^2D_{3/2}$ provient de seule une raie vers 515 nm, dont l'attribution à l'argent s'avérerait erronée. Les mesures des fréquences des raies à 1937 et 2358 nm sont dues à Nave [154]

la cavité de surtension a été reconçu. Le facteur de surtension théorique est de 100 et nous pouvons obtenir jusqu' à 5 W de puissance intra-cavité pour 300 mW en sortie du laser (efficacité de couplage environ 30 %). L'asservissement de la cavité sur la fréquence du laser se fait par la modulation de la longueur de la cavité à l'aide d'une cale piezo-électrique. La lumière réfléchi de l'un des hublots sous incidence de Brewster permet de récupérer un signal d'erreur. Du côté des pannes, celles de l'électronique et des circulateurs des lasers à colorant nous ont empêché d'avoir simultanément en état de fonctionnement les deux lasers.

Malgré ce fait, nous avons entrepris en avril 2002 une nouvelle recherche de la transition vers le niveau $^2D_{3/2}$. Contrairement à la première campagne, nous avons un PM mieux adapté. Le fond dû au rayonnement du four se chiffrait à 600 coups/s avec le PM Hamamatsu de diamètre 25 mm, le bruit d'obscurité plutôt 150 coups/s. Il n'était donc pas intéressant de refroidir le PM. Toutefois, l'absence du laser de référence nous a obligé d'utiliser comme seule indication de fréquence le lambdamètre Burleigh modèle WA 1500, de résolution 30 MHz. Or, nous recherchions des spectres de largeur 100–200 kHz en balayant par pas d'une dizaine de kilohertz la fréquence du laser. Il était donc impossible de cumuler *a posteriori* des enregistrements successifs afin de faire ressortir du fond une résonance éventuelle.

Pour mieux faire, il serait souhaitable de monter une cavité de plus grande surtension sous vide et d'employer la méthode des bandes latérales pour l'asservir. En effet, les pertes dans les hublots limitent la surtension. De plus, les vibrations des pompes turbomoléculaires se voient sur le signal d'erreur, malgré le montage de la cavité sur une table indépendante du bâti du jet atomique. En ce qui concerne la détection de la fluorescence, plusieurs schémas sont à l'étude. La durée de vie de l'état $5s^2 \ ^2D_{3/2}$ calculée à partir des codes de Cowan (40(20) μ s) implique une longueur de désexcitation de 2,6(1,3) cm pour une vitesse atomique de 660 ms^{-1} . Puisque la fluorescence sera étalée, il n'est pas astucieux d'employer une filtre interférentiel. Nous avons trouvé des verres colorés dont la transmission (70 %) varie peu avec l'angle d'incidence. De plus, nous disposons actuellement d'un photomultiplicateur (Hamamatsu 5113P) de diamètre 50 mm, ce qui augmentera d'un facteur 4 la surface active par rapport au système précédent. Le montage le plus simple serait de placer le PM à coté du filtre et le tout au dessus de la région d'interaction pour obtenir une efficacité de détection de quelques pour cent. Dans d'autres montages, *a priori* plus efficaces mais de mise en œuvre plus longue et plus coûteuse, le PM se situerait en aval de la région de l'interaction, la lumière étant récoltée à l'aide d'une lentille et un grand miroir sphérique. Au moment de la rédaction de ce mémoire (soumis aux rapporteurs début septembre 03), nous ne pouvions pas conclure quant à la faisabilité de cette expérience, faute d'avoir recherché dans de bonnes conditions la transition à deux photons de 576 nm. La réponse encourageante, obtenue 2 mois plus tard, est présentée dans le chapitre 7 du présent document.

6.1.7 Développement des sources lasers solides pompées par diode laser

Afin de simplifier à terme le montage expérimental, nous développons des sources laser solides pompées par diode laser. Il s'agit dans un premier temps de réaliser des sources continues monomodes aux longueurs d'onde de 1312,0 nm et 1322,6 nm. Doubler deux fois la fréquence de la première source fournirait du rayonnement à 328 nm nécessaire au refroidissement laser de l'atome d'argent. La deuxième harmonique de la deuxième source donnerait 661,3 nm, requis pour l'excitation à deux photons de la transition d'horloge. Ce type de laser est plus commode qu'un laser à colorant sur plusieurs plans. Il ne requiert pas un laser à argon ionisé comme laser

pompe. Il est moins encombrant et plus convivial d'emploi (pas de colorant à changer). Avec une bonne mécanique, sa stabilité fréquentielle passive peut être de l'ordre de $30 \text{ kHz}/\sqrt{s}$ au lieu de $60 \text{ MHz}/\sqrt{s}$, valeur typique pour un laser à colorant. La stabilisation active de la fréquence serait donc nettement facilitée. Nous souhaiterions disposer de 4 sources vers $1,3 \mu\text{m}$: deux pour produire 661 nm (un laser excitateur produisant des centaines de milliwatts et un laser de référence de 10 mW) et deux pour 328 nm (100 mW pour refroidir et un laser repompeur de 10 mW). Compte tenu des efficacités des cristaux non linéaires employés ailleurs, une puissance de 2 W dans l'IR serait souhaitable.

Pour ce faire, nous collaborons avec l'Équipe Lasers Solides et Applications (ELSA) de l'Institut d'Optique Théorique et Appliquée (IOTA), Orsay. Les travaux s'inscrivent dans le cadre de la thèse de Yann Louyer [135], soutenue en novembre 2003. Les membres de l'équipe ELSA ont une longue expérience dans le développement des lasers solides à la fois continus et pulsés. Ils ne cherchent pourtant pas à réaliser des sources monomodes et spectralement fines. Il y a donc eu de l'apprentissage des deux côtés. Les premières expériences ont eu lieu à Orsay avant l'implantation du montage au BNM-INM en mars 03.

Le cristal employé, Nd :YLF, a permis d'obtenir les deux longueurs d'onde IR requises. Ce matériau, pompé par une diode laser à 806 nm, possède, outre la raie très connue à 1047 nm, deux bandes d'émission aux alentours de 1313 nm et 1322 nm [155]. L'opération monomode en a été démontrée d'abord avec une cavité linéaire repliée, puis, pour 1312,0 nm, à l'aide d'une cavité à mode hélicoïdal [156]. Plus récemment, l'emploi d'une cavité en anneau a permis d'avoir plus facilement un laser monomode, la puissance maximale étant pour l'instant 1,5 W à 1322,6 nm et 1,1 W à 1312,0 nm, pour 12,8 W absorbé à 806 nm. De plus, le doublage intra-cavité à l'aide d'un cristal de borate de lithium (LBO) a déjà fourni 340 mW monomode à 656,0 nm et 440 mW à 661,3 nm [157]. Notons que dans ce cas, le cristal était pompé à 797 nm mais qu'il n'y avait pas de coupleur de sortie pour le faisceau IR. La puissance dans le visible impliquerait une puissance IR disponible à l'extérieur de 2 W environ si l'on introduisait un coupleur de sortie. Avec de simples améliorations au montage, nous espérons obtenir 500 mW pour ces deux longueurs d'onde visibles, puissance suffisante pour remplacer un laser à colorant.

Notons qu'un laser basé sur le Nd :YLF serait utile non seulement pour l'argent mais aussi pour l'étude d'autres systèmes [158]. D'abord, il y a la raie intercombinaison du Ca à 657 nm (voir paragraphe 5.2.4). La longueur d'onde de 1312,6 nm permettrait d'exciter par spectroscopie à deux photons la transition H(2S-3S). Une mesure de la fréquence de celle-ci aiderait d'une part à améliorer la connaissance de la constante de Rydberg et servirait d'autre part à tester la cohérence des mesures des fréquences 1S-2S et 1S-3S (voir les sections 2.3.1 et 2.3.3). Si l'on doublait deux fois la fréquence de cette source, on disposerait du rayonnement nécessaire à l'excitation de la transition He^+ (2S-3S), actuellement étudiée à l'université de Sussex, Angleterre, avec un laser à colorant [159].

6.1.8 Refroidissement laser de l'atome d'argent

Le refroidissement laser pose au premier vu un défi, du fait de la longueur d'onde (328 nm), l'intensité de saturation ($204 \text{ mW}\cdot\text{cm}^{-2}$) ainsi que la nécessité d'un second laser repompeur. En effet, le faible écart hyperfin (74 MHz) entre les niveaux $F=2$ et $F=1$ de l'état $4d^{10}5p \ 2P^{3/2}$ est inférieur à 3 fois la largeur naturelle (23 MHz). Pour cette raison il serait souhaitable de disposer de deux sources laser puissantes aux alentours de 328,1 nm. Dans leurs premières expériences,

l'équipe de Walther n'a piégé qu'une centaine d'atomes, faute de puissance laser à 328 nm [138]. Il s'agissait d'une diode laser à 656 nm doublée en fréquence pour fournir 5 mW, puissance également répartie entre les faisceaux de refroidissement et de repompage. Par la suite, cette source fut remplacée par le deuxième harmonique d'un laser à colorant commercial pour avoir 40 mW à 328 nm, la diode laser doublée servant uniquement pour le repompage. De cette manière, ils ont confiné plus de 10^6 atomes [118]. Ne disposant pas de source lasers supplémentaires, ils n'ont pu effectuer des mesures de température par temps de vol. L'équipe a toutefois établi par une autre méthode que la température dans le piège magnéto-optique était inférieure à celle donnée par la limite Doppler [137]. Dans tous les cas, le piège a été rempli à partir d'un jet thermique, mais des essais avec une goutte d'argent sur une fil chauffé à proximité du piège ont été prometteurs.

En ce qui concerne notre stratégie au BNM-INM, nous souhaiterions disposer d'au moins deux sources de 100 mW à 328 nm. Ceci permettrait de confiner plus d'atomes (volume de capture plus important), de mieux les refroidir (désaccorder les fréquences en phase mélasse après coupure du piège magnéto-optique) ainsi que de mesurer par temps de vol la distribution de vitesses. Bien que le doublage de fréquence des nos lasers à colorant soit un point de départ envisageable, nos résultats obtenus avec des lasers solides sont très encourageants (section 6.1.7). Nous espérons donc réaliser à terme un montage employant uniquement des lasers de ce type [160]. Mentionnons toutefois qu'une source à 548 nm pour toujours demeurer utile, non pas pour détecter la transition d'horloge mais pour fermer la transition de refroidissement, une fuite (10^{-7}) vers le niveau métastable ayant été mise en évidence par l'équipe de Garching [118].

6.1.9 Un condensat de Bose Einstein, un réseau optique ou une fontaine ?

Les deux isotopes stables ^{107}Ag et ^{109}Ag étant des bosons, il est naturel de penser à la réalisation d'un condensat de Bose Einstein. Il n'est pas question d'utiliser comme étalon de fréquence un condensat d'atomes, car leur interaction mutuelle déplace et élargit la fréquence de transition par rapport à celle d'un atome libre. La réalisation d'un condensat pourrait s'avérer utile pour le remplissage complet d'un réseau optique, comme l'a fait l'équipe de Hänsch dans le cas du Rb [161]. En revanche, il n'est forcément avantageux d'avoir un réseau totalement rempli si l'on souhaite éviter des interactions entre les atomes. Rappelons que l'emploi d'un réseau est une stratégie pour éviter des collisions entre atomes et les déplacements fréquentiels qui y sont associés [114]. Précisons que dans les cas proposés, les isotopes concernés (Sr et Yb) sont des fermions confinés dans un réseau rempli à partir des atomes froids mais pas d'un condensat. Il ne serait toutefois pas simple d'adapter cette méthode à la transition d'horloge de l'atome d'argent. Contrairement aux cas du Sr et de l'Yb, la transition en question n'est pas $J = 0 \rightarrow J' = 0$, et le déplacement lumineux induit par le réseau (typiquement 10-20 kHz) serait donc fonction de la polarisation du laser. Il serait alors nécessaire de contrôler la polarisation à 10^{-4} près pour maîtriser le déplacement de fréquence au niveau du hertz. Notons également que la réalisation d'un condensat est intimement liée aux propriétés collisionnelles des atomes froids. Pour l'instant, peu de choses sont connues concernant les collisions entre atomes froids d'argent. Il y a donc un double intérêt pour étudier des collisions entre atomes d'argent refroidis : d'une part, pour voir dans quelle mesure elles perturberaient la fréquence d'une horloge optique et d'autre part, pour étudier la faisabilité d'un condensat afin des les éviter ! Signalons que suite à une suggestion de W.D. Phillips, nous avons sollicité l'aide de C. Williams du même institut (NIST, Gaithersburg) pour calculer les déplacements collisionnels pour des horloges à Ag et à Sr.

Un autre scénario, plus réaliste pour profiter de la largeur naturelle de la transition $4d^{10}5s^2S_{1/2} \rightarrow 4d^9 5s^2^2D_{5/2}$, serait de construire à terme une fontaine atomique. L'idée a déjà été proposée pour l'étude de la transition 1S-2S dans l'hydrogène [162]. Comme nous l'avons souligné, cette démarche serait plus facile avec l'argent. Afin de minimiser d'une part le déplacement collisionnel et d'autre part le bruit dû à l'effet Dick [163] rencontrés dans le cas des fontaines pulsées [71], une possibilité serait d'employer une fontaine continue [164, 165]. Une collaboration à ce sujet est d'ailleurs envisagée.

6.1.10 État actuel de l'expérience et des perspectives

Un déroulement possible de l'expérience serait l'observation de la transition à deux photons de 576 nm sur jet (voir Epilogue) suivie de celle de 661 nm. La prochaine étape serait de développer des sources à 328 nm, idéalement avec des lasers solides, et de refroidir ainsi des atomes d'argent. Il serait judicieux de remplacer également le laser à colorant par un laser solide pour générer 661 nm avec une très haute pureté spectrale. En tout cas, il faudra réduire à tout prix le nombre de lasers à colorant, de préférence à zéro. Notons que même le laser sonde à 547,7 nm ne sera plus indispensable si l'on parvient à détecter la transition avec des atomes froids par la méthode des sauts quantiques. Il pourrait servir pourtant comme laser repompeur dans le cas où l'on souhaite interroger la transition à deux photons à une échelle de temps inférieure à la durée de vie naturelle (0,2 s). Cette approche est déjà employée dans le cas de l'atome de Ca.

Chapitre 7

Conclusion

Ce document a présenté un résumé de 17 ans de recherche sur plusieurs thèmes différents, dont la plupart étudiés à travers des expériences de très longue haleine. Des points communs entre ses projets incluent le rapport signal sur bruit, souvent faible, ainsi que le défi de maîtriser les grandeurs d'influence. Les travaux de thèse suivis de six ans de séjours post-doctoraux m'ont permis d'acquérir des connaissances en physique atomique et ses applications à la physique fondamentale notamment dans l'étude de l'atome d'hydrogène et la violation de la parité dans le césium. Du point de vue expérimental, j'ai eu l'occasion de me familiariser avec, entre autres, la réalisation des jets atomiques et les techniques de spectroscopie laser. Les deux ans passés sur le projet Cs m'ont beaucoup appris concernant le dépistage des effets systématiques. Enfin, le début de mon séjour au Cnam a permis une introduction au monde des atomes froids.

C'est ainsi qu'en septembre 1996, muni de cette expérience et grâce au soutien du BNM, j'ai pu prendre la responsabilité d'un projet d'envergure effectué par l'équipe longueurs du BNM-INM. Il s'agit du développement d'une horloge optique basée sur une transition très étroite de l'argent atomique. Les travaux de trois thèses et d'un mémoire d'ingénieur Cnam ont permis des progrès sensibles : le calcul du taux de transition, la détection des atomes métastables, l'amélioration de la connaissance de la fréquence de la transition, l'affinement spectral du laser exciteur, ainsi que la réalisation des sources lasers solides. Néanmoins, il nous reste à franchir des étapes cruciales, notamment l'observation de la transition d'horloge et le refroidissement et le piégeage des atomes d'argent, sans parler de la stabilisation au niveau du hertz de la fréquence du laser d'horloge. La mesure à terme de la fréquence de la transition d'horloge se ferait logiquement en collaboration avec le BNM-SYRTE.

En ce qui concerne la validité du projet à la lumière de l'expérience déjà acquise, on peut toujours affirmer que, parmi les atomes possédant des transitions à deux photons de faible largeur naturelle, l'argent semblerait plus facile à étudier qu l'hydrogène avec un échantillon d'atomes froids. Les effets systématiques sont différents de ceux rencontrés dans le cas d'une transition à un photon, dans les alcalino-terreux, par exemple. Concrètement, la seule façon de chiffrer le déplacement collisionnel de la fréquence de la transition d'horloge serait de réaliser une horloge et étudier l'influence de la densité atomique et de la température. Pour l'instant, bien que la réalisation d'une horloge à atomes froids soit techniquement plus difficile que pour le Ca ou le Sr (température d'évaporation du métal plus élevée, sources laser moins commodes), l'argent mérite autant de considération que d'autres atomes.

Epilogue : observation d'une transition à deux photons dans l'Ag

Suite à la remise du manuscrit aux rapporteurs, mais avant la soutenance, notre équipe à observé pour la première fois la transition $4d^{10}5s\ ^2S_{1/2} \rightarrow 4d^95s^2\ ^2D_{3/2}$ à deux photons de 576 nm dans l'Ag. Les premiers résultats ont été présentés lors de la soutenance et un spectre est inclus ici (Fig. 7.1).

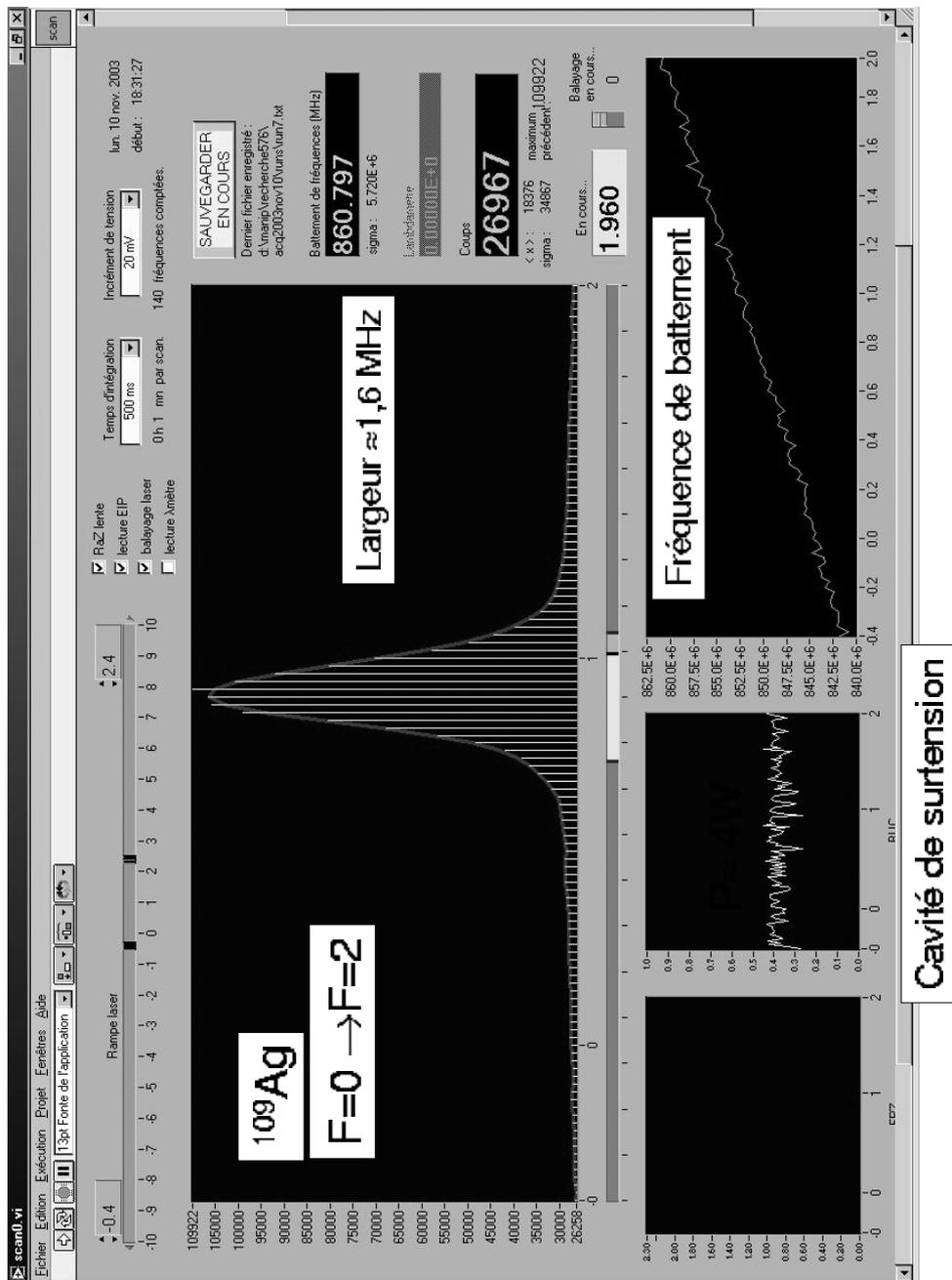


Fig. 7.1 – Spectre à deux photons de la transition $4d^{10}5s^2S_{1/2} \rightarrow 4d^95s^2D_{3/2}$ dans l'Ag étalonné par battement de fréquences du laser exciteur avec un second laser asservi sur une composante hyperfine de la raie 111R(18-1) de la molécule $^{127}\text{I}_2$.

Bibliographie

- [1] M.D. Plimmer. Laser spectroscopy of atomic systems., 1989. D. Phil thesis, Oxford University.
- [2] M.D. Plimmer, P.E.G. Baird, D.N. Stacey, and G.K. Woodgate. High resolution laser spectroscopy of gadolinium isotopes, 1988. Eleventh International Conference on Atomic Physics (ICAP 11), Paris, août 1988. Poster.
- [3] M.D. Plimmer, P.E.G. Baird, C.J. Foot, D.N. Stacey, J.B. Swan, and G.K. Woodgate. Isotope shift in xenon by Doppler-free two-photon laser spectroscopy *J. Phys. B.* **22**, L241–L244 (1989).
- [4] M.G. Boshier, P.E.G. Baird, C.J. Foot, E.A. Hinds, M.D. Plimmer, D.N. Stacey, J.B. Swan, D.A. Tate, D.M. Warrington, and G.K. Woodgate. Precision spectroscopy of hydrogen and deuterium. *Nature.* **330**, 463–465 (1987).
- [5] M.G. Boshier, P.E.G. Baird, C.J. Foot, E.A. Hinds, M.D. Plimmer, D.N. Stacey, J.B. Swan, D.A. Tate, D.M. Warrington, and G.K. Woodgate. Laser spectroscopy of the 1S-2S transition in hydrogen and deuterium : determination of the 1S Lamb shift and the Rydberg constant *Phys. Rev. A.* **40**, 6169–84 (1989).
- [6] D.J. Berkeland, E.A. Hinds, and M.G. Boshier. Precise optical measurement of lamb shifts in atomic hydrogen *Phys. Rev. Lett.* **75**, 2470–73 (1995).
- [7] W.C. Martin, R. Zalubas, and L. Hagan. *Atomic Energy Levels : The Rare Earth Elements.* NBS, Washington, 1978.
- [8] G.M. Hayes. PhD thesis, University of Birmingham, U.K., 1985.
- [9] H.-D. Kronfeldt, G. Klemz, and D.-J. Weber. J-dependence of the isotope shift in Gd I $4f^7 5d 6s^2(a, 9D)$, *Z. Phys. D.* **10**, 103–104 (1988).
- [10] H.-D. Kronfeldt, G. Klemz, and D.-J. Weber. On the J-dependence of the isotope shift in the ground term of Gd I, *J. Phys. B.* **23**, 1107–1116 (1990).
- [11] H.-D. Kronfeldt and G. Klemz. J-dependence of the isotope shift in Gd I $4f^7 5d^2 6s(a, 11F)$, *Z. Phys. D.* **18**, 131–132 (1991).
- [12] C.E. Moore. *Atomic Energy Levels.* NBS, Washington, 1971.
- [13] S.L. Rolston and W.D. Phillips. Laser-Cooled Neutral Atom Frequency Standards *Proc. IEEE.* **79**, 943–951 (1991).
- [14] M. Walhout, U. Sterr, A. Witte, and S.L. Rolston. Lifetime of the metastable $6s'[1/2]_0$ clock state in xenon *Opt. Lett.* **20**, 1192–1194 (1995).
- [15] F. Schneider. *Isotopieverschiebung und Hyperfeinstruktur von stabilen und radioaktiven Xénonisotopen.* PhD thesis, Freie Universität Berlin, 1984.

- [16] B. Cagnac, M.D. Plimmer, L. Julien, and F. Biraben. The hydrogen atom : a tool for metrology *Reports on Progress in Physics*. **57**, 853–893 (1994).
- [17] S. Bourzeix, B. de Beauvoir, F. Nez, M.D. Plimmer, F. De Tomasi, L. Julien, and F. Biraben. High resolution spectroscopy of the hydrogen atom : determination of the 1S Lamb shift *Phys. Rev. Lett.* **76**, 384–387 (1996).
- [18] B. de Beauvoir, F. Nez, L. Julien, B. Cagnac, F. Biraben, D. Touahri, L. Hilico, O. Acef, A. Clairon, and J.J. Zondy. Absolute frequency measurement of the 2S-8S-D transitions in hydrogen and deuterium : new determination of the Rydberg constant *Phys. Rev. Lett.* **78**, 440–443 (1997).
- [19] M. Niering, R. Holzwarth, J. Reichert, P. Pokasov, Th. Udem, M. Weitz, T.W. Hänsch, P. Lemonde, G. Santarelli, M. Abgrall, P. Laurent, C. Salomon, and A. Clairon. Measurement of the hydrogen 1s-2s transition frequency by phase coherent comparison with a microwave cesium fountain clock *Phys. Rev. Lett.* **84**, 5496–5499 (2000).
- [20] K.S.E. Eikema, J. Walz, and T.W. Hänsch. Continuous Wave Coherent Lyman- α Radiation *Phys. Rev. Lett.* **83**, 3828–3831 (1999).
- [21] C.L. Cesar, D.G. Fried, T.C. Killian, A.D. Polcyn, J.C. Sandberg, I.A. Yu, T.J. Greytak, and D. Kleppner. Two-Photon Spectroscopy of Trapped Atomic Hydrogen *Phys. Rev. Lett.* **77**, 255–258 (1996).
- [22] M.G. Boshier, P.E.G. Baird, C.J. Foot, E.A. Hinds, M.D. Plimmer, D.N. Stacey, J.B. Swan, D.A. Tate, D.M. Warrington, and G.K. Woodgate. Precision cw laser spectroscopy of hydrogen and deuterium. In W. Persson et S. Svanberg., editor, *Laser Spectroscopy VIII : Proceedings of the Eighth International Conference on Laser Spectroscopy, Åre, Suède, juin 22-26, 1987*, pages 18–21. Springer-Verlag, 1987.
- [23] C. Wieman and T.W. Hänsch. Precision measurement of the 1S Lamb shift and of the 1S-2S isotope shift of hydrogen and deuterium. *Phys. Rev. A*. **22**, 192–205 (1980).
- [24] D.J. Berkeland. *A Precise Measurement of Lamb shifts in Hydrogen*. PhD thesis, Yale University, 1995.
- [25] J.C. Garreau, M. Allegrini, L. Julien, and F. Biraben. High Resoluton of the Hydrogen Atom I. Method and experiment. *J. Phys. France*. **51**, 2263–2274 (1990).
- [26] J.C. Garreau, M. Allegrini, L. Julien, and F. Biraben. High Resoluton of the Hydrogen Atom II. Study of the line profiles *J. Phys. France*. **51**, 2275–2292 (1990).
- [27] J.C. Garreau, M. Allegrini, L. Julien, and F. Biraben. High Resoluton of the Hydrogen Atom III. Wavelength comparison and Rydberg constant determination. *J. Phys. France*. **51**, 2293–2306 (1990).
- [28] R.W.P. Drever, J.L. Hall, F.V. Kowalski, J. Hough, G.M. Ford, A.J. Munley, and H. Ward. Laser phase and frequency stabilization using an optical resonator *Appl. Phys. B*. **31**, 97–105 (1983).
- [29] F. Nez. Chaîne de fréquence optique pour mesurer les transitions 2S-8S/D dans l’atome d’hydrogène ; mesure de la constante de Rydberg en unité de fréquence, 1993. Thèse, université Paris VI.

- [30] C. Schwob, L. Jozefowski, B. de Beauvoir, L. Hilico, F. Nez, L. Julien, F. Biraben, O. Acef, and A. Clairon. Optical frequency measurement of the 2S-12D transitions in hydrogen and deuterium : Rydberg constant and Lamb shift determinations *Phys. Rev. Lett.* **82**, 4960–4963 (1999).
- [31] C. Schwob, L. Jozefowski, B. de Beauvoir, L. Hilico, F. Nez, L. Julien, F. Biraben, O. Acef, J.-J. Zondy, and A. Clairon. Erratum : Optical frequency measurement of the 2S-12D transitions in hydrogen and deuterium : Rydberg constant and Lamb shift determinations *Phys. Rev. Lett.* **86**, 4193 (2001).
- [32] B. de Beauvoir, C. Schwob, O. Acef, L. Jozefowski, L. Hilico, F. Nez, L. Julien, A. Clairon, and F. Biraben. Metrology of the hydrogen and deuterium atoms : Determination of the Rydberg constant and Lamb shifts *Eur. Phys. J. D.* **12**, 61–93 (2000).
- [33] Peter J. Mohr and Barry N. Taylor. CODATA Recommended Values of the Fundamental Physical Constants : 1998 *Rev. Mod. Phys.* **72**, 351–495 (2000).
- [34] Lia Matos, Kendra Vant, Julia Steinberger, Cort Johnson, Nadia Feraoun, Lorenz Willman, Thomas Greytak, and Daniel Kleppner. Spectroscopy of Ultracold Hydrogen, 2002. ICAP 2002, Cambridge, Massachusetts, juillet 28- août 2. Edité par H.R. Sadeghpour, D.E. Pritchard et H.J. Heller. (World Scientific, Singapore 2002) Poster D3.
- [35] J.L. Flowers, H.A. Klein, D.J.E. Knight, and H. Margolis. Hyrdogenic systems for calculable frequency standards : status and options.
- [36] J.C. DeVries, D. Kleppner, and T.W. Ducas. Millimeter-Wave Measurement of the Rydberg Frequency. PSAS 2000. Hydrogen atom II : Preicision Physics of Simple Atomic Systems. Castiglione della Pescaia, Italie, 1-3 juin, 2002. Poster I Hydrogen Atom P1.
- [37] S. Bourzeix, B. de Beauvoir, F. Nez, F. de Tomasi, L. Julien, and F. Biraben. Ultra-violet light generation at 205 nm by two frequency doubling steps of a cw titanium-sapphire laser *Opt. Commun.* **133**, 239–244 (1997).
- [38] S. Bourzeix. Laser continu à 205 nm : application à la mesure du déplacement de Lamb dans l’hydrogène., 1995. Thèse, université Paris VI.
- [39] M. Weitz, A. Huber, F. Schmidt-Kaler, D. Leibfried, and T.W. Hänsch. Precision Measurement of the Hydrogen and Deuterium 1S Ground State lamb Shift, *Phys. Rev. Lett.* **72**, 328–331 (1994).
- [40] G. Hagel, R. Battesti, F. Nez, L. Julien, and F. Biraben. Observation of a motional Stark effect to determine the second order Doppler effect *Phys. Rev. Lett.* **89**, 203001–203004 (2002).
- [41] S.T. Cundiff, J. Ye, and J.L. Hall. Optical frequency synthesis based on mode-locked lasers *Rev. Sci. Instr.* **72**, 1–23 (2001).
- [42] M.-A. Bouchiat and C. Bouchiat. Parity violation in atoms *Rep. Prog. Phys.* **60**, 1351–1396 (1997).
- [43] M.A. Bouchiat, J. Guéna, L. Hunter, and L. Pottier. Observation of Parity Violation in Cesium *Phys. Lett.* **117B**, 358–364 (1982).
- [44] M.A. Bouchiat, J. Guéna, L. Hunter, and L. Pottier. New observation of a parity violation in atomic cesium *Phys. Lett.* **134B**, 463–468 (1984).

- [45] M.A. Bouchiat, J. Guéna, L. Hunter, and L. Pottier. Atomic parity violation measurements in the highly forbidden $6S_{1/2} - 7S_{1/2}$ caesium transition. III. Data acquisition and processing. Results and implications. *J. Physique*. **47**, 1709–1730 (1986).
- [46] M.A. Bouchiat, Ph. Jacquier, M. Lintz, and L. Pottier. Parity violation in forbidden transitions : detection of the electroweak alignment or polarization in the upper state by stimulated emission. *Opt. Commun.* **56**, 100–106 (1985).
- [47] J. Guéna, D. Chauvat, Ph. Jacquier, E. Jahier, M. Lintz, S. Sanguinetti, A. Wasan, M.A. Bouchiat, A.V. Papoyan, and D. Sarkisyan. A new manifestation of atomic parity violation in cesium : a chiral optical gain induced by linearly polarized 6s-7s excitation *Phys. Rev. Lett.* **90**, 143001 (2003).
- [48] C.S. Wood, S.C. Bennett, J.L. Roberts, D. Cho, and C.E. Wieman. Precision measurement of parity nonconservation in cesium *Can. J. Phys.* **77**, 7–75 (1999).
- [49] M.A. Bouchiat, J. Guéna, Ph. Jacquier, M. Lintz, and M.D. Plimmer. Two beam linear magneto-optical spectroscopy of atomic transitions between short lived states *Z. Phys. D*. **33**, 89–95 (1995).
- [50] D. Chauvat. Innovation et optimisation d’une méthode de polarimétrie pompe-sonde avec des faisceaux lasers impulsifs en vue d’une mesure précise de violation de la parité dans l’atome de césium., 1997. Thèse, Université Paris-Sud.
- [51] M.A. Bouchiat, D. Chauvat, J. Guéna, Ph. Jacquier, M. Lintz, and M.D. Plimmer. High precision balanced mode polarimetry with a pulsed laser beam *Opt. Commun.* **119**, 403–414 (1995).
- [52] J. Guéna, D. Chauvat, Ph. Jacquier M. Lintz, M.D. Plimmer, and M.A. Bouchiat. Differential-mode polarimetry with pulsed lasers : high-precision zero adjustment *J. Opt. Soc. Am. B*. **14**, 271–284 (1997).
- [53] D. Chauvat, J. Guéna, Ph. Jacquier, M. Lintz, M.A. Bouchiat, M.D. Plimmer, and C.W. Goodwin. Magnification of a tiny polarisation rotation by a dichroic plate in balanced mode polarimetry *Opt. Commun.* **138**, 249–252 (1997).
- [54] J. Guéna, D. Chauvat, Ph. Jacquier, M. Lintz, M.D. Plimmer, and M.A. Bouchiat. Sensitive pulsed pump-probe atomic polarimetry for parity-violation measurements in caesium *Quantum Semiclass. Opt.* **10**, 733–752 (1998).
- [55] S.C. Bennett and C.E. Wieman. Measurement of the $6s \rightarrow 7s$ transition polarizability in atomic cesium and an improved test of the standard model *Phys. Rev. Lett.* **82**, 2484–2487 (1999).
- [56] C.S. Wood, S.C. Bennett, D. Cho, B.P. Masterson, J.L. Roberts, C.E. Tanner, and C.E. Wieman. Measurement of parity nonconservation and an anapole moment in cesium *Science*. **275**, 1759–1763 (1997).
- [57] M.A. Bouchiat. Atomic parity violation : past, present status and future perspectives. In Franck Maas, editor, *PAVI 2002 From Parity Violation to Hadronic Structure and more...* World Scientific, 2003.
- [58] J. Guéna. Nouvelle manifestation de la violation de la parité dans l’atome de césium : un gain optique chiral induit par excitation plane de la transition $6S-7S$. Séminaire au Laboratoire Kastler Brossel, le 25 février 03.

- [59] E. Frétel. Spectroscopie à deux photons d'atomes de rubidium dans un piège magnéto-optique, 1997. Thèse. Conservatoire National des Arts et Métiers.
- [60] J. Guéna, D. Chauvat, Ph. Jacquier, M. Lintz, M.A. Bouchiat, and M.D. Plimmer. Polarimetry techniques revisited : how to detect parity violation in a highly forbidden transition using a pump-probe scheme, 1996. ZICAP Fifteenth International Conference on Atomic Physics and Zeeman Effect Centenary, Amsterdam, Pays-Bas, août 1996. Poster TuA-8.
- [61] S.A. Lee, J. Helmke, and J.L. Hall. High resolution two-photon spectroscopy of Rb Rydberg levels, 1979. Laser Spectroscopy IV, Proceedings of the Fourth International Conference on Laser Spectroscopy. Ed. H. Walther et H. Rothe. Springer Ser. Opt. Sci 21 (Springer Berlin, Heidelberg 1979) pp. 130-141.
- [62] F. Nez, F. Biraben, R. Felder, and Y. Millerioux. Optical frequency determination of the hyperfine components of the $5S_{1/2}-5D_{3/2}$ two-photon transitions in rubidium *Optics Commun.* **102**, 432–438 (1993).
- [63] Y. Millerioux, D. Touahri, L. Hilico, A. Clairon, R. Felder, F. Biraben, and B. de Beauvoir. Towards an accurate frequency standard at $\lambda=778$ nm using a laser diode stabilized on a hyperfine component of the Doppler-free two-photon transitions in rubidium, *Optics Commun.* **108**, 91–96 (1994).
- [64] M. Poulin, C. Latrasse, N. Cyr, and M. Têtu. An absolute frequency reference at 192.6 THz (1556 nm) based on a two-photon absorption line of rubidium at 778 nm for WDM communication systems, *IEEE Photonics Technology Letters.* **9(12)**, 1631–1633 (1997).
- [65] M.J. Snadden, A.S. Bell E. Riis, and A.I. Ferguson. Two-photon spectroscopy of laser-cooled rb using a mode-locked laser. *Opt. Commun.* **125**, 70–76 (1996).
- [66] E. Frétel, S. Guellati, M.D. Plimmer, P. Juncar, and M.E. Himbert. Two photon spectroscopy of the 5S-5D transitions in rubidium, 1996. ZICAP Fifteenth International Conference on Atomic Physics and Zeeman Effect Centenary, Amsterdam, Pays-Bas, août 1996. Poster TuG-6.
- [67] D. Chagniot. Réalisation de deux références de longueur d'onde à 778 nm, 1998. Mémoire d'ingénieur Cnam.
- [68] L. Hilico. Mesures de fréquences et calculs de haute précision en physique atomique et moléculaire. Habilitation à Diriger des Recherches. Université d'Evry Val d'Essonne. Soutenue le 15 novembre 02.
- [69] R. Battesti, P. Cladé, C. Schwob, B. Grémaud, S. Guellati, F. Nez, L. Julien, and F. Biraben. Measurement of h/m_{Rb} with Ultracold Atoms, 2002. Conference on Precision Electromagnetic Measurements (CPEM 2002) Ottawa, Canada, 16-21 June 2002. Poster WeP10.
- [70] C. Audoin and B. Guinot. *Les fondements de la mesure du temps*. Masson, 1998. p.135.
- [71] G. Santarelli, P. Laurent, P. Lemonde, A. Clairon, A. G. Mann, S. Chang, A.N. Luiten, and C. Salomon. Quantum projection noise in an atomic fountain : A high stability cesium frequency standard *Phys. Rev. Lett.* **82**, 4619–4622 (1999).
- [72] P. Gill (Ed.). *Proceedings of the 6th Symposium on Frequency Standards and Metrology, St. Andrews Scotland, 9-14 September 01*. World Scientific, 2002.
- [73] Différents auteurs. Proceedings of the conference CPEM'02, Ottawa, Canada *IEEE Trans. Instr. Meas.* **52**, 225–651 (2003).

- [74] M.D. Plimmer. Optical frequency standards : molecules, atoms or ions ?, 21 mars 2002. Symposium TIME (Trapped Ions for Measurement and Enterprise) organisé par le Département du commerce et de l'industrie, Royaume Uni. National Physical Laboratory, Teddington, Angleterre. Conférence invitée.
- [75] M.D. Plimmer. Optical frequency standards based on molecules atoms and ions. Revue invitée, à paraître dans *Comm. At. Mol. Opt. Phys.* en 2004.
- [76] O. Acef, J.-J. Zondy, M. Abed, G.D. Rovera, A.H. Gérard, A. Clairon, Ph. Laurent, Y. Millerioux, and P. Juncar. A CO₂ to visible optical frequency synthesis chain : accurate measurement of the 473 THz HeNe/I₂ laser. *Opt. Commun.* **97**, 29–34 (1993).
- [77] A. Amy-Klein, 2002. Habilitation à Diriger des Recherches. Université Paris XIII.
- [78] T.J. Quinn. Practical realization of the definition of the metre(1997). *Metrologia.* **36**, 211–244 (1999).
- [79] M. de Labachellerie, K. Nakagawa, Y. Awaji, and M. Ohtsu. High frequency stability laser at 1.5 μm using Doppler-free molecular lines *Opt. Lett.* **20**, 572–574 (1995).
- [80] A. Bruner, V. Mahal, I. Kiryushev, A. Arie, M.A. Arbore, and M.M. Fejer. Frequency stability at the kilohertz level of a rubidium-locked diode at 192.114 THz, *Appl. Opt.* **37**, 6410–6414 (1998).
- [81] L. Abramova, Yu. Zakharenko, V. Fedorine, T. Blajev, S. Kartaleva, H. Karlsson, Gh. Popescu, A. Chartier, and J.-M. Chartier. International comparisons of HeNe lasers stabilized with ¹²⁷I₂ at $\lambda \approx 633$ nm (July 1993 to September 1995) Part VI : Comparison of VNIIM(Russian Federation), NCM(Bulgaria), NMS(Norway), NILPRP(Romania) and BIPM lasers at $\lambda \approx 633$ nm. *Metrologia.* **37**, 115–120 (2000).
- [82] R. Holzwarth, A. Yu. Nevsky, M. Zimmermann, Th. Udem, T.W. Hänsch, J. von Zanthier, H. Walther, J.C. Knight, W.J. Wadsworth, P. St. J. Russell, M.N. Skvortsov, and S.N. Bagayev. Absolute frequency measurement of iodine lines with a femtosecond optical synthesizer. *Appl. Phys. B.* **73**, 269–271 (2001).
- [83] W.-Y. Cheng, L. Chen, T.H. Yoon, John L. Hall, and Jun Ye. Sub-doppler molecular iodine transitions near the dissociation limit (523 to 498 nm) *Opt. Lett.* **27**, 571–573 (2002).
- [84] M.S. Fee, S. Chu, A.P. Mills, E.D. Shaw, K. Danzmann, R.J. Chichester, and D.M. Zuckerma. Measurement of the Positronium 1 ³S₁-2 ³S₁ Interval by Continuous-wave Two-photon Excitation *Phys. Rev. A.* **48**, 192–219 (1993).
- [85] Ch. Grain, A. Shelkovnikov, A. Amy-Klein, R.J. Butcher, and Ch. Chardonnet. High-sensitivity detection of two-photon Ramsey fringes at 30 THz by frequency-comb assisted stimulated emission *IEEE J. Quant. Elec.* **38**, 1406–1411 (2002).
- [86] V. Bernard, C. Daussy, G. Nogue, L. Constantin, P.E. Durand, A. Amy-Klein, A. Van Lerberghe, and C. Chardonnet. CO₂ laser stabilization to the 0.1 Hz level using external electrooptic modulation *IEEE J. Quant. Elec.* **33**, 1282–1287 (1997).
- [87] S.I. Units. Livre disponible auprès du BIPM, téléchargeable à partir de leur site www.bipm.org.
- [88] Ch. Daussy, T. Marrel, A. Amy-Klein, C.T. Nguyen, Ch. J. Bordé, and Ch. Chardonnet. Limit on the parity nonconserving energy difference between the enantiomers of a chiral molecule by laser spectroscopy *Phys. Rev. Lett.* **83**, 1554–1557 (1999).

- [89] Atsushi Onae, Takeshi Ikegami, Kazuhiko Sugiyama, Feng-Lei Hong, Kaoru Minoshima, Hirokazu Matsumoto, Ken'ichi Nakagawa, Makoto Yoshida, and Shinichi Harada. Optical frequency link between an acetylene stabilized laser at 1542 nm and an Rb stabilized laser at 778 nm using a two-color mode-locked fiber laser *Opt. Commun.* **183**, 181–187 (2000).
- [90] Ch.J. Bordé, G. Camy, B. Descomps, J.-P. Descoubes, and J. Vigué. High precision saturation spectroscopy of $^{127}\text{I}_2$ with argon lasers at 5145 Å and 5017 Å : I - Main resonances, *J. Physique.* **42**, 1393–1411 (1981).
- [91] B. Bodermann, H. Knöckel, E. Tiemann, W. Ubachs, and R. van Dierendonck. An accurate secondary frequency standard from 515-815 nm : improved potentials for the B-X system in molecular iodine $^{127}\text{I}_2$. ICAP2000, Firenze, June 4-9, poster abstract B 40. Le logiciel est disponible chez www.toptica.com.
- [92] S. Gerstenkorn and P. Luc. Atlas du spectre d'absorption de la molécule d'iode Laboratoire Aimé Cotton, CNRS II, 1978.
- [93] T. Badr, S. Guérandel, M.D. Plimmer, P. Juncar, and M.E. Himbert. Improved frequency measurement and isotope shift of the $4d^95s\ ^2D_{5/2} \rightarrow 4d^{10}6p\ ^2P_{3/2}$ transition in silver by laser heterodyne spectroscopy *Eur. Phys. J. D.* **14**, 39–42 (2001).
- [94] H. Knoeckel. Communication privée.
- [95] F.M.H. Cromptvoets, R.T. Jongma, H.L. Bethelm, A.J.A. van Roij, and G. Meijer. Longitudinal focusing and cooling of a molecular beam *Phys. Rev. Lett.* **89**, 093004–1–093004–4 (2002).
- [96] Robert deCarvalho, John M. Doyle, Bretislav Friedrich, Thierry Guillet, Jinha Kim, David Patterson, and Jonathan D. Weinstein. Buffer-gas loaded magnetic traps for atoms and molecules : a primer. *Eur. Phys. J. D.* **7**, 289–309 (1999).
- [97] H. Dehmelt. Mono-ion oscillator as potential ultimate laser frequency standard, *IEEE Trans. Instrum. Meas.* **IM-31**, 83–87 (1982).
- [98] U. Tanaka, S. Bize, C.E. Tanner, R.E. Drullinger, S.A. Diddams, L. Hollberg, W.M. Itano, D.J. Wineland, and J.C. Bergquist. The $^{199}\text{Hg}^+$ single ion optical clock : recent progress *J. Phys. B.* **36**, 545–551 (2003).
- [99] H.S. Margolis, G. Huang, G.P. Barwood, S.N. Lea, H.A. Klein, W.R.C. Rowley, P. Gill, and R.S. Windeler. Absolute frequency measurement of the 674-nm $^{88}\text{Sr}^+$ clock transition using a femtosecond frequency comb, *Phys. Rev. A.* **67**, 032501(5) (2003).
- [100] B.G. Whitford, K.J. Siemsen, A.A. Madej, and J.D. Sankey. Absolute frequency measurement of the narrow-linewidth 24-THz $D - D$ transition of a single laser-cooled barium ion. *Opt. Lett.* **19**, 356–358 (1994).
- [101] P. Gill, H.A. Klein, A.P. Levick, M. Roberts, W.R.C. Rowley, and P. Taylor. Measurement of the $^2S_{1/2} - ^2D_{5/2}$ 411-nm interval in laser-cooled trapped $^{172}\text{Yb}^+$ ions, *Phys. Rev. A.* **52**, R909–R912 (1995).
- [102] M. Roberts, P. Taylor, G.P. Barwood, P. Gill, H.A. Klein, and W.R.C. Rowley. Observation of an Electric Octupole Transition in a Single Ion. *Phys. Rev. Lett.* **78**, 1876–1879 (1997).
- [103] Thomas Becker, Joachim von Zanthier, Ekkehard Peik, and Christian Tamm. Optische Frequenznormale mit gespeicherten Ionen *Physik Journal.* **1**, 47–53 (2003).

- [104] P.J. Blythe, S.A. Webster, H.S. Margolis, S.N. Lea, G. Huang, S.-K. Choi, W.R.C. Rowley, P. Gill, and R.S. Windeler. Subkilohertz absolute frequency measurement of the 467-nm electric octupole transition in $^{171}\text{Yb}^+$, *Phys. Rev. A*. **67** (2003).
- [105] M. Eichenseer, A. Yu Nevsky, Ch. Schwedes, J. von Zanthier, and H. Walther. Towards an indium single-ion optical frequency standard *J. Phys. B*. **36**, 553–559 (2003).
- [106] F. Plumelle, M. Desaintfuscien, and M. Houssin. Prospect for a Ca^+ optical frequency/wavelength standard *IEEE Trans. Instrum. Meas.* **42**, 462–466 (1993).
- [107] F. Vedel. L'ion unique au repos, vers un nouvel étalon de fréquence dans le domaine optique *Bulletin du BNM*. **121**, 5–20 (2002).
- [108] B.C. Young, F.C. Cruz, W.M. Itano, and J.C. Bergquist. Visible Lasers with Subhertz Line-widths *Phys. Rev. Lett.* **82**, 3799–3802 (1999).
- [109] E.N. Fortson. The Seattle experiments with atomic vapors and single atomic ions. In B. Frois and M.A. Bouchiat, editors, *Parity Violation in atoms and polarized electron scattering*, pages 244–259. World Scientific, Singapour, 1999.
- [110] J.E. Bernard, A.A. Madej, L. Marmet, B.G. Whitford, K.J. Siemsen, and S. Cundy. Cs-based frequency measurement of a single, trapped ion transition in the visible region of the spectrum *Phys. Rev. Lett.* **82**, 3228–3231 (1999).
- [111] S.A. Webster, P. Taylor, M. Roberts, G.P. Barwood, and P. Gill. Kilohertz-resolution spectroscopy of the $^2\text{S}_{1/2} - ^2\text{F}_{7/2}$ electric octupole transition in a single $^{171}\text{Yb}^+$ ion, *Phys. Rev. A*. **65**, 052501–1–052501–9 (2002).
- [112] P.J. Blythe, S.A. Webster, K. Hosaka, and P. Gill. Systematic frequency shifts of the 467 nm electric octupole transition in $^{171}\text{Yb}^+$, *J. Phys. B*. **36**, 981–989 (2003).
- [113] W.M. Itano, J.C. Bergquist, J.J. Bollinger, J.M. Gilligan, D.J. Heinzen, F.L. Moore, M.G. Raizen, and D.J. Wineland. Quantum projection noise : Population fluctuations in two-level systems, *Phys. Rev. A*. **47**, 3554–3570 (1993).
- [114] H. Katori. Spectroscopy of strontium atoms in the Lamb-Dicke confinement,. In P. Gill, editor, *Proceedings of the 6th symposium on Frequency Standards and Metrology, St. Andrews, Fife, Scotland, 9-14 September 2001*, pages 323–330. World Scientific, Singapore, 2002.
- [115] Hidetoshi Katori, Masao Takamoto, V.G. Pal'chikov, and V.D. Ovsiannikov. Ultrastable optical clock with neutral atoms in an engineered light shift trap *Phys. Rev. Lett.* **91**, 173005–1–173005–4 (2003).
- [116] Masao Takamoto and Hidetoshi Katori. Spectroscopy of the $^1\text{S}_0 - ^3\text{P}_1$ clock transition in ^{87}Sr in an optical lattice. *Phys. Rev. Lett.* **91**, 223001–1–223001–4 (2003).
- [117] J.L. Hall, M. Zhu, and P. Buch. Prospects for using laser-prepared atomic fountains for optical frequency standards applications *J. Opt. Soc. Am.* **B6**, 2194–2205 (1989).
- [118] G. Uhlenberg, J. Dirscherl, and H. Walther. Magneto-optical trapping of silver atoms. *Phys. Rev. A*. **62**, 063404–1–063404–4 (2000).
- [119] T. Udem, S.A. Diddams, K.R. Vogel, C.W. Oates, E.A. Curtis, W.D. Lee, W.M. Itano, R.E. Drullinger, J.C. Bergquist, and L. Hollberg. Absolute frequency measurements of the Hg^+ and Ca Optical Clock transitions with a Femtosecond Laser *Phys. Rev. Lett.* **86**, 4996–4999 (2001).

- [120] C.W. Oates, F. Bondu, R.W. Fox, and L. Hollberg. A diode-laser optical frequency standard based on laser-cooled Ca atoms : Subkilohertz spectroscopy by optical shelving detection, *Eur. Phys. J. D.* **7**, 449–460 (1999).
- [121] F. Ruschewitz, J.L. Peng, H. Hinderthür, N. Schaffrath, K. Sengstock, and W. Ertmer. Subkilohertz optical spectroscopy with a time domain interferometer *Phys. Rev. Lett.* **80**, 3173–3176 (1998).
- [122] I. Courtillot, A. Quessada, R. Kovacich, A. Bruschi, D. Kolker, J.-J. Zondy, G. Rovera, and P. Lemonde. A clock transition for a future optical frequency standard with trapped atoms. *Phys. Rev. A.* **68**, 030501 (2003).
- [123] T. Kuwamoto, K. Honda, Y. Takahashi, and T. Yabuzaki. Magneto-optical trapping of Yb atoms using an intercombination transition *Phys. Rev. A.* **60**, R745–R748 (1999).
- [124] F. Riehle, G. Wilpers, U. Sterr, T. Binnewies, and J.E. Helmke. Calcium Optical Frequency Standard. In P. Gill, editor, *Proceedings of the 6th symposium on Frequency Standards and Metrology, St. Andrews, Fife, Scotland, 9-14 September 2001*, pages 339–346. World Scientific, Singapore, 2002.
- [125] G. Wilpers, T. Binnewies, C. Degenhardt, U. Sterr, J. Helmke, and F. Riehle. An optical clock with ultracold neutral atoms. *Phys. Rev. Lett.* **89**, 230801–1–23801–4 (2002).
- [126] K.-A. Suominen, M. Machholm, and P.S. Julienne. Cold collisions between laser-cooled magnesium atoms *Physica Scripta.* **T95**, 58–61 (2001).
- [127] S.N. Bagayev, V.I. Baraulya, A.E. Bonert, A.N. Goncharov, M.R. Seidaliev, and S.A. Farnosov. A radiation source at 457 nm for high-resolution spectroscopy of a magnesium atom, *Quantum Electron.* **31(6)**, 495–499 (2001).
- [128] K.R. Vogel, T.P. Dinneen, A. Gallagher, and J.L. Hall. Experiments with strontium in a vapor cell magneto-optic trap, *Proc. SPIE Int. Soc. Opt. Eng.* **3270**, 77–84 (1998).
- [129] H. Katori, T. Ido, Y. Isoya, and M. K-Gonokami. Magneto-optical trapping and cooling of Strontium atoms down to the photon recoil temperature *Phys. Rev. Lett.* **82**, 1116–1119 (1999).
- [130] Takashi Mukaiyama, Hidetoshi Katori, Tetsuya Ido, Ying Li, and Makoto Kuwata-Gonokami. Recoil-Limited Laser Cooling of ^{87}Sr Atoms near the Fermi Temperature *Phys. Rev. Lett.* **90**, 113002–1–113002–4 (2003).
- [131] J.H. Broadhurst, M.E. Cage, D.L. Clark, G.W. Greenlees, J.A.R. Griffith, and G.R. Isaak. High resolution measurements of isotope shifts and hyperfine splittings for ytterbium using a cw tunable laser. *J. Phys. B.* **7**, L513–L517 (1974).
- [132] www.cofc.kriss.re.kr Le site Internet du Centre for Optical Frequency Control, Korea Institute of Standards and Science.
- [133] S. Guérandel. Etude et réalisation d’un jet d’atomes d’argent métastables : application à la spectroscopie laser de haute résolution, 1999. Thèse, Cnam.
- [134] P.L. Bender, J.L. Hall, R.H. Garstang, F.M.J. Pichanick, W.W. Smith, R.L. Barger, and J.B. West. Candidates for two-photon optical frequency standards. *Bull. Am. Phys. Soc.* **21**, 599 (1976).

- [135] Y. Louyer. Développement des sources lasers à 328 nm et 661 nm : application au refoi-dissement laser et à la réalisation d'une horloge optique basée sur l'atome d'argent, 2003. Thèse, Cnam, Paris.
- [136] A.G. Blachman, D.A. Landman, and A. Lurio. Hyperfine structure $^2D_{5/2}$ and $^4F_{9/2}$ states of Ag^{107} and Ag^{109} *Phys. Rev.* **150**, 59–68 (1966).
- [137] H.J. Metcalf and P. van der Straten. *Laser Cooling and Trapping*. Springer, 1999.
- [138] J. Dirscherl. *Laserspektroskopie und Einfang von Silberatomen in einer magneto-optischen Falle*. PhD thesis, Ludwig-Maximilians-Universität, Munich, 1995. Traduction en français par I. Boudon, S. Guérandel et M.D. Plimmer.
- [139] G. Uhlenberg. *Einfang von Silberatomen in einer magneto-optischen Strahlungsdruckfalle*. PhD thesis, Ludwig-Maximilians-Universität, Munich, 2000. Traduction en français par I. Lherminier et M.D. Plimmer.
- [140] T. Badr. Amélioration de la pureté spectrale d'un laser à colorant : application à la spectroscopie haute résolution de l'argent, 2001. Thèse, Université Paris VI.
- [141] S. Challemel du Rozier. Stabilisation à long terme de la fréquence d'un laser à colorant. application à la réalisation d'une horloge optique basée sur une transition de l'atome de l'argent, 2001. Mémoire d'ingénieur Cnam.
- [142] J.C. Pickering and V. Zilio. New accurate data for the spectrum of neutral silver *Eur. Phys. J. D.* **13**, 181–185 (2001).
- [143] S. Guérandel, T. Badr, M.D. Plimmer, P. Juncar, and M.E. Himbert. Frequency measurement, isotope shift and hyperfine structure of the $4d^95s\ ^2D_{5/2} \rightarrow 4d^{10}6p\ ^2P_{3/2}$ transition in atomic silver *Eur. Phys. J. D.* **10**, 33–38 (2000).
- [144] R.D. Cowan. *The Theory of Atomic Structure and Spectra*. University of California Press, Berkeley, 1981.
- [145] D.M. Benton, J.L. Cooke, and J.A.R. Griffith. High resolution laser spectroscopy measurements of hyperfine structure of ^{138}La *J. Phys. B.* **27**, 4365–4372 (1994).
- [146] F. Biraben, J.C. Garreau, L. Julien, and M. Allegrini. A metastable hydrogen atomic beam : construction and characteristics *Rev. Sci. Instr.* **61**, 1468–1473 (1990).
- [147] P.L. Larkins and P. Hannaford. Precision measurement of the energy of the $4d^95s^2\ ^2D_{5/2}$ metastable level in Ag I *Z. Phys. D.* **32**, 167–172 (1994).
- [148] E. Rasmussen. Untersuchungen über die Spektren des Silbers *Det. Kgl. Danske Videnskab., Math-fys. Medd. (Copenhagen)*. **18**, 1–32 (1940).
- [149] U. Dinger, J. Eberz, G. Huber, R. Menges, R. Kirchner, O. Klepper, T. Kühl, and D. Marx. Nuclear moments and change in the charge radii of neutron-deficient silver isotopes *Nucl. Phys.* **A503**, 331–348 (1989).
- [150] S. Gerstenkorn and P. Luc. Absolute iodine (I_2) standards measured by means of Fourier transform spectroscopy *Rev. de Phys. Appl.* **14**, 791–794 (1979).
- [151] J. Bengtsson, J. Larsson, and S. Svanberg. Hyperfine structure and radiative-lifetime determination for the $4d^{10}6p\ ^2P$ states of neutral silver using pulsed laser spectroscopy *Phys. Rev. A.* **42**, 5457–5463 (1990).

- [152] Mark D. Plimmer, Thomas Badr, Stéphane Guérandel, Yann Louyer, Sylvestre Challemel du Rozier, Patrick Juncar, Marc E. Himbert, Joshua D. Silver François Biraben, François Nez, and Gaëtan Hagel. Progress towards optical frequency standards based on two-photon transitions in atomic silver. A paraître dans SPIE Proceedings LTL/ILLA'03.
- [153] J. Gagnière. Optimisation de l'asservissement en fréquence à court terme d'un laser à colorant continûment accordable, 1992. Mémoire d'ingénieur, Cnam, Paris.
- [154] G. Nave. Communication privée. Pour des résultats plus récents, prière de contacter gnave@nist.gov.
- [155] L. Fornasiero, T. Kellner, S. Kück, J.P. Meyn, P.E.-A. Möbert, and G. Huber. Excited state absorption and stimulated emission of Nd^{3+} in crystals III : $\text{La Sc}_3(\text{BO}_3)_4$, CaWO_4 , and YLiF_4 . *Appl. Phys. B.* **68**, 67–72 (1999).
- [156] Y. Louyer, F. Balembois, M.D. Plimmer, T. Badr, P. Georges, P. Juncar, and M.E. Himbert. Efficient cw operation of diode-pumped Nd :YLF lasers at 1312.0 and 1322.6 nm for a silver atom optical clock *Opt. Commun.* **217**, 357–362 (2003).
- [157] Y. Louyer, F. Balembois, M.D. Plimmer, T. Badr, P. Georges, P. Juncar, and M.E. Himbert. Doubled single-frequency Nd :YLF ring laser coupled to a passive, non-resonant cavity *Appl. Opt.* **43** (2004). A paraître le 10 mars.
- [158] Y. Louyer, F. Balembois, M.D. Plimmer, P. Georges, P. Juncar, and M.E. Himbert. Nd :YLF laser at 1.3 μm for calcium atom optical clocks and precision spectroscopy of hydrogenic systems *Appl. Opt.* **42**, 4867–4870 (2003).
- [159] S.A. Burrows, S. Guérandel, E.A. Hinds, F. Lison, and M.G. Boshier. Towards a precise measurement of the He^+ 2S Lamb shift. In S. Karschenboim, F.S. Pavone, F. Bassani, M. Inguscio, and T.W. Hänsch, editors, *The Hydrogen Atom : Precision Physics of Simple Atomic Systems*, pages 303–313. Springer Verlag, 2001.
- [160] Y. Louyer, F. Balembois, M.D. Plimmer, T. Badr, P. Georges, P. Juncar, and M.E. Himbert. CW Nd :YLF lasers for cold atom optical clocks *Trends in Optics and Photonics (TOPS)*. **83** (2003). Proceedings of the conference Advanced Solid State Photonics ASSP 2003.
- [161] T. Esslinger M. Greiner, O. Mandel, T.W. Hänsch, and I. Bloch. Quantum Phase Transition from a Superfluid to a Mott Insulator in a Gas of Ultracold Atoms *Nature*. **415**, 39–44 (2002).
- [162] R.G. Beausoleil and T.W. Hänsch. Ultrahigh-resolution two-photon optical ramsey spectroscopy of an atomic fountain *Phys. Rev. A.* **33**, 1661–1670 (1986).
- [163] G.J. Dick, J.D. Prestage, C.A. Greenhall, and L. Maleki. Local oscillator induced degradation of medium-term stability in passive atomic frequency standards. In R.L. Snyder, editor, *22nd Annual Precise Time and Time Interval (PTTI) Applications and Planning Meeting, Vienna, Virginia, December 4-6, 1990*, pages 487–508. NASA, 1991. NASA Conference Publication 3116.
- [164] P. Berthoud, E. Frétel, and P. Thomann. Bright, slow, and continuous beam of laser-cooled cesium atoms *Phys. Rev. A.* **60**, R4241–R4244 (1999).
- [165] A. Joyet, G. Mileti, P. Thomann, and G. Dudle. Continuous fountain Cs standard : stability and accuracy issues. In P. Gill, editor, *Proceedings of the 6th symposium on Frequency*

Standards and Metrology, St. Andrews, Fife, Scotland, 9-14 September 2001, pages 273–280. World Scientific, Singapore, 2002.

Annexe : Principales Publications

Cette annexe regroupe les principaux articles correspondant au travail présenté dans les chapitres 2,3 et 6 de cette synthèse.

Publications

1. B. Cagnac, M.D. Plimmer, L. Julien et F. Biraben, "The hydrogen atom : a tool for metrology", *Rep. Prog. Phys.* **57**, 853-893 (1994).
2. J. Guéna, D. Chauvat, Ph. Jacquier, M. Lintz, M.D. Plimmer and M.A. Bouchiat "Sensitive pulsed pump-probe atomic polarimetry for parity-violation measurements in caesium", *Quantum Semiclass. Opt.*, **10**, 733-752 (1998).
3. S. Guérandel, T. Badr, M.D. Plimmer, P. Juncar and M.E. Himbert "Frequency measurement, isotope shift and hyperfine structure of the $4d^9 5s \ ^2D_{5/2} \rightarrow 4d^{10} 6p \ ^2P_{3/2}$ transition in atomic silver", *Eur. Phys. J D* **10**, 33-38 (2000).
4. T. Badr, S. Guérandel, M.D. Plimmer, P. Juncar and M.E. Himbert "Improved frequency measurement and isotope shift of the $4d^9 5s \ ^2D_{5/2} \rightarrow 4d^{10} 6p \ ^2P_{3/2}$ transition in silver by laser heterodyne spectroscopy", *Eur. Phys. J D* **14**, 39-42 (2001).