



HAL
open science

Photoassociation à 2 photons de l'hélium métastable ultrafroid

Steven Moal

► **To cite this version:**

Steven Moal. Photoassociation à 2 photons de l'hélium métastable ultrafroid. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2006. Français. NNT : 2006PA066477 . tel-00840000

HAL Id: tel-00840000

<https://theses.hal.science/tel-00840000>

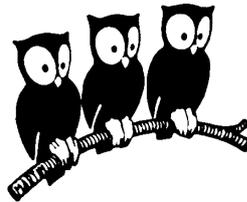
Submitted on 1 Jul 2013

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

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

DÉPARTEMENT DE PHYSIQUE
DE L'ÉCOLE NORMALE SUPÉRIEURE

LABORATOIRE KASTLER BROSSEL



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

présentée par
Steven MOAL

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

Sujet de la thèse :

PHOTOASSOCIATION À 2 PHOTONS
DE L'HÉLIUM MÉTASTABLE ULTRAFROID

Soutenue le Lundi 30 Octobre 2006 devant le jury composé de :

M.	C. COHEN-TANNOUJDI	Président
Mme	M. LEDUC	Directrice de thèse
M.	P. PILLET	Rapporteur
M.	C. WESTBROOK	Rapporteur
M.	R. COMBESCOT	Examineur
M.	W. VASSEN	Examineur
M.	A. MOSK	Membre invité

Table des matières

Introduction	7
1 Le dispositif expérimental	9
1.1 L'atome d'hélium métastable $^4\text{He}^*$	9
1.1.1 L'état métastable triplet	9
1.1.2 Les différentes collisions avec He^*	11
1.1.2.1 Les collisions Penning	11
1.1.2.2 Les collisions, sources de chauffage	11
1.2 Production et ralentissement de He^*	12
1.2.1 Le système laser	13
1.2.2 Le système à vide	13
1.3 Le piégeage magnétique et la détection	14
1.3.1 Caractéristiques du piège magnétique	14
1.3.2 Détection d'un nuage ultra-froid	16
1.3.3 La calibration de la température	17
1.3.4 Caractéristique du nuage piégé	19
1.4 Conclusion	19
2 Photoassociation à un photon dans l'hélium : nouvelles mesures	21
2.1 Principe de la photoassociation	21
2.2 Les dimères géants d'hélium	23
2.3 Acquisition des spectres de photoassociation	24
2.4 Nouveau dispositif laser	26
2.5 Mesure de l'énergie de liaison de l'état moléculaire le plus profond ($v = 0$) du potentiel 0_u^+	29
2.5.1 Corrections à l'énergie de l'état lié $v = 0$	29
2.5.2 Mesure du décalage de la raie moléculaire	30
2.5.3 Comparaison avec la théorie	31
2.6 Conclusion	31
3 La longueur de diffusion a en onde s de l'hélium métastable polarisé	33
3.1 Généralités sur les collisions froides et la longueur de diffusion	33
3.1.1 Collisions froides dans l'état électronique $^5\Sigma_g^+$	33
3.1.2 Longueur de diffusion	36
3.1.2.1 Définition	36
3.1.2.2 Pseudo-potentiel	37
3.1.2.3 Potentiels à décroissance "rapide"	37
3.2 Les valeurs théoriques de la longueur de diffusion	38

3.2.1	Le potentiel de [STÄRCK and MEYER, 1994]	38
3.2.2	Le potentiel de [GADÉA <i>et al.</i> , 2002] et [DICKINSON <i>et al.</i> , 2004]	38
3.2.3	Le potentiel de [PRZYBYTEK and JEZIORSKI, 2005]	39
3.2.4	Comparaison des différents potentiels théoriques	39
3.3	Les différentes méthodes expérimentales pour déterminer la longueur de diffusion	41
3.3.1	Mesure de la taille du condensat en expansion ballistique	41
3.3.2	Étude des modes hydrodynamiques et observation des collisions élastiques	41
3.3.3	Théorie du refroidissement évaporatif	42
3.3.4	Observation des collisions inélastiques	43
3.3.5	Déplacement lumineux de raies moléculaires	44
3.3.6	Les autres méthodes encore non utilisées sur l'He*	45
3.4	Conclusion	46
4	Effet photo-mécanique de la photoassociation : une nouvelle méthode pour mesurer a	47
4.1	Taux de photoassociation	47
4.2	Mesure des pertes d'atomes induites par PA	50
4.3	Effet mécanique induit par la photoassociation	52
4.3.1	Déplacement du nuage	52
4.3.2	Mesure de la fréquence du piège	52
4.3.3	Détermination de la longueur de diffusion a	53
4.4	Conclusion	55
5	La spectroscopie à deux photons	57
5.1	Principe de la spectroscopie à deux photons	57
5.2	Théorie de la spectroscopie à deux photons, interprétation et formule d'ajustement	59
5.3	Les différents types de signaux obtenus	60
5.3.1	La résonance noire atomes-molécules	60
5.3.2	Le doublet Autler-Townes	62
5.3.3	L'effet Raman stimulé	62
5.3.3.1	La passage du doublet Autler-Townes à l'effet Raman stimulé	63
5.3.3.2	Définition du désaccord Raman	64
5.3.4	La photoassociation frustrée	66
5.3.5	Choix de la méthode choisie pour détecter le niveau $v = 14$	66
5.4	Origine et interprétation des signaux	68
5.4.1	Optimisation du signal sur la température	68
5.4.2	Optimisation du signal sur le nombre d'atomes	69
5.4.3	Conclusion sur l'optimisation des différents signaux	71
5.4.4	Interprétation des signaux	71
5.5	Conclusion	73
6	Mesure de la longueur de diffusion a avec la résonance noire atomes-molécules	75
6.1	Mesure de $E_{v=14}$	75
6.1.1	Influence des conditions expérimentales	75
6.1.2	Détermination de $E_{v=14}$	78
6.2	Détermination de a	79

6.3	Comparaison des différentes déterminations de a	81
6.4	Conclusion	82
7	Mesure de la durée de vie de l'état $v = 14$ du potentiel ${}^5\Sigma_g^+$	83
7.1	Étude de la largeur de la résonance noire atomes-molécules	83
7.1.1	Calibration de la fréquence de Rabi du deuxième laser	83
7.1.2	Influence du moyennage sur les énergies de collision	85
7.2	Détermination de la durée de vie $\frac{1}{\gamma_2}$	87
7.2.1	Influences des intensités laser et du temps de photoassociation	88
7.2.2	Influence de la température	91
7.2.3	Lien entre la largeur du pic Raman et la durée de vie dans le nuage	92
7.2.4	Influence de la densité atomique sur la durée de vie de la molécule dans le nuage	92
7.2.5	Conclusion sur la durée de vie intrinsèque $\tau_{v=14}$ d'une molécule dans l'état $v = 14$	94
7.3	Comparaison avec différentes estimations de la durée de vie intrinsèque $\tau_{v=14}$ d'une molécule dans l'état $v = 14$	95
7.4	Conclusion	96
	Conclusion	99
A	Un effet Raman atomique	101
A.1	Principe de l'effet Raman atomique	101
A.2	Un effet atomique et non moléculaire	101
B	Observation d'un effet photo-mécanique avec deux photons	105
C	Déplacements lumineux du pic Raman	107
D	Essai de la caméra infrarouge à semi-conducteur de Xenics	109
D.1	Présentation de la caméra	109
D.2	Performances de la caméra lors des prises de données	110
D.3	Conclusions	111
E	Les déplacements lumineux des raies moléculaires : une autre mesure de a	113
	Bibliographie	123

*Ne donnez pas aux gens une clef pour comprendre le monde.
Les gens ne veulent pas ouvrir le monde, et vous défonceront
le crâne avec votre clef.*

Montherlant

*Il est inévitable, il est même juste que nos vues les plus élevées
prennent un air de folies, voire de crimes, quand elles arrivent
par fraude aux oreilles de ceux qui ne sont pas prédestinés à
les comprendre.*

Nietzsche, *Par-delà le bien et le mal*

Introduction

Il y a peu de temps, seuls des atomes alcalins avaient donné lieu à la condensation de Bose-Einstein. Mais de nombreux laboratoires dans le monde tentent d'appliquer à d'autres éléments les techniques utilisées pour atteindre la condensation de Bose-Einstein avec les alcalins (Rb, Li, Na, Cs, Yb). Parmi ceux là, les gaz rares dans leurs états métastables se révèlent des candidats intéressants et originaux. Leur spécificité, qui les rend attirants mais aussi difficiles à manipuler, réside en la très grande énergie interne qu'ils possèdent, de l'ordre de plusieurs eV. Pour des atomes dans un nuage ultra-froid, cette énergie électronique est très grande devant l'énergie externe, liée au mouvement : à une température de l'ordre du μK , le rapport entre énergie interne et énergie cinétique est de l'ordre de 10^{10} . Cette énergie peut être libérée quand l'atome métastable entre en collision avec un atome ou une surface.

Les atomes d'hélium métastable (He^*) ont une énergie interne tellement élevée, de l'ordre de 20 eV, qu'ils peuvent ioniser très efficacement tout atome ou molécule à l'état fondamental lors d'une collision, à l'exception de l'hélium et du néon, dont les seuils d'ionisation sont plus grands que 20 eV. Lorsqu'un atome d'hélium métastable rencontre un autre partenaire, il peut lui arracher un électron, et se désexciter, conformément à la réaction suivante :



où X peut être un autre atome d'hélium métastable, une molécule ou un atome quelconque. Cette réaction est appelée ionisation Penning.

En outre, la longueur de diffusion est l'unique paramètre qui caractérise complètement les collisions élastiques à basse température et qui soit adapté à la description des interactions au sein du gaz ultra-froid (voir par exemple l'article de revue [WEINER *et al.*, 1999]). Le signe de a renseigne sur le caractère attractif ($a < 0$) ou répulsif ($a > 0$) des interactions. Là encore, l'observation du condensat de Bose-Einstein a donné les premières informations sur a . Tout d'abord, elle a démontré que $a > 0$, puisque le condensat est stable. En effet, une longueur de diffusion négative aurait conduit à l'effondrement du condensat sur lui-même à cause des interactions attractives [GERTON *et al.*, 2001].

Depuis les premières observations de la condensation de Bose-Einstein de He^* , la longueur de diffusion est restée un paramètre mal connu. Cette inconnue s'avère un handicap important pour les expériences menées jusqu'à présent, comme l'étude du régime hydrodynamique dans notre équipe [LEDUC *et al.*, 2002], ou l'étude des taux d'ions émis et des processus de collisions inélastiques dans l'équipe d'Orsay [SIRJEAN, 2003]. L'incertitude sur a représente une difficulté supplémentaire pour la calibration du nombre d'atomes dans l'expérience, et donc pour la détermination des autres propriétés collisionnelles, qui nécessite la mesure précise de la densité. Ainsi, la détermination expérimentale la plus précise de a à mon entrée en thèse (courant 2003) était due à l'équipe d'Orsay ([SIRJEAN *et al.*, 2002] et [SEIDELIN *et al.*, 2003]), mais la précision de cette mesure indirecte reste tout de même faible ($a = 11.3_{-1.0}^{+2.5}$ nm). Par conséquent, que les taux de pertes par collisions inélastiques à deux ou trois corps, respectivement notés β et L , sont eux aussi mal connus et sont alors subordonnés à la connaissance de a .

Plus généralement, la mesure de a est un prélude à la compréhension fine des interactions de paires d'atomes dans le gaz froid, dans le contexte scientifique actuel ou le challenge est dicté par la possibilité de contrôler très finement ces interactions de paires. C'est pour ces raisons que notre équipe s'est orientée, au début de l'année 2002, vers des expériences de photoassociation. Cependant, le champ des expériences nouvelles à réaliser ne se limite pas à la seule mesure de la longueur de diffusion. Ainsi, des dimères géants originaux ont été découverts et étudiés lors de la précédente thèse [LÉONARD, 2003]. De plus, la possibilité ou non de produire des dimères éventuellement "doublement" métastables restait une question en suspens. Tout d'abord la spectroscopie de ce type de molécules conduirait à une compréhension approfondie des collisions élastiques entre atomes métastables. Ensuite la mesure éventuelle de la durée de vie encore inconnue de ces dimères renseignera sur les mécanismes d'auto-ionisation de type Penning, supposés responsables de sa destruction.

C'est pour ces deux raisons, l'importance de connaître a avec précision par une mesure directe et de comprendre les mécanismes des réactions Penning, que nous avons prolongé l'étude sur la photoassociation à un photon réalisée par Jérémie Léonard. Un travail préliminaire, auquel j'ai participé, a été mené en mesurant des déplacements lumineux de raies moléculaires par photoassociation à un photon qui fera l'objet de la thèse de Maximilien Portier. Puis, avec la spectroscopie à deux photons, nous avons mesuré par effet Raman l'énergie de liaison du dimère ("doublement") métastable, qui est liée à la longueur de diffusion a , afin d'en déduire sa durée de vie. Ce manuscrit expose les différentes expériences qui ont été menées dans ce but. Dans un premier chapitre, une rapide présentation est donnée sur les caractéristiques de l'hélium métastable et sur le montage expérimental utilisé. Le deuxième chapitre introduit la notion de photoassociation, à un seul photon, illustrée par quelques expériences faites dans ce contexte. La photoassociation à deux photons est abordée au troisième chapitre, avec la notion de longueur de diffusion ainsi que celle de spectroscopie Raman, accompagnées des interprétations théoriques sur les différents signaux expérimentaux obtenus. Enfin, notre mesure de la longueur de diffusion a est détaillée dans le quatrième chapitre, et comparée avec les différentes valeurs de a données par les autres groupes. La mesure de la durée de vie fait l'objet du cinquième et dernier chapitre. Trois annexes complètent ce manuscrit, la première qui présente un effet Raman atomique (mais comme il ne s'agissait pas de photoassociation, elle n'avait pas sa place dans le corps du manuscrit), la deuxième qui fait le bilan sur les essais d'imagerie réalisés sur une caméra adaptée à l'infrarouge, la troisième qui introduit brièvement une de nos publications sur la photoassociation à un photon qui a aboutie à une autre mesure de a .

Chapitre 1

Le dispositif expérimental

Ce chapitre présente dans un premier temps les caractéristiques de l'hélium métastable puis décrit en détail l'expérience, depuis la production des atomes métastables jusqu'à la détection du nuage ultra-froid. Le but premier de ce chapitre est de permettre une lecture autonome de ce mémoire. Le lecteur pourra trouver de nombreux détails complétant cette description dans la thèse de mes deux prédécesseurs Franck Pereira Dos Santos [PEREIRA DOS SANTOS, 2002] et Jérémie Léonard [LÉONARD, 2003].

Certaines mesures sont présentées, en particulier la calibration de la température du nuage thermique qui servira tout le long de cette thèse. Le nombre d'atome et la densité au centre du nuage sont aussi calibrés.

1.1 L'atome d'hélium métastable $^4\text{He}^*$

1.1.1 L'état métastable triplet

Pour les gaz rares, à la différence des alcalins, les isotopes les plus abondants ont un spin nucléaire nul, et donc pas de structure hyperfine, comme c'est le cas pour l'isotope 4 de l'hélium, qui est un boson. ^4He possède deux niveaux métastables, un niveau triplet 2^3S_1 , et un niveau singulet 1^1S_0 (voir la figure 1.1 où sont représentés quelques niveaux de l'hélium). Ici, nous nous intéressons au niveau métastable 2^3S_1 , qui se trouve à 19.8 eV au-dessus de l'état fondamental, 1^1S_0 . L'hélium métastable He^* ne peut se désexciter radiativement que par une transition de type dipolaire magnétique, ce qui explique sa très longue durée de vie de 7860 s : on peut le considérer comme stable à l'échelle de temps de nos expériences. Il peut être utilisé comme un niveau fondamental effectif pour des expériences de refroidissement laser. Mais, en raison de sa très grande énergie interne, supérieure au seuil d'ionisation de presque tous les atomes, il peut aussi se désexciter facilement par collision avec un autre atome, ou une molécule, ou encore une surface.

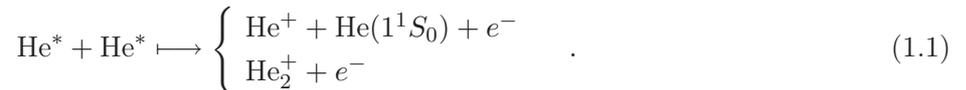
Au dessus de cet état triplet (voir la figure 1.1), se trouve le premier état triplet P , 2^3P , qui possède une structure fine, 2^3P_2 , 2^3P_1 et 2^3P_0 . La longueur d'onde correspondant à la transition atomique $2^3S_1 \rightarrow 2^3P_{0,1,2}$ est d'environ $1.083 \mu\text{m}$. La durée de vie de cet état excité est de $\tau = 98 \text{ ns}$, ce qui correspond à une largeur naturelle¹ de $\Gamma/2\pi = 1.6 \text{ MHz}$.

¹La notation $\Gamma/2\pi$ pour la largeur de cet état excité reprend celle de la partie 5.2.

1.1.2 Les différentes collisions avec He^*

1.1.2.1 Les collisions Penning

L'énergie interne des états métastables de gaz rares est toujours assez grande pour provoquer, lors d'une collision entre deux atomes métastables, l'ionisation d'un des deux atomes. Pour l'hélium 4 dans l'état 2^3S_1 , l'énergie interne est de 19.8 eV, alors que l'énergie d'ionisation est de 24.6 eV. Quand un atome métastable rencontre un autre atome métastable, la paire formée peut alors s'ioniser selon les réactions suivantes :



La première réaction est appelée ionisation Penning, et donne naissance à un ion et à un atome dans l'état fondamental. Dans la deuxième réaction, appelée ionisation associative, un ion moléculaire se forme, qui contient de l'énergie interne sous forme vibrationnelle. Les deux réactions donnent naissance à un électron, qui possède une énergie de l'ordre de 15 eV. La réaction dominante est l'ionisation Penning : le rapport de branchement de l'ionisation associative a été mesuré à une température de 1 mK par les auteurs de [MASTWIJK *et al.*, 1998] qui ont trouvé 3 %.

D'après les calculs de [FEDICHEV *et al.*, 1996], le taux de collisions ionisantes de la réaction (1.1) est réduit de quatre ordres de grandeur si les atomes sont polarisés. Cette réduction est la conséquence d'une règle de conservation du spin total au cours de la réaction. En effet, pour des atomes polarisés dans l'état de spin $2^3S_1, m_J = +1$ (J est le moment cinétique total), le spin électronique total dans le membre de gauche de la réaction (1.1) est $S = 1 + 1 = 2$, alors que celui du membre de droite est la somme de deux spins $1/2$ et d'un spin 0 pour les produits He^+ , He et e^- , et de deux spins $1/2$ pour les produits He_2^+ et e^- , ce qui ne peut produire qu'un spin $S = 0$ ou 1. Cette réaction ne peut alors avoir lieu que si les spins des atomes ne sont pas conservés pendant la collision. Le spin électronique total n'est toutefois pas un bon nombre quantique : il peut relaxer à cause de l'interaction spin-spin. Deux mécanismes de pertes dans le piège magnétique sont alors possibles :

1. Le premier mécanisme est une ionisation de type Penning induite par la relaxation des spins. Pendant la collision, l'interaction spin-spin modifie les spins des atomes, qui peuvent alors réagir selon le mécanisme d'ionisation Penning s'ils s'approchent suffisamment l'un de l'autre.
2. Le deuxième est uniquement une relaxation des spins. À l'issue de la collision, un des deux atomes de la paire, voire les deux, ne sont plus dans l'état $m_J = +1$. Ils ne sont alors plus confinés magnétiquement et s'échappent du piège.

Les références [SHLYAPNIKOV *et al.*, 1994] et [FEDICHEV *et al.*, 1996] montrent que dans la gamme des températures inférieures au mK et pour des champs magnétiques inférieurs à 100 G, le mécanisme dominant est l'ionisation Penning induite par la relaxation des spins.

1.1.2.2 Les collisions, sources de chauffage

Pour des nuages très denses, la possibilité d'avoir des collisions secondaires (entre les atomes piégés et les produits d'une collision ayant eu lieu dans le nuage) apparaît. Ces produits, qui sont en général assez énergétiques, peuvent être ici de plusieurs natures. La référence [BEIJERINCK *et al.*, 2000] examine l'effet des collisions secondaires entre les atomes métastables piégés et les différents produits des collisions Penning : ions, électrons, atomes dans l'état fondamental, ou ions moléculaires. Ces particules ne sont pas piégées et sortent rapidement du nuage avec une énergie considérablement plus grande que celle des atomes piégés. Mais leur probabilité de faire une collision avec un atome piégé n'est pas complètement

négligeable quand le nuage est suffisamment dense. Cela conduit à des pertes supplémentaires, ainsi qu'à un chauffage lié au transfert d'une partie de leur énergie aux atomes piégés.

Une autre source de pertes et de chauffage est liée à un phénomène de collisions élastiques en avalanche qui peut se produire dans un nuage très dense [SCHUSTER *et al.*, 2001] : si un atome d'énergie élevée subit une collision élastique avec un atome du nuage piégé plus froid, l'énergie est alors partagée entre les deux atomes. Chacun d'entre eux peut à son tour faire une collision élastique avec un atome piégé, et lui transférer une partie de son énergie : il se produit alors une réaction en chaîne. L'énergie de l'atome chaud initiale peut se trouver intégralement dissipée dans le nuage, et ce chauffage engendre des pertes supplémentaires par évaporation. Ces atomes chauds initiant le processus peuvent provenir :

- d'un gaz de Oort. C'est un nuage d'atomes chauds qui sont encore piégés malgré l'évaporation, et dont l'énergie est beaucoup plus grande que l'énergie moyenne de l'échantillon qui a été évaporé. Il est le résidu d'une évaporation imparfaite, qui n'aurait pas expulsé avec une efficacité de 100 % tous les atomes d'énergie supérieure à la hauteur du couteau radio-fréquence. Ce nuage est constitué d'une fraction de l'ordre du pour cent ou du pour mille des atomes initialement piégés.
- de produits des collisions à trois corps, comme les atomes qui emportent l'énergie de liaison des molécules qui sont alors formées.
- des atomes et molécules qui composent le gaz résiduel, et qui, au cours d'une collision élastique, transfèrent aux atomes piégés une impulsion relativement élevée. Si leur énergie excède la profondeur du piège, ces atomes s'échappent du piège ou déclenchent des collisions en avalanche avant de sortir du nuage piégé.

1.2 Production et ralentissement de He*

La figure 1.2 présente un schéma général de l'expérience. Le point de départ consiste à produire un jet intense d'atomes d'hélium métastable. Celui-ci est ensuite ralenti et utilisé pour accumuler des atomes froids dans un piège magnéto-optique (MOT). Ce piège constitue la première étape du refroidissement. Ensuite, les atomes froids sont transférés dans un piège purement magnéto-statique.

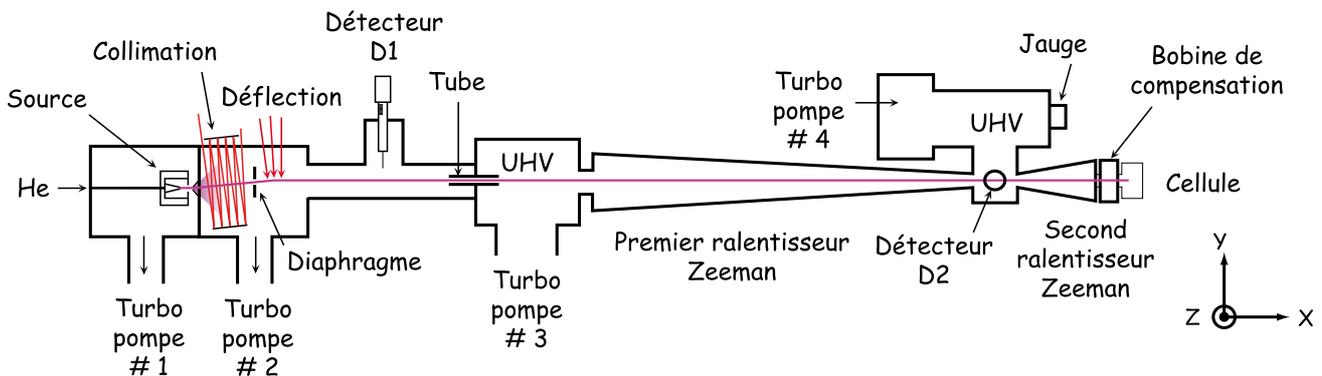


FIGURE 1.2 – Dispositif expérimental. Le jet d'hélium est collimaté, défléchi, ralenti et piégé dans une cellule en quartz.

La première étape expérimentale est probablement la plus délicate. Il s'agit de produire un jet intense d'atomes ^4He dans l'état métastable triplet. Pour cela, une décharge électrique continue est entretenue entre une cathode et une anode. Typiquement, un atome sur 10^4 sort de cette source dans l'état métastable triplet. Cette piètre efficacité est le lot commun de toutes les sources de gaz rare métastable utilisant une décharge. Lors d'un fonctionnement optimal, le flux de métastables obtenu a

été estimé à 2×10^{14} at/s/sr et la vitesse moyenne du jet atomique est de 1000 m/s, correspondant à la vitesse de capture du ralentisseur Zeeman. Cette faible vitesse est obtenue grâce au refroidissement de la source par de l'azote liquide.

Le jet atomique produit étant divergent, il est nécessaire de le "collimater" pour obtenir le flux nécessaire au piégeage d'un grand nombre d'atomes. Un faisceau laser collimaté d'intensité de l'ordre de $400 I_{sat}$ et de diamètre 2 cm est réfléchi entre deux miroirs plans quasiment parallèles qui encadrent le jet atomique.

La dernière étape de préparation du jet d'atomes métastables consiste à l'épurer de tout ce qui sort également de la source (atomes dans l'état fondamental, photons) et qui est indésirable pour la suite de l'expérience. Une nappe de lumière résonante de largeur ~ 10 cm et d'intensité $\sim 40I_{sat}$, vient alors pousser les métastables pour les aligner sur l'axe de l'expérience. Seul He* est défléchi et peut passer directement au travers du tube de pompage différentiel. Les atomes d'hélium fondamentaux restent dans la source et sont éliminés par pompage grâce à deux turbo-pompes.

La vitesse de capture de notre piège magnéto-optique (MOT) est de l'ordre de 50 m/s. Un ralentisseur à effet Zeeman est donc utilisé pour ralentir les atomes et permettre de les piéger. En pratique, deux solénoïdes successifs (appelés premier ralentisseur Zeeman et second ralentisseur Zeeman sur la figure 1.2), de longueur totale de 2.6 m, sont nécessaires afin d'éviter un croisement de niveaux. Compte tenu de la grande longueur du dispositif, le jet atomique doit avoir une divergence initiale la plus faible possible pour maintenir un taux de capture élevé dans le piège magnéto-optique à la sortie du ralentisseur Zeeman, d'où la nécessité d'une phase de collimation du jet atomique.

1.2.1 Le système laser

La collimation, la déflexion, et ensuite le refroidissement préliminaire des atomes utilisent un faisceau laser asservi sur la transition atomique $2^3S_1 \rightarrow 2^3P_2$, à 1083 nm. Ce laser est produit par une diode laser de marque SDL, construite selon la technologie DBR (Distributed Bragg Reflector) qui lui confère une largeur de raie de 3 MHz. Cette diode est montée en cavité étendue permettant d'affiner le spectre d'émission à environ 0.3 MHz. L'asservissement en fréquence est réalisé par rétroaction sur le courant de la diode, ainsi que sur la position du miroir de sortie de cavité, via une cale piézo-électrique. Le signal d'erreur utilisé pour ces asservissements est dérivé à partir de l'absorption saturée du laser par une cellule de gaz de ^4He . Une onde radio-fréquence est entretenue dans la cellule, ce qui assure la production d'atomes dans l'état métastable et permet l'observation de l'absorption saturée à 1083 nm. Une seule diode laser est nécessaire pour l'ensemble de l'expérience. Elle est utilisée pour injecter deux amplificateurs à fibre de marque IRE-Polus et Keopsys, dopés à l'ytterbium, et produisant 1 Watt chacun.

1.2.2 Le système à vide

La chambre source est l'enceinte à vide dans laquelle la décharge fonctionne. En raison de la faible efficacité de production d'atomes métastables, une très grande quantité d'hélium doit être utilisée, qui doit ensuite être évacuée efficacement pour ne pas détériorer le vide dans le reste de l'expérience. La chambre source est donc pompée par une pompe turbo Varian V 2000 HT (vitesse de pompage ~ 2000 L/s pour He) maintenant une pression de 2×10^{-5} mbar. De même dans la chambre de collimation et déflexion, la déflexion sélectionnant uniquement les atomes He*, les atomes fondamentaux sont pompés par une pompe turbo Pfeiffer TMH 521 P (~ 500 L/s) ce qui permet d'atteindre une pression de 10^{-6} mbar.

Un tube de pompage différentiel de diamètre 1 cm et de longueur 10 cm sépare ensuite la chambre de collimation de la chambre Ultra-Haut Vide (UHV) où une pompe turbo Pfeiffer TMU 1000 (vitesse de pompage ~ 1000 L/s pour He) maintient la pression autour de 10^{-9} mbar en présence du jet atomique. Cette pompe a été remplacée tout dernièrement par une TPU 2101 P de Pfeiffer (~ 2000 L/s). À l'autre extrémité du ralentisseur Zeeman, le piégeage des atomes a lieu dans une cellule de quartz dans laquelle règne une pression de l'ordre de 10^{-11} mbar, lorsque l'expérience est en fonctionnement. Cette extrémité de l'expérience est pompée par une quatrième pompe turbo Pfeiffer (TPU 450 H, vitesse de pompage de He ~ 400 L/s). Le ralentisseur Zeeman remplit également la fonction de tube différentiel de pompage, entretenant une différence de pression d'environ 2 ordres de grandeur entre ses deux extrémités.

La source était, au moment de mon arrivée sur cette expérience, pompée par deux pompes à diffusion qui polluaient la source par des remontées d'huile, diminuant son efficacité au cours du temps et nous obligeant à la nettoyer tous les 6 mois. Le remplacement de ces pompes par des pompes turbo nous a permis d'avoir une source à l'efficacité constante dans le temps (elle n'a plus été nettoyée depuis 18 mois) et un vide amélioré dans la cellule de quartz, augmentant la durée de vie du nuage dans le piège magnétique de plusieurs secondes. Les nuages obtenus après évaporation dans ces nouvelles conditions contenaient aussi plus d'atomes. Les pompes turbo ont donc été plus efficaces que les pompes à diffusion pour pomper les atomes d'hélium fondamentaux de la source et diminuer leur nombre dans la cellule.

1.3 Le piégeage magnétique et la détection

1.3.1 Caractéristiques du piège magnétique

Les atomes sont piégés à la sortie du ralentisseur Zeeman dans une cellule de quartz de dimensions 4 cm \times 4 cm \times 5 cm, par un piège magnéto-optique (MOT). Ce piège est constitué d'un champ magnétique quadrupolaire réalisé par deux bobines parcourues par des courants opposés (bobines notées Q1 et Q2 sur la figure 1.3), et d'une mélasse optique réalisée par six faisceaux laser indépendants, deux à deux contre-propageants, qui se croisent au centre de la cellule. La température dans le MOT est de 1 mK avec un nombre d'atomes piégés de 4 à 8×10^8 . Pour une densité moyenne typique $\bar{n} = 2 \times 10^9$ cm $^{-3}$, la durée de vie du MOT est de l'ordre de quelques centaines de ms.

Les atomes sont ensuite transférés dans un piège magnétique en plusieurs étapes. La proportion d'atomes ainsi transférés est typiquement de 2/3. Le nombre d'atomes dans le nuage décroît exponentiellement avec le temps. Cette durée de vie est alors limitée par les collisions avec le gaz résiduel [PEREIRA DOS SANTOS, 2002]. En particulier, elle dépend largement de la pression dans la chambre source (voir le dernier paragraphe de la partie 1.2.2). Elle est d'environ 35 secondes.

Le piégeage magnétique d'atomes neutres repose sur la réalisation d'un champ magnétique inhomogène $\vec{B}(\vec{r})$, présentant un minimum local (en $\vec{r} = \vec{0}$), avec lequel des atomes de moment magnétique $\vec{\mu}$ non nul peuvent interagir selon l'énergie potentielle $W(\vec{r}) = -\vec{\mu} \cdot \vec{B}(\vec{r})$. Les atomes, s'ils sont déjà suffisamment froids, peuvent rester piégés au voisinage du minimum de cette énergie potentielle. Une des multiples façons de produire le champ magnétique requis est d'utiliser 5 bobines disposées comme schématisé sur la figure 1.3. Les bobines Q1 et Q2 produisent un champ magnétique quadrupolaire, utilisé pour le MOT. Si on leur ajoute la contribution de la troisième bobine B3, on obtient un piège QUIC qui produit un champ identique à la configuration de Ioffe-Pritchard, avec un minimum B_0 non nul, appelé "biais". Enfin, deux bobines H1 et H2 sont disposées en configuration de Helmholtz pour ajuster la valeur du biais B_0 .

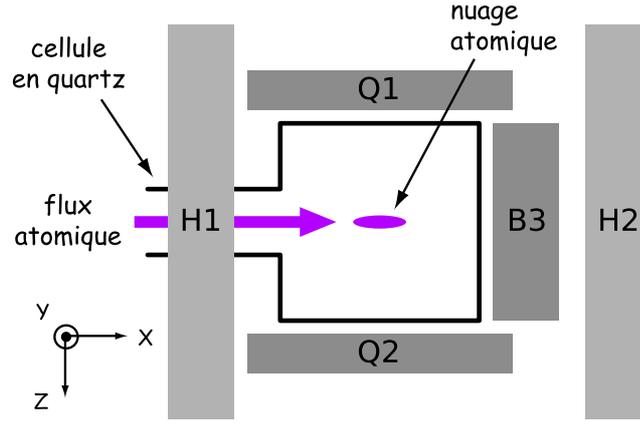


FIGURE 1.3 – Schéma des bobines de piégeage magnétique autour de la cellule de quartz. Les bobines Q1 et Q2 produisent un champ magnétique quadrupolaire, utilisé pour le MOT. Lorsque la contribution de la troisième bobine B3 est ajoutée aux deux précédentes, un champ de type Ioffe Pritchard est produit avec un minimum B_0 non nul. Enfin les deux bobines H1 et H2 produisent un champ homogène qui sert à ajuster la valeur de B_0 .

Au voisinage du minimum B_0 du champ magnétique produit par ces 5 bobines, le champ magnétique s'écrit à l'ordre 2 (voir par exemple [COHEN-TANNOUJJI, 1997] et [GUÉRY-ODELIN, 1998]) :

$$\vec{B}(x, y, z) = \begin{pmatrix} B_0 \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix} + B' \begin{pmatrix} 0 \\ -y \\ z \end{pmatrix} + \frac{B''}{2} \begin{pmatrix} x^2 - \frac{1}{2}(y^2 + z^2) \\ -xy \\ -xz \end{pmatrix} + O(3). \quad (1.2)$$

où on ne retient que les termes d'ordre 2 en x , y , et z . B_0 , B' et B'' sont respectivement le biais, le gradient, et la courbure du champ magnétique. Le développement limité du module du champ valable pour $B''x^2 \ll B_0$ et $B'y, B'z \ll B_0$ est :

$$B(x, y, z) = B_0 + \frac{B''}{2} x^2 + \left(\frac{B'^2}{2B_0} - \frac{B''}{4} \right) (y^2 + z^2).$$

Si le nuage est suffisamment froid, c'est-à-dire si la taille du nuage est petite devant les variations spatiales du champ B_0/B' et $\sqrt{B_0/B''}$, le module du champ magnétique au voisinage du centre est harmonique. L'énergie potentielle magnétique $W(x, y, z) = \mu B(x, y, z)$ s'écrit alors :

$$W(x, y, z) = g\mu_B B_0 + \frac{1}{2}m\omega_{\parallel}^2 x^2 + \frac{1}{2}m\omega_{\perp}^2 (y^2 + z^2), \quad (1.3)$$

avec

$$\omega_{\parallel} = \sqrt{\frac{g\mu_B B''}{m}} \quad \text{et} \quad \omega_{\perp} = \sqrt{\frac{g\mu_B}{m} \left(\frac{B'^2}{B_0} - \frac{B''}{2} \right)}, \quad (1.4)$$

où, $\mu = -g\mu_B$ est le module du moment magnétique de l'atome ($g = 2$ est le facteur de Landé dans l'état 2^3S_1 , μ_B est le magnéton de Bohr), et m la masse de l'atome. Ce potentiel de piégeage est alors de symétrie cylindrique, caractérisé par deux fréquences de piégeage $\omega_{\parallel}/2\pi$ (longitudinale) et $\omega_{\perp}/2\pi$ (radiale). Lorsque $k_B T \gg \mu B_0$, le développement limité précédent n'est plus valable. Le potentiel reste harmonique dans la direction x , mais il est linéaire dans les directions transverses. Ce piège semi-linéaire est alors caractérisé par la fréquence ω_{\parallel} du piège harmonique et par le gradient de champ radial B' . Mais pour toutes les températures que nous avons explorées (nous n'avons pas dépassé les $15 \mu\text{K}$ et la limite où $k_B T \simeq \mu B_0$ correspond à $400 \mu\text{K}$), notre piège est harmonique.

Une fois le nuage piégé magnétiquement, on effectue un refroidissement évaporatif. Dans notre expérience, une onde radio-fréquence de fréquence ν_{RF} est utilisée pour réaliser des transitions depuis l'état

biais B_0	3.10 ± 0.15 G
gradient B'	169 G/cm
courbure B''	122 G/cm ²
$\omega_{\parallel}/2\pi$	90.06 ± 0.01 Hz
$\omega_{\perp}/2\pi$	807 ± 2 Hz

TABLE 1.1 – Paramètres du piège magnétique. Les fréquences de piégeage sont mesurées en faisant osciller un nuage froid dans le fond du puits. La valeur de $\omega_{\perp}/2\pi$ est beaucoup moins précise que celle de $\omega_{\parallel}/2\pi$. C’est une valeur obtenue lors de la précédente thèse [LÉONARD, 2003] en regardant les oscillations du nuage dans le piège magnétique alors que celle de $\omega_{\perp}/2\pi$ a été réalisée par nous mêmes avec une méthode un peu différente (voir la partie 4.3.2) et sur un nombre plus important d’oscillations.

de spin piégé $m_J = +1$ vers les états $m_J = 0$, puis $m_J = -1$ non piégés. Un puits de potentiel est ainsi créé, avec une profondeur U telle que :

$$U = h\nu_{RF} - 2\mu_B B_0$$

Les atomes d’énergie supérieure à U sont expulsés du nuage. On force le refroidissement en diminuant continument la fréquence ν_{RF} de 140 MHz jusqu’à la fréquence désirée au fur et à mesure que la température T diminue par thermalisation du nuage. Pour cela, on utilise une rampe de refroidissement qui est découpée en une dizaine de paliers et dure approximativement 10 s. On peut ainsi obtenir des températures de l’ordre du μK et atteindre la condensation de Bose-Einstein en concédant la perte d’une grande partie des atomes initialement piégés (près de 99 %). Pour une température de $T \approx 5 \mu\text{K}$, le nuage atomique a une forme de cigare de 180 μm de long et de 20 μm de large.

1.3.2 Détection d’un nuage ultra-froid

Pour détecter le nuage atomique ultra-froid, nous coupons le courant des bobines du champ magnétique pour que le nuage subisse une phase d’expansion libre de $\tau_{\text{TOF}} = 5$ ms. Puis, à l’aide d’une imagerie d’absorption, une image du nuage est réalisée, à partir de laquelle nous déduisons sa densité optique, son nombre d’atomes et sa température (par la mesure de sa taille).

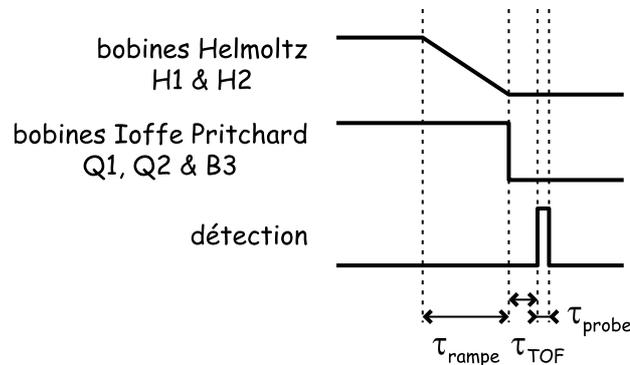


FIGURE 1.4 – Déroulement dans le temps de l’expérience pour un nuage dans le piège magnétique. Une fois le nuage refroidi par évaporation, on “ouvre” (car ω_{\perp} augmente) lentement le piège en $\tau_{\text{rampe}} = 200$ ms en diminuant à zéro le courant dans les deux bobines Helmholtz H1 et H2. On coupe ensuite brusquement le courant dans les trois bobines du QUIC (Q1, Q2 et B3), pour faire une expansion ballistique de $\tau_{\text{TOF}} = 5$ ms du nuage ainsi libéré de tout champ magnétique. On détecte le nuage par l’absorption d’un faisceau sonde sur une caméra CDD en $\tau_{\text{probe}} = 100 \mu\text{s}$.

Mais la coupure du champ magnétique de piégeage doit être suffisamment rapide pour que le nuage

passé instantanément du piège magnétique à la phase d'expansion ballistique afin d'en déduire les caractéristiques *in situ* du nuage. Malheureusement, la coupure brutale du champ créé par les bobines Helmholtz H1 et H2 induit des courants de Foucault dans l'armature métallique du support des bobines. Le champ induit perturbe la détection en décalant les transitions atomiques par effet Zeeman (le faisceau sonde n'est alors plus résonant) et donne une impulsion parasite au nuage, et donc de l'énergie, faussant la mesure de ses caractéristiques (en particulier sa température). Ce champ induit décroît en quelques ms. Afin d'éviter ce problème, nous utilisons la méthode suivante pour couper le champ de piégeage (voir le diagramme 1.4) :

1. L'évaporation et les différentes manipulations du nuage (telles que la photoassociation par exemple) sont réalisées, puis le courant dans les bobines Helmholtz est coupé progressivement en $\tau_{\text{rampe}} = 200$ ms, avec une décroissance linéaire. Ainsi, il n'y a pas de champs induits créés.
2. Puis on coupe brutalement le courant dans les trois bobines du QUIC, qui n'induisent aucun champ magnétique parasite mesurable [LÉONARD, 2003].
3. Après un temps d'expansion de $\tau_{\text{TOF}} = 5$ ms, on peut réaliser une imagerie du nuage par absorption sans aucune perturbation. Trois images sont nécessaires à la détection par absorption : une première avec le nuage et la sonde, une deuxième sans le nuage mais avec la sonde, la troisième sans le nuage ni la sonde.

Le déroulement d'une séquence expérimentale entière se fait donc de la manière suivante : tout d'abord, les atomes sont ralentis et piégés dans le MOT, puis transférés dans le piège magnétique, et enfin détectés en mesurant leur fluorescence à saturation après avoir coupé le piège magnétique. Cette première mesure constitue un signal de référence qui témoigne de la dérive à long terme du nombre d'atomes piégés. Après cette mesure préliminaire qui prend environ 2 secondes, le piège magnétique est chargé à nouveau. Les atomes sont alors évaporés jusqu'à une température comprise entre T_c et $15 \mu\text{K}$ puis détectés par imagerie d'absorption. L'ensemble de cette séquence expérimentale, incluant l'enregistrement des données, et l'ajustement du profil de densité optique, dure environ 30 s. L'image de densité optique du nuage est ajustée par une gaussienne 2D (au dessus de T_c), dont la largeur, après expansion du gaz, nous renseigne sur la température T du nuage. Le volume sous cette gaussienne 2D est proportionnel au nombre d'atomes. Avec cette méthode, on peut donc mesurer les caractéristiques du nuage par expansion ballistique, mais il faut tenir compte de la modification du piège lors de sa décompression.

1.3.3 La calibration de la température

Quand on change le courant dans les bobines de Helmholtz H1 et H2, le biais B_0 est modifié. Or seul ω_{\perp} dépend de B_0 d'après les équations (1.4). On peut ainsi changer la raideur du piège dans les directions transverses tout en laissant invariante la fréquence longitudinale ω_{\parallel} . Lorsque le courant dans les bobines Helmholtz est coupé, nous avons un piège intermédiaire avec un biais B_0^{tr} plus grand que B_0 (le rôle des bobines Helmholtz est de compenser le biais trop important des bobines QUIC) et avec une fréquence radiale ω_{\perp}^{tr} plus petite d'après les équations (1.4). Le piège intermédiaire est donc décompressé (c'est à dire que le potentiel de piégeage (1.3) est moins raide) si on le compare au piège initial, ou plus "ouvert". D'après [BERGEMAN *et al.*, 1987], le biais B_0^{tr} intermédiaire est de :

$$B_0^{tr} = B_0 + 2 \frac{NI\mu_0}{R} \frac{R^2}{\sqrt{(D^2 + R^2)^{3/2}}},$$

pour un nombre de tours de fil de chaque bobine Helmholtz de $N = 44$, un courant de $I = 30$ A, un rayon de $R = 15$ cm et une distance entre bobines de $D = R/2$ (μ_0 est la perméabilité du vide). On a donc

$B_0^{tr} = 82.2$ G, soit une fréquence radiale de transition de $\omega_{\perp}^{tr}/2\pi = 142.3 \pm 1.5$ Hz, la barre d'erreur tenant compte des différentes incertitudes.

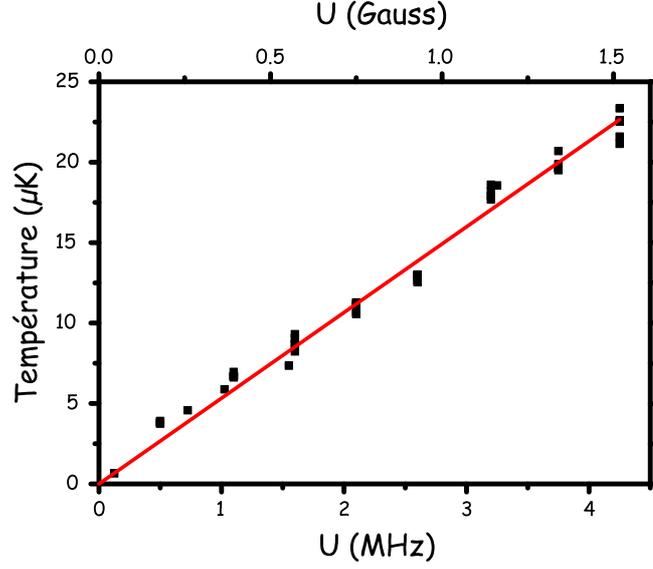


FIGURE 1.5 – Calibration de la température T du nuage atomique en fonction de la profondeur du piège U . Le comportement de T est linéaire, et un ajustement nous donne $\eta = U/k_B T = 11.1 \pm 0.1$.

Les fréquences de piégeage du piège intermédiaire déterminées, il faut tenir compte du changement de température lors de la décompression lente du piège. Si on considère cette décompression bidimensionnelle en $\tau_{\text{rampe}} = 200$ ms comme adiabatique, on peut, d'après [GUÉRY-ODELIN, 1998], relier la température T du nuage avant décompression à la température T^{tr} après la décompression :

$$\frac{T}{T^{tr}} = \left(\frac{\omega_{\perp}}{\omega_{\perp}^{tr}} \right)^{2/3},$$

d'où, en exprimant T^{tr} en fonction de la taille du nuage σ_{\perp} et σ_{\parallel} après un temps de vol de τ_{TOF} :

$$T = \frac{m}{k_B} \left(\frac{\omega_{\perp}}{\omega_{\perp}^{tr}} \right)^{2/3} \frac{1}{3} \left[\frac{2(\sigma_{\perp} \omega_{\perp}^{tr})^2}{1 + (\omega_{\perp}^{tr} \tau_{\text{TOF}})^2} + \frac{(\sigma_{\parallel} \omega_{\parallel})^2}{1 + (\omega_{\parallel} \tau_{\text{TOF}})^2} \right]. \quad (1.5)$$

Pour modifier la température du nuage, on ajuste la fréquence ν_{RF} du couteau RF qui détermine la profondeur du puits U . Il faut donc calibrer la température T en fonction de U . La figure 1.5 représente cette calibration de T pour différentes valeurs de U , où T est calculé à l'aide de l'équation (1.5). On peut définir le rapport $\eta = U/k_B T$ (voir [COHEN-TANNOUJDI, 1997] et [KETTERLE and VAN DRUTEN, 1996]), qui est maintenu constant, dans la mesure du possible, pendant l'évaporation. La valeur considérée comme optimale est de $\eta = 6$. Dans le cas de la figure 1.5, le comportement de T étant linéaire avec U , un ajustement permet de déduire une valeur de $\eta = 11.1 \pm 0.1$, beaucoup plus grande que le cas idéal. Plus précisément, η varie au fur et à mesure de l'évaporation, entre 6 au début et 11 à la fin, ce qui avait déjà été remarqué dans [PEREIRA DOS SANTOS, 2002]. Cette valeur élevée en fin d'évaporation s'explique par le fait que, dans le cas de l'hélium métastable, des collisions Penning secondaires chauffent le nuage (voir la partie 1.1.2.2) lorsque le nuage devient dense, c'est à dire typiquement en fin d'évaporation. Ceci nous oblige à ralentir la vitesse avec laquelle l'évaporation est faite, pour laisser suffisamment de temps au nuage pour thermaliser et pour éliminer les atomes très énergétiques produits par ces collisions.

La température T du nuage calculée à partir de l'équation (1.5) est utilisée dans la suite de la thèse pour interpréter les spectres de photoassociation. La figure 1.5 nous permet d'avoir une calibration de

la température jusqu'à $20 \mu\text{K}$, mais la gamme de température utilisée dans cette thèse ne dépasse pas $15 \mu\text{K}$.

Afin d'évaluer l'incertitude sur la température T , nous avons fait la même calibration que précédemment pour trois expériences avec des conditions différentes : une première exactement similaire à la précédente mais avec un temps de vol de $\tau_{\text{TOF}} = 8 \text{ ms}$ au lieu de 5 ms et deux autres en coupant brutalement le piège magnétique avec des temps de vol de 5 et 8 ms . Les températures sont ensuite évaluées à l'aide de la formule (1.5) avec la valeur du temps de vol τ_{TOF} correspondant et avec, s'il y a lieu, le facteur tenant compte de la décompression adiabatique suivant la façon de couper le piège magnétique. Ces trois calibrations de la température T en fonction de la profondeur U du piège, ainsi que celle de la figure 1.5 diffèrent de 9% . On estime donc que notre incertitude sur T est de 9% .

1.3.4 Caractéristique du nuage piégé

Au début de cette thèse, des expériences autour de la température critique T_c ont été menées afin d'en déduire T_c . En ajustant le profil de densité des nuages thermiques avec la fonction de Bose² g_3 , on détermine que $T_c = 3.13 \pm 0.39 \mu\text{K}$.

On en déduit alors le nombre d'atomes dans le nuage à la transition qui est de :

$$N_c = g_3(1) \left(\frac{k_B T_c}{\hbar \bar{\omega}} \right)^3 \quad \text{avec} \quad g_3(1) \simeq 1.202 ,$$

où $\bar{\omega} = (\omega_{\perp}^2 \omega_{\parallel})^{1/3}$ est la fréquence moyenne de piégeage. On obtient $N_c \simeq 5.63 \times 10^6$ atomes. On peut alors calibrer notre nombre d'atomes en associant à N_c le volume V_c sous la fonction de Bose g_2 utilisée pour ajuster le profil de densité. Afin d'avoir le nombre d'atomes N pour une température T quelconque supérieure à T_c , on fait le rapport du volume V sous une gaussienne ajustant le profil de densité d'un nuage thermique à la température T avec le volume V_c . On en déduit alors N par $N = N_c V/V_c$. C'est avec cette méthode que le nombre d'atomes dans un nuage thermique est évalué dans le reste de cette thèse. L'incertitude sur le nombre d'atomes dépend de celle sur T_c , ce qui donne une barre d'erreur de 50% sur N .

On peut aussi obtenir la densité $n(\vec{0})$ au centre du nuage avec :

$$n(\vec{0}) = \left(\frac{m}{2\pi k_B T} \right)^{3/2} N \omega_{\parallel} \omega_{\perp}^2 ,$$

avec m la masse de l'hélium. Les densités données dans cette thèse sont estimées à partir de ce calcul.

1.4 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons vu que l'hélium métastable est original par sa très forte énergie interne qui est la source de collisions ionisantes Penning, inexistantes pour les alcalins. Le montage expérimental et le piège magnétique qui permet de condenser l'hélium métastable sont présentés. Des caractéristiques physiques du piège magnétique on peut déduire celles du nuage thermique (son nombre d'atome et sa densité au centre) à une température proche de la condensation. En particulier, on donne une calibration de la température au dessus de la température critique de transition T_c , dont les prochains chapitres dépendent.

²Les fonctions de Bose g_{α} sont définies par :

$$g_{\alpha}(z) = \sum_{\ell=1}^{+\infty} \frac{z^{\ell}}{\ell^{\alpha}}$$

Chapitre 2

Photoassociation à un photon dans l'hélium : nouvelles mesures

Ce chapitre introduit la notion de photoassociation à un photon ainsi que celle de dimères géants. Ces derniers ont déjà été étudiés dans une thèse antérieure [LÉONARD, 2003]. Le montage de photoassociation utilisé lors de cette étude a depuis évolué et les modifications apportées font l'objet de la partie 2.4. Elles nous ont permis de compléter l'étude antérieure de [LÉONARD, 2003], avec une mesure très précise de l'énergie de liaison de l'état le plus profondément lié du potentiel excité 0_u^+ sous la limite 2^3P_0 . Cette mesure est détaillée dans la partie 2.5.

2.1 Principe de la photoassociation

La photoassociation est le processus pendant lequel une paire d'atomes, dans leur état fondamental, entre en collision et absorbe de façon résonante un photon issu d'un faisceau laser. Le système se transforme alors en une molécule électroniquement excitée dans un niveau de rotation-vibration bien défini, caractérisé par le couple (v, J) et appartenant à un potentiel attractif (v est le nombre quantique de vibration, et J le nombre quantique de rotation). Cette réaction peut s'écrire dans le cas de la photoassociation d'atomes d'hélium métastable :



Ce processus est illustré sur la figure 2.1. Le photon de fréquence ν_{PA} permet l'excitation d'un état du continuum du potentiel fondamental moléculaire vers un état lié d'un potentiel excité. Les deux atomes d'hélium métastable sont donc initialement dans un état du continuum du potentiel fondamental de la molécule, connecté à la limite asymptotique $2^3S_1 + 2^3S_1$. La largeur (qui dépend de la température de l'échantillon atomique) de cette bande d'états peuplés du continuum est, dans notre cas, inférieure au MHz, ce qui peut nous permettre d'effectuer une spectroscopie haute résolution des niveaux moléculaires des potentiels excités.

Le potentiel d'interaction de la molécule excitée est corrélé à la limite asymptotique $2^3S_1 + 2^3P_{0,2}$ et varie à longue distance en C_3/R^3 . En effet, pour de grandes distances internucléaires, le potentiel de molécules excitées homonucléaires est déterminé principalement par l'interaction dipôle-dipôle, en C_3/R^3 . Les niveaux vibrationnels élevés de ces potentiels peuvent donc avoir des points tournants externes situés à des distances internucléaires jusqu'à plusieurs centaines d'unités atomiques. L'état moléculaire électroniquement excité est noté $\Omega_{g,u}^{+,-}$ et correspond à un état propre du cas c) de Hund dont les bons nombres quantiques sont $\Omega = |\Sigma + \Lambda|$, somme respectivement de la projection sur l'axe

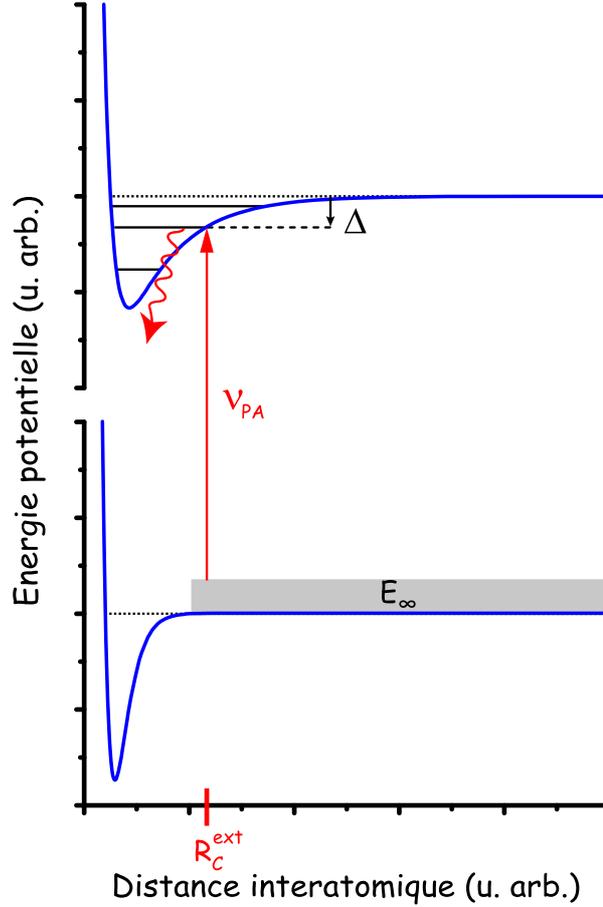


FIGURE 2.1 – Principe de la photoassociation dans le cas général : deux atomes dans leur état fondamental avec une énergie de E_∞ rentrent en collision et vont, sous l'effet d'un photon de fréquence ν_{PA} , former une molécule dans un potentiel d'interaction excité. Ce potentiel excité est associé à celui d'un premier atome dans son état fondamental et d'un second atome dans un état atomique excité. Il est donc nécessaire que la fréquence ν_{PA} du photon soit celle correspondant à la transition atomique considérée désaccordée de Δ , où $h\Delta$ est l'énergie de liaison de l'état moléculaire voulu. L'excitation a lieu au point de Condon R_C^{ext} (point correspondant à la distance interatomique la plus probable à laquelle l'excitation a lieu et qui est au voisinage du point tournant classique externe $V_{excité}(R_C^{ext}) = -h\Delta$ où $V_{excité}$ est le potentiel excité).

interatomique du spin Σ et du moment orbital électronique total de la molécule Λ . L'état est également décrit par la parité u/g (symétrie centrale par rapport au centre de la paire d'atomes) et, lorsque $\Omega = 0$, par la parité de Krönig $-/+$ (parité de l'état électronique).

Les niveaux moléculaires du potentiel fondamental sont, quant à eux situés à courte distance car l'interaction dominante est de type Van der Waals (interaction dipôle-induit dipôle-induit). Le comportement à longue distance du potentiel moléculaire est alors en C_6/R^6 , et converge donc rapidement vers la limite asymptotique $2^3S_1 + 2^3S_1$. Ces états sont décrits par le cas a) de Hund et sont notés $^{2S+1}\Lambda_{g,u}^{+,-}$, où S est le spin électronique total.

L'excitation d'une paire d'atomes du continuum d'état du potentiel fondamental a lieu pour la distance internucléaire où le recouvrement des fonctions d'ondes radiales initiale et finale est le plus important (principe de Franck-Condon). Cette transition se produit au niveau de ce que l'on appelle le point de Condon, qui correspond à résonance au point tournant classique externe $R = R_C^{ext}$ du niveau moléculaire excité. On forme, par photoassociation, des molécules de très grande élongation (entre $213 a_0$ et $1797 a_0$ pour le potentiel 0_u^+).

Ces molécules de grande élongation ont une très faible probabilité de se désexciter spontanément vers un état lié de l'état fondamental. En effet, de telles molécules excitées, en raison de leur mouvement

très localisé sur le bord externe du potentiel, se désexcitent de manière privilégiée à grande distance vers le continuum de l'état fondamental en se dissociant en deux atomes libres chauds. La durée de vie des états moléculaires excités est de l'ordre de celle des atomes excités, c'est-à-dire environ 100 ns.

2.2 Les dimères géants d'hélium

Comme on l'a vu dans la partie précédente, les états vibrationnels accessibles par photoassociation sont extrêmement étendus : au voisinage de leur point tournant externe, ces niveaux vibrationnels explorent la région asymptotique du potentiel d'interaction électronique correspondant (entre $250 a_0$ et $2200 a_0$ pour le potentiel excité 0_u^+). Pour des "molécules à purement grande distance", la partie répulsive du potentiel d'interaction est aussi à longue portée (car en $1/R^3$) (de l'ordre de $150 a_0$ dans le cas du potentiel 0_u^+). Les deux atomes de ces "molécules à purement grande distance" sont donc en permanence séparés par de grandes distances et ces molécules sont, pour cette raison, appelées **dimères géants**. L'existence de ces puits de potentiels à des grandes distances interatomiques a été trouvée pour la première fois dans [STWALLEY *et al.*, 1978], dans le cas du sodium. Ces puits sont le résultat d'anti-croisements entre des potentiels d'interaction dipôle-dipôle attractifs et répulsifs, résultant du couplage de structure fine au sein des atomes. La description théorique de ces molécules géantes présente des simplifications considérables, par rapport aux cas des molécules résultant d'une liaison chimique ordinaire.

v	Théorie	$\langle R \rangle$
5	-2.59	1797
4	-18.30	917
3	-79.65	560
2	-253.12	379
1	-649.00	276
0	-1418.10	213

TABLE 2.1 – Énergies de liaison et distance internucléaire moyenne $\langle R \rangle$ des 6 états ro-vibrationnels $J = 1$, ($v = 0$ à 5) dans le puits de potentiel à purement longue portée 0_u^+ obtenues par les calculs théoriques de [LÉONARD, 2003]. Les énergies sont données en MHz et les distances en unité atomique a_0 .

Les dimères géants sont des systèmes qui permettent de mettre en évidence l'effet de retard dans l'interaction dipôle-dipôle. Cet effet intervient lorsque la distance entre les deux dipôles devient suffisamment grande, comparée à la longueur d'onde de l'onde électromagnétique responsable de l'interaction, pour que la vitesse de propagation de la lumière ne puissent plus être considérée comme infinie. L'effet de retard a été prédit pour l'interaction de van der Waals entre dipôles induits par Casimir et Polder en 1948 [CASIMIR and POLDER, 1948]. Cette interaction est en $1/R^6$ aux courtes distances, pour lesquelles la vitesse de propagation de la lumière peut être considérée comme infinie, mais en $1/R^7$ aux distances plus grandes à cause de l'effet de retard. Un effet de retard est aussi attendu pour l'interaction dipôle-dipôle résonante en $1/R^3$. Ce calcul a été fait en 1964 dans [MCLONE and POWER, 1964] et [STEPHEN, 1964], il prédit une correction en $1/R$. La photoassociation d'atomes froids, a permis de mettre en évidence cet effet, grâce à la spectroscopie des molécules à purement grande distance.

Dans notre expérience de photoassociation (voir la figure 2.2), nous avons deux atomes d'hélium métastable polarisés de spin dans l'état 2^3S_1 , le potentiel d'interaction associé est alors noté $^5\Sigma_g^+$ (d'après les notations de la partie 2.1). Ce potentiel est donc considéré comme le potentiel "fondamental" dans nos

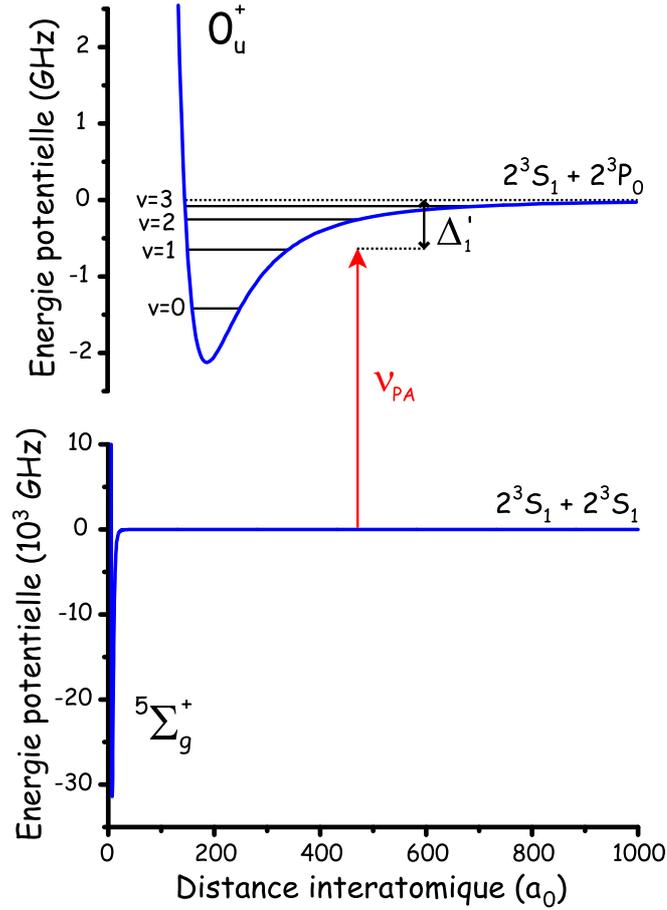


FIGURE 2.2 – Expérience de photoassociation pour l’hélium afin d’explorer les différents états liés du potentiel excité 0_u^+ à partir du potentiel fondamental $5\Sigma_g^+$ correspondant à l’interaction de deux atomes d’hélium dans l’état métastable. Le potentiel 0_u^+ est connecté à la limite asymptotique $2^3S_1 + 2^3P_0$, la longueur d’onde du laser de PA est donc proche de celle de la transition atomique $2^3S_1 \rightarrow 2^3P_0$, soit $\lambda_{PA} \simeq 1083$ nm. Seuls les 4 premiers niveaux liés de 0_u^+ sont représentés ($v = 0$ à $v = 3$). Le désaccord du laser de PA avec la transition atomique $2^3S_1 \rightarrow 2^3P_0$ est noté Δ'_1 . Les échelles d’énergie sont respectées et sont différentes pour les deux potentiels. Il faut noter que la profondeur du potentiel $5\Sigma_g^+$ est de 31 425.44 GHz (d’après [PRZYBYTEK and JEZIORSKI, 2005], soit $1\,048.24 \pm 0.36$ cm^{-1}) et de 2.130 GHz (soit 0.071 cm^{-1}) pour 0_u^+ d’après [LÉONARD *et al.*, 2004].

expériences de photoassociation, bien que l’état atomique 2^3S_1 soit un état excité, le niveau fondamental de l’hélium étant 1^1S_0 . Notre potentiel excité associé à la limite asymptotique $2^3S_1 + 2^3P_0$ est noté 0_u^+ , et est un “potentiel à purement longue portée” avec un moment cinétique total $J = 1$. Il a été étudié théoriquement et expérimentalement lors d’une précédente thèse [LÉONARD, 2003]. C’est pour cette raison que nous ne détaillerons pas plus les caractéristiques de ce potentiel. Les énergies de liaison de ses 6 états vibrationnels sont rappelées dans le tableau 2.1.

2.3 Acquisition des spectres de photoassociation

Toutes les expériences de photoassociation de cette thèse ont été réalisées sur un nuage de 4He^* piégé magnétiquement, et refroidi par évaporation. Chacun des spectres présentés, est le résultat d’une même séquence expérimentale répétée de 60 à 120 fois. Cette séquence expérimentale est détaillée dans la partie 1.3.2. L’étape de photoassociation est insérée dans cette séquence comme expliqué ci-dessous et comme illustré sur la figure 2.3 et la figure 2.4.

Le piège magnétique est chargé et les atomes sont évaporés jusqu’à une température au-dessus de

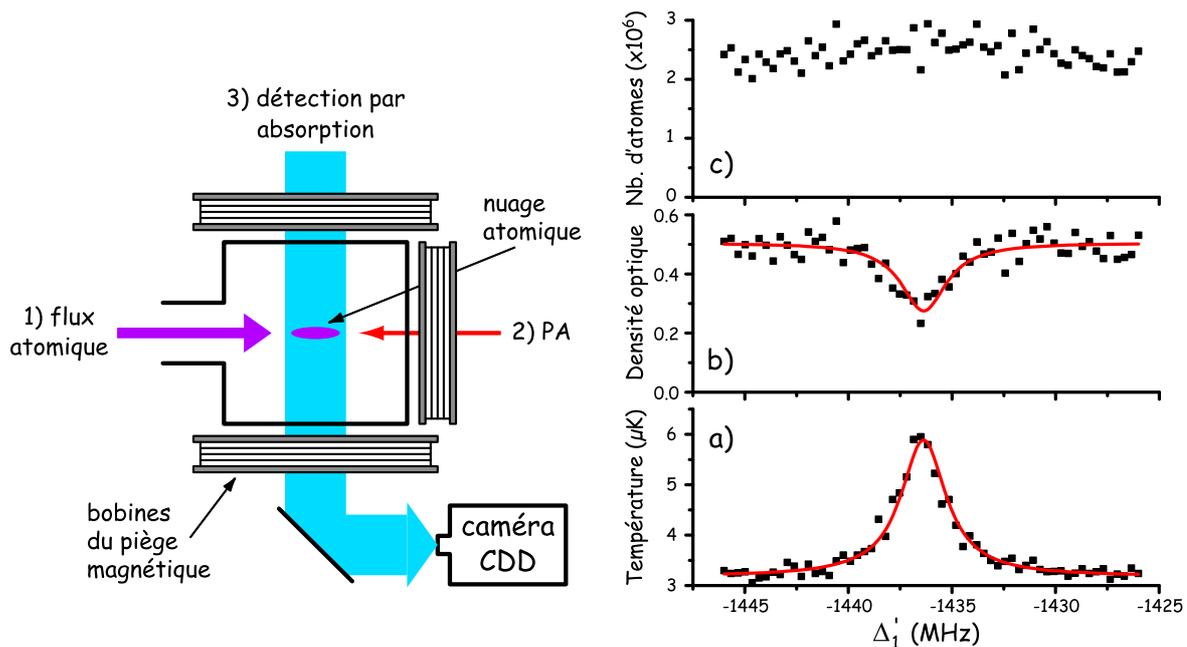


FIGURE 2.3 – Acquisition des spectres de PA. Le nuage est représenté par une ellipse au centre des trois bobines de Ioffe-Pritchard.

1 - Le gaz de He^* est piégé puis évaporé jusqu'à une température d'environ $4 \mu\text{K}$.

2 - L'impulsion du laser de PA illumine le nuage pendant un temps d'exposition τ_{PA} . Le faisceau de PA est dans l'axe du jet atomique, et aussi dans l'axe du champ magnétique B_0 du piège. Sa polarisation est contrôlée.

3 - Après avoir coupé le piège magnétique, le nuage subit une phase d'expansion ballistique après laquelle il est détecté optiquement par absorption. On obtient pour une même séquence les 3 spectres situés à droite de la figure. Les signaux détectés correspondent à la température du nuage (figure-a), à sa densité optique (figure-b) et à son nombre d'atomes (figure-c). Toutes les mesures de la fréquence de résonance d'une raie moléculaire sont faites avec l'élévation de température, ce spectre présentant un meilleur rapport signal sur bruit. Les spectres ont été pris dans les conditions expérimentales suivantes : $P_1 = 20 \mu\text{W}$, $\tau_{\text{PA}} = 200 \mu\text{s}$, $\mu B_0/h = 9.02 \text{ MHz}$.

T_c . Le cas échéant, le champ magnétique B_0 est modifié, pour éviter, ou étudier, l'effet Zeeman sur les raies mesurées. Puis le laser de photoassociation illumine le nuage *in situ* pendant une durée comprise entre $5 \mu\text{s}$ et 10 ms , à des intensités comprises entre 5.5 W.cm^{-2} et 0.6 mW.cm^{-2} . Ce faisceau est aligné parallèlement à l'axe défini par le champ magnétique de piégeage (ou par le jet atomique), et est polarisé σ^- ou σ^+ ou encore un mélange des deux grâce à un cube polariseur et une lame demi-onde. Les atomes sont conservés dans le piège magnétique pendant un temps $\tau_{\text{therm}} = 400 \mu\text{s}$ pour qu'ils thermalisent afin d'augmenter l'effet de la photoassociation sur nos spectres (figure 2.3-a, -b et -c). Ensuite, le piège magnétique est coupé en deux étapes comme le détaille la partie 1.3.2 et la figure 2.4, puis le nuage est détecté par imagerie d'absorption. Au début de chaque nouvelle séquence, la fréquence du laser de PA est modifiée, et le spectre de PA est obtenu en traçant, en fonction de cette fréquence, la température du nuage photoassocié (figure 2.3-a), la densité optique au centre du nuage (figure 2.3-b), et son nombre d'atomes (figure 2.3-c), tous trois normalisés par la mesure de fluorescence de référence correspondante.

Si l'interprétation d'une diminution de la densité optique (ou du nombre d'atomes) à résonance avec une transition moléculaire peut s'expliquer facilement (des molécules créées se désexcitent en deux atomes qui ont une énergie cinétique suffisante pour sortir du piège ou qui ne sont plus polarisés et donc plus piégés), l'augmentation de la température (engendrant aussi une diminution de la densité optique) est moins évidente. On peut tout de même donner une explication. Le nombre de molécules créées est faible (voir non détectable, comme le montre la figure 2.3-c), mais l'énergie libérée par leur désexcitation

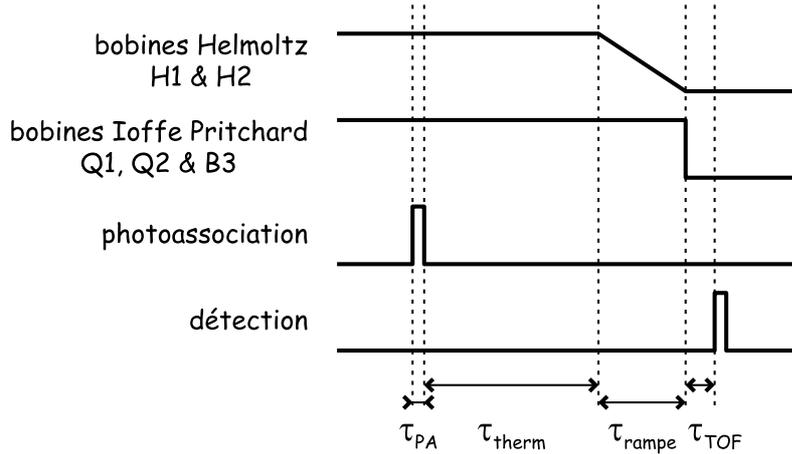


FIGURE 2.4 – Introduction de l'étape de PA dans le déroulement temporel de l'expérience pour un nuage dans le piège magnétique. Une fois le nuage refroidi par évaporation, on l'illumine pendant un temps τ_{PA} pour le photoassocier et on le laisse thermaliser pendant τ_{therm} . Puis on "ouvre" lentement le piège en τ_{rampe} et on fait une détection par absorption du nuage après une expansion balistique de τ_{TOF} comme détaillé dans la partie 1.3.2.

est suffisante pour produire un chauffage de l'ensemble du nuage. Les atomes ainsi produits ont, soit trop d'énergie et sortent du piège en entrant en collision ou non avec les atomes piégés, soit restent piégés et thermalisent alors avec les atomes plus froids. C'est effectivement ce que confirme l'expérience, car l'ajout d'une étape de thermalisation d'une durée de τ_{therm} entre la photoassociation du nuage et son expansion balistique après la coupure du piège magnétique permet d'amplifier cet effet sur la température du nuage. C'est ce signal de température (figure 2.3-a) qui est utilisé pour extraire nos différents résultats¹.

2.4 Nouveau dispositif laser

L'ancien montage du laser de photoassociation de [LÉONARD, 2003] utilisait une seule diode laser DBR (Distributed Bragg Reflector) montée en cavité étendue (identique à celle qui produit le laser principal de manipulation, refroidissement et détection des atomes). Le faisceau laser ainsi produit est mono-mode et la cavité étendue lui confère une largeur de raie d'environ 0.3 MHz. Le laser est asservi sur la raie atomique $2^3S_1 \rightarrow 2^3P_0$. Pour atteindre les différents états liés du potentiel 0_u^+ , le laser est désaccordé par plusieurs (de 1 à 3) modulateurs acousto-optiques (AOM) de fréquence centrale de 110 MHz montés en double passage. L'avantage d'utiliser des AOM est que leur fréquence est bien contrôlée (à environ 20 kHz). On pouvait alors se désaccorder jusqu'à ± 800 MHz et atteindre l'état moléculaire $v = 1$. Mais l'état $v = 0$ n'était alors pas accessible (car d'énergie de liaison autour de 1.4 GHz), sauf par un montage encore antérieur à celui-ci, où une cavité Fabry-Perot permettait de balayer tout le potentiel excité et d'atteindre $v = 0$, avec une précision en fréquence de seulement 20 MHz.

Dans un nouveau montage, nous avons voulu conserver la stabilité en fréquence des AOMs, tout en

¹Dans la partie 1.1.2.2, nous avons vu que certains processus collisionnels sont source de chauffage en fin de rampe d'évaporation. Lors d'expériences avec un nuage contenant plus d'atomes qu'habituellement et donc plus dense, obtenu grâce à une meilleure optimisation du montage, ce chauffage perturbe très significativement nos mesures. Ainsi, le chauffage provoqué peut être aussi important que celui produit par photoassociation, dissimulant la raie moléculaire. Pour éviter ce chauffage, il faut rajouter une étape supplémentaire à la rampe d'évaporation. Cette étape a une durée de 1 s et une fréquence RF constante que l'on adapte pour avoir la température habituelle du nuage.

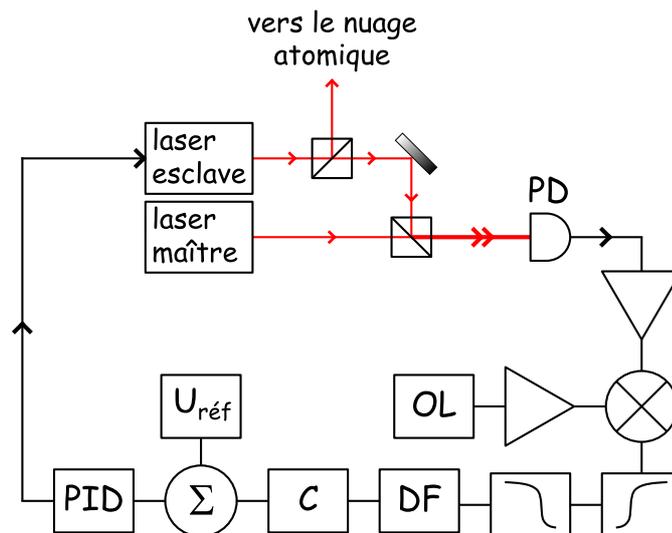


FIGURE 2.5 – Montage du système d’asservissement du laser de PA : le laser maître est stabilisé sur la transition atomique $2^3S_1 \rightarrow 2^3P_0$, le laser esclave produit le faisceau qui, envoyé sur le nuage atomique, sert pour la PA. Une partie du faisceau de l’esclave est superposée avec celui du maître, et ils sont tous deux envoyés sur une photodiode (PD) rapide. On observe alors un battement entre les fréquences des deux lasers. La fréquence de ce battement est comparée à une fréquence de référence (OL). Après avoir été filtrée, la fréquence comparée est divisée (DF) puis convertie en une tension (C), qui est elle aussi comparée à une tension ($U_{\text{réf}}$) de référence afin d’avoir un signal d’erreur. Ce signal d’erreur est finalement utilisé par un circuit d’asservissement (PID) qui contrôle le laser esclave. La fréquence du laser de PA est donc désaccordée par rapport à la transition atomique tout en ayant la même stabilité que celle du laser maître.

ayant la possibilité de désaccorder le laser de PA de 1.5 GHz. Nous avons donc mis en place un montage hétérodyne, similaire à celui de [STACE *et al.*, 1998], présenté sur la figure 2.5. Ce montage est composé de deux diodes laser (SDL6702-H1) produisant des faisceaux laser mono-modes et de largeur de raie de 0.3 MHz grâce aux cavités étendues. Une première diode constitue le laser maître et est asservie sur la raie atomique $2^3S_1 \rightarrow 2^3P_0$ de fréquence ν_{at} , la deuxième diode étant le laser esclave de fréquence ν_{PA} . Une partie du faisceau de ce laser esclave passe par un amplificateur à fibre (Keopsys) de 0.5 W dopé à l’Ytterbium dont le faisceau de sortie est le faisceau de PA envoyé sur le nuage atomique. L’autre partie du faisceau est superposée à celui du laser maître et ils sont tous deux alignés sur une photodiode rapide (PD) de largeur de bande de 2 GHz (G8795 de Hamamatsu). Un battement est alors visible avec un analyseur de spectre, et la fréquence de ce battement $\nu_{\text{batt}} = |\nu_{\text{at}} - \nu_{\text{PA}}|$ correspond à la différence de fréquence entre les deux lasers.

Il faut donc concevoir un montage électronique qui va convertir cette fréquence de battement en tension et la transformer en signal d’erreur utilisable pour asservir le laser esclave. Le signal de battement est atténué puis amplifié afin d’être introduit à la bonne puissance dans un comparateur. L’autre entrée du comparateur est un signal de référence produit par un synthétiseur (ou un oscillateur local (OL)) dont la fréquence $\nu_{\text{réf}}$ est fixée. Le comparateur fait la différence des fréquences des deux signaux d’entrée, le signal de sortie a donc une fréquence de $\nu_{\text{Comp}} = |\nu_{\text{batt}} - \nu_{\text{réf}}|$. La fréquence ν_{Comp} doit être comprise entre 200 et 500 MHz afin d’être adaptée aux composants électroniques en amont : pour conserver ν_{Comp} dans cette plage de fréquence, il faut adapter la fréquence $\nu_{\text{réf}}$ du synthétiseur en fonction de ν_{batt} , c’est à dire en fonction de l’énergie $h\nu_{\text{PA}}$ de l’état lié voulu. Après le comparateur, des filtres sont placés pour atténuer les harmoniques de fréquences différentes de ν_{Comp} et diminuer ainsi les parasites dans notre asservissement. ν_{Comp} est divisée par 128 par un diviseur de fréquence (DF) (SP8715) qui nous a été donné par le BNM-SYRTE. Ensuite, la fréquence est encore divisée par 4, puis transformée en tension

par un circuit convertisseur (C) de fréquence-tension (dont le composant principal est le AD650) proposé aussi par le BNM-SYRTE. La tension U_{Comp} , proportionnelle à la fréquence ν_{Comp} , est ensuite comparée à une tension de référence $U_{\text{réf}}$ (produite par un LM399). La différence de tension résultante nous donne un signal d'erreur que l'on transmet à un circuit d'asservissement de type "proportionnel-intégrateur-dérivateur" (PID). La tension de sortie de ce circuit est envoyée à la diode laser esclave, asservissant ainsi la fréquence de PA ν_{PA} . En pratique, il suffit donc de modifier la fréquence de référence $\nu_{\text{réf}}$ pour modifier la fréquence de PA ν_{PA} .

Avec ce montage, on peut désaccorder le laser de PA de 1.5 GHz par rapport à la raie atomique $2^3S_1 \rightarrow 2^3P_0$, notre précision en fréquence étant limitée par celle des AOMs (20 kHz) et par la largeur spectrale du laser de PA (0.3 MHz). De plus, ce montage de battement entre deux lasers est très versatile, puisque le désaccord choisi peut être aussi grand que l'on veut, sans avoir à ajouter ou enlever un AOM comme c'était le cas avant. Et pour des fréquences de battement supérieures à 1.5 GHz, il suffit de changer seulement deux éléments électroniques (la photodiode et le mixeur) pour qu'ils soient adaptés à la fréquence dont on veut être désaccordé.

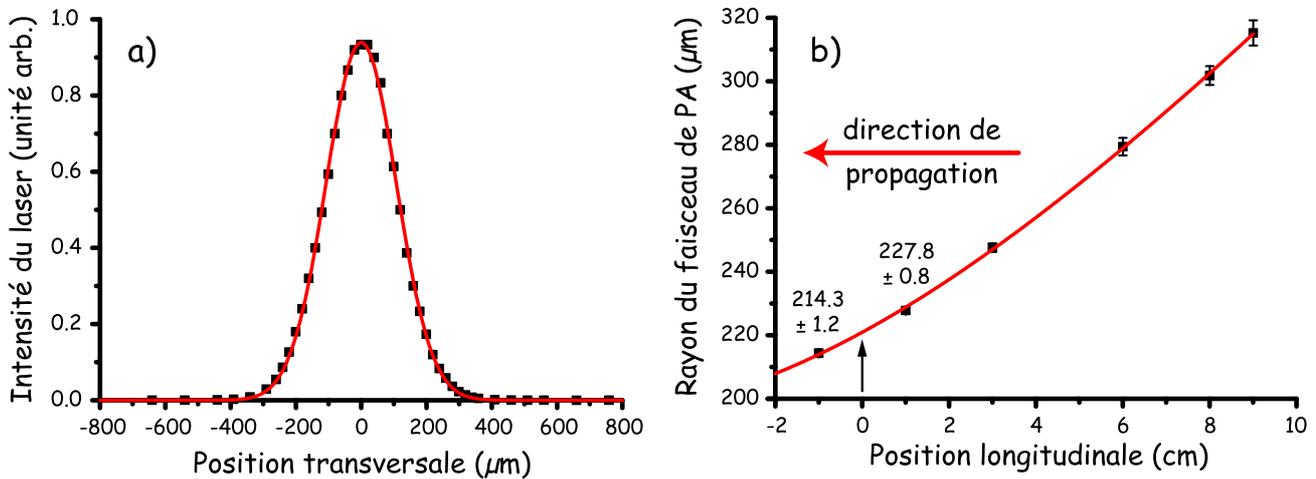


FIGURE 2.6 – Profils du faisceau de PA.

a - Profil transversal du faisceau de PA à 1 cm au-delà de la position du nuage atomique (dans le sens de propagation du laser de PA). Ce profil est ajusté (courbe en rouge) par une gaussienne de la forme $e^{-2\left(\frac{\text{position}}{\text{rayon}}\right)^2}$. Le profil du faisceau est donc bien gaussien. Le rayon à $1/e^2$ du faisceau à -1 cm de la position du nuage atomique est de $214.3 \pm 1.2 \mu\text{m}$.

b - Profil longitudinal du faisceau de PA. Le zéro de l'axe des abscisses, repéré par une flèche, représente la position du nuage atomique. Le rayon à $1/e^2$ du faisceau de PA en ce point est de $221 \pm 1 \mu\text{m}$. Le profil longitudinal attendu est hyperbolique (courbe en rouge), mais le faisceau est focalisé au delà du nuage, ce qui explique que seul une partie de l'hyperbole est accessible.

La partie du laser esclave qui est amplifiée pour servir de faisceau de PA est envoyée dans un AOM en double passage. C'est cet AOM qui nous permet de balayer la fréquence du faisceau de PA avec une grande précision. Ensuite, la polarisation du faisceau est purifiée par un cube polariseur (PBS) avant d'introduire le faisceau dans une fibre mono-mode à maintien de polarisation. La fibre est alignée avec l'axe du jet atomique comme décrit sur la figure 2.3. En sortie de fibre, la polarisation du faisceau est à nouveau purifiée par un cube polariseur puis le faisceau de PA est focalisé au niveau du nuage. Il est donc mono-mode et gaussien, et sa polarisation en intensité est contrôlée à 2 % près. Pour déterminer la largeur du faisceau au niveau du nuage, nous avons fait l'expérience suivante : on mesure l'intensité du faisceau au travers d'une fente très fine ($\approx 0.1 \text{ mm}$) en translatant la fente perpendiculairement au faisceau. On obtient bien un profil gaussien du faisceau de PA (voir la figure 2.6-a) pour une certaine position le long du trajet lumineux. En répétant cette expérience pour différentes positions le long de

l'axe du faisceau, on obtient la figure 2.6-b. On peut voir alors que nous focalisons au-delà du nuage car, le profil longitudinal attendu étant une hyperbole, nous n'observons qu'une diminution de la largeur du faisceau sans atteindre la position du waist où la largeur est minimale. Mais la largeur du faisceau de PA au niveau du nuage étant suffisamment faible ($w_0 = 221 \pm 1 \mu\text{m}$) pour atteindre des intensités de l'ordre du W.cm^{-2} , nous n'avons pas cherché à améliorer la focalisation du faisceau. La connaissance de la taille du faisceau sur le nuage nous permet de calibrer l'intensité maximale I du laser (correspondant à l'intensité au centre du faisceau de PA) en fonction de la puissance P mesurée avec le puissance-mètre, ce qui donne :

$$I(\text{W.cm}^{-2}) = \frac{2P(\text{W})}{\pi(221(\mu\text{m}) \times 10^{-4})^2} = 1303 \text{ cm}^{-2} \times P(\text{W}) .$$

Dans la suite, nous rappelons dans les légendes les paramètres expérimentaux avec lesquels les spectres de PA ont été obtenus, en particulier la puissance du laser de PA, la conversion entre la puissance et l'intensité étant obtenue facilement à l'aide de cette formule.

2.5 Mesure de l'énergie de liaison de l'état moléculaire le plus profond ($v = 0$) du potentiel 0_u^+

Comme précédemment expliqué, les énergies des différents états liés du potentiel 0_u^+ ont déjà été déterminées précédemment dans [LÉONARD, 2003] avec une précision de 0.5 MHz grâce à un montage optique contenant des AOM. Les sources d'erreurs viennent essentiellement du champ magnétique B_0 (≈ 0.1 MHz) et du bruit expérimental dans les spectres (≈ 0.3 MHz), ainsi que des AOM, mais pour une part négligeable (≈ 20 kHz). On a vu que seul le niveau moléculaire $v = 0$ n'était pas accessible par les AOM. La mesure de son énergie avait été faite à l'aide d'une cavité Fabry-Perot, d'où une incertitude beaucoup plus grande de 20 MHz. Elle est reprise ici avec le nouveau montage laser décrit plus haut dans la partie précédente.

2.5.1 Corrections à l'énergie de l'état lié $v = 0$

Les spectres expérimentaux sont obtenus en balayant la fréquence du laser de PA autour de celles où les états moléculaires sont excités. Mais l'extraction précise des énergies de liaisons correspondantes nécessite de prendre en compte des décalages éventuels des raies détectées. Nous reprenons ici l'étude qui a été menée dans [LÉONARD, 2003], que nous rappelons brièvement.

L'énergie E_i d'une paire d'atomes dans l'état initial de diffusion peut s'écrire :

$$E_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2, \vec{P}, \vec{p}_{rel}) = \frac{\vec{P}^2}{4m} + \frac{\vec{p}_{rel}^2}{m} - \vec{\mu} \cdot (\vec{B}(\vec{r}_1) + \vec{B}(\vec{r}_2)) , \quad (2.1)$$

où $\vec{P} = \vec{p}_1 + \vec{p}_2$ est l'impulsion du centre de masse de la paire, et $\vec{p}_{rel} = (\vec{p}_1 - \vec{p}_2)/2$ est l'impulsion relative. $\vec{B}(\vec{r}_{1,2})$ sont les champs magnétiques vu par chaque atome et $\vec{\mu}$ le moment magnétique d'un atome dans l'état 2^3S_1 . Le facteur de Landé vaut 2, donc $\mu = -2\mu_B$ avec $\mu_B < 0$ le magnéton de Bohr. Dans l'équation (2.1), on néglige toute énergie d'interaction entre les deux atomes, ce qui sera justifié dans la suite.

Suite à l'absorption d'un photon d'impulsion $\hbar\vec{k}$ et de fréquence ν_{PA} , l'énergie de liaison $hb_v < 0$ de la molécule produite peut s'écrire, en utilisant la conservation de l'énergie et de l'impulsion :

$$E_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2, \vec{P}, \vec{p}_{rel}) + h\nu_{PA} = \frac{\vec{P}_M^2}{4m} + h(\nu_0 + b_v) \quad \text{avec} \quad \vec{P} + \hbar\vec{k} = \vec{P}_M$$

où \vec{P}_M est l'impulsion de la molécule, et $h\nu_0$ est l'énergie de la transition atomique $2^3S_1 \rightarrow 2^3P_0$. On en déduit la différence entre l'énergie de liaison de la molécule et le désaccord $\delta = \nu_{PA} - \nu_0$ du laser de PA :

$$h(b_v - \delta) = -\hbar\vec{k} \cdot \frac{\vec{P}}{2m} - \frac{\hbar^2 k^2}{4m} - \vec{\mu} \cdot (\vec{B}(\vec{r}_1) + \vec{B}(\vec{r}_2)) + \frac{\vec{p}_{rel}^2}{m}. \quad (2.2)$$

L'énergie de la molécule hb_v inclu *a priori* les dépendances en fonction du champ magnétique (effet Zeeman) ou de la densité (interaction de la molécule avec les atomes et les autres molécules environnants).

Prenons séparément chaque terme du membre de droite de l'équation (2.2) afin de déterminer les décalages en énergie :

Le premier terme a pour origine l'effet Doppler. Il n'engendre aucun décalage puisque les impulsions du photon et du centre de masse de la paire ne sont *a priori* pas corrélées : $\langle \vec{k} \cdot \vec{P} \rangle$.

Le second est l'énergie de recul de la molécule après avoir absorbé le photon. Il est d'environ 21 kHz, ce qui est négligeable devant notre précision expérimentale.

Le troisième est un décalage Zeeman qui, après moyennage sur les positions \vec{r}_1 et \vec{r}_2 des atomes dans le piège magnétique avec une distribution en énergie de Maxwell-Boltzmann, donne une contribution de $2\mu B_0 + \frac{3}{2}k_B T$.

Enfin le quatrième représente l'énergie cinétique relative qui, après un moyennage identique au troisième terme, donne $\frac{3}{2}k_B T$.

Les autres sources possibles de décalages qui ne sont pas incluses dans l'équation (2.2) sont, le champ moyen, c'est à dire un effet de densité, et un décalage lumineux. L'effet du champ moyen vaut 4.6 kHz pour l'état initial (voir le calcul fait à la partie 6.1.1). Dans le cas de l'état moléculaire, l'expérience (voir [LÉONARD, 2003] p. 126) n'a pas mis en évidence un effet de densité. Quant aux décalages lumineux, les intensités utilisées sont de l'ordre ou inférieures à l'intensité de saturation, *a priori* trop faibles pour induire un quelconque effet, comme nos expériences l'ont montré.

Finalement, en prenant en compte l'ensemble des décalages que nous avons envisagés, l'énergie de liaison hb_v d'un état vibrationnel v donné se résume en :

$$hb_v = h\delta + 2\mu B_0 + 3k_B T \quad (2.3)$$

Il ne reste maintenant plus qu'à mesurer l'énergie de liaison du niveau $v = 0$ avec notre nouveau montage de PA pour obtenir une valeur à 0.5 MHz près, beaucoup plus précise que la précédente détermination.

2.5.2 Mesure du décalage de la raie moléculaire

Nous avons mesuré δ_v , B_0 et T pour la raie $v = 0$ dans différentes conditions de champ magnétique, $B_0 = 1.4$ à 3.1 Gauss, pour une température de $3.5 \mu\text{K}$. La figure 2.7 illustre la dépendance en B_0 du désaccord $\delta_{v=0}$ du laser à résonance avec la transition libre-lié $2^3S_1 + 2^3S_1 \rightarrow v = 0$ après correction du décalage $3k_B T$ induit par la température. L'ajustement des données par une droite permet l'extrapolation à champ magnétique nul de la valeur de l'énergie de liaison de la molécule, qui est alors de $b_{v=0} = 1418.1 \pm 0.5$ MHz (en tenant compte de toutes les sources d'erreur, sur B_0 , T , et de la largeur spectrale du laser de PA). Ensuite, la pente de la droite vaut 1.97 ± 0.09 (sans unité), ce qui est en accord avec l'équation (2.3) qui donne une contribution de l'effet Zeeman de la paire initiale d'atomes libres de $-2\mu B_0$, soit deux fois le décalage Zeeman d'un seul atome au fond du piège magnétique.

Ainsi, tout écart à ce facteur 2 peut être attribué à l'effet Zeeman de l'état moléculaire excité. En réalité, la molécule n'a pas de moment dipolaire magnétique d'origine électronique d'après [LÉONARD, 2003]. Seule la rotation de la molécule peut induire un moment dipolaire, qui alors est de l'ordre du

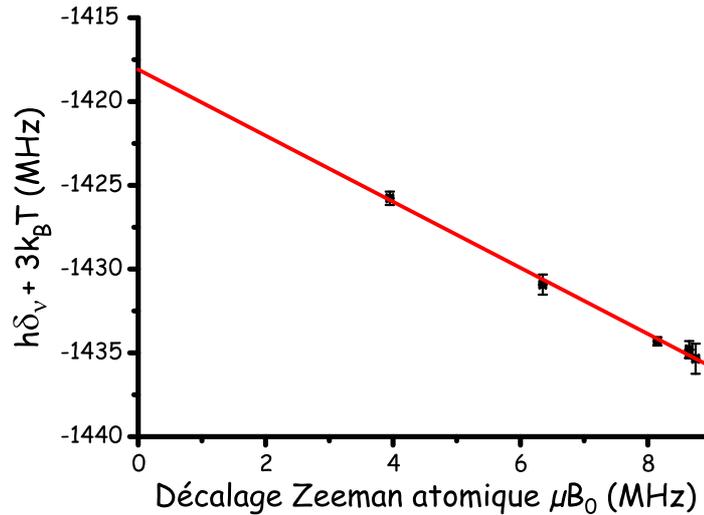


FIGURE 2.7 – Détermination de l'énergie de liaison de l'état $v = 0$ obtenue par la mesure de sa fréquence de résonance $\delta_{v=0}$ en fonction de l'effet Zeeman atomique μB_0 . L'extrapolation de cette fréquence à champ magnétique nul en tenant compte de la correction en température de $3k_B T$ de l'équation (2.3) donne une énergie de liaison de $b_{v=0} = 1418.1 \pm 0.5$ MHz. Cette estimation est donnée par un ajustement linéaire qui nous donne aussi une pente de 1.97 ± 0.09 (sans unité).

magnéton nucléaire [HERZBERG, 1950], soit 3 ordres de grandeurs plus faible que μ_B . Compte tenu de la précision de nos mesures et de la gamme de champ magnétique explorée, un si petit effet Zeeman ne peut pas être mesuré dans notre expérience. On ne peut que fixer une borne supérieure à l'effet Zeeman attendu pour l'état moléculaire 0_u^+ , étant donnée l'incertitude qui accompagne l'ajustement linéaire des données expérimentales. On obtient ainsi que le décalage Zeeman de l'état moléculaire excité est inférieur à $0.1\mu = 0.2|\mu_B|$. C'est, *a posteriori*, la raison pour laquelle nous avons négligé l'effet Zeeman moléculaire dans le calcul du décalage des raies.

2.5.3 Comparaison avec la théorie

Le tableau 2.2 donne la comparaison des énergies de liaison des états moléculaires dans 0_u^+ entre, d'une part le calcul mené dans [LÉONARD, 2003] et d'autre part, les résultats expérimentaux obtenus précédemment dans [LÉONARD, 2003] avec la mesure de l'énergie de liaison de $v = 0$ exposée dans la partie précédente. Il faut noter que cette mesure constitue une grande amélioration du montage optique de la PA (la précision des mesures passant de 20 MHz à 0.5 MHz) grâce au montage décrit à la figure 2.5. De plus, l'incertitude relative sur l'énergie de liaison de $v = 0$ est la plus faible des 5 états liés étudiés avec seulement 0.035 %.

L'effet de retard ϵ^{Ret} pour l'état $v = 0$ est de -6.6 MHz, soit la contribution la plus importante pour l'ensemble des états liés du potentiel 0_u^+ (voir l'explication dans [LÉONARD, 2003], p. 128). Compte tenu de la précision expérimentale, la mesure de l'énergie de liaison de $v = 0$ est une nouvelle démonstration de l'effet de retard dans l'interaction dipôle-dipôle résonante, qui doit être pris en compte pour reproduire les énergies de liaison mesurées.

2.6 Conclusion

Dans ce chapitre sont présentées les notions de photoassociation et de dimères géants, sur lesquelles repose la suite du manuscrit, le dimère géant dans l'état $v = 0$ étant utilisé dans toutes les expériences

v	Expérience	Calcul	ϵ^{Ret}
5	-	-2.59	-0.78
4	-18.2 ± 0.5	-18.30	-1.6
3	-79.6 ± 0.5	-79.65	-2.6
2	-253.3 ± 0.5	-253.12	-3.9
1	-648.5 ± 0.5	-649.00	-5.2
0	-1418.1 ± 0.5 (-1430 ± 20)	-1418.10	-6.6

TABLE 2.2 – Énergies de liaison des 6 états ro-vibrationnels $J = 1$, ($v = 0$ à 5) dans le puits de potentiel à purement longue portée 0_v^+ : comparaison entre les calculs théoriques menés dans [LÉONARD, 2003] et les résultats expérimentaux de [LÉONARD, 2003] et de la partie 2.5.2 pour la raie $v = 0$. Les énergies sont données en MHz. Pour chaque état lié, ϵ^{Ret} est une estimation de la contribution à l'énergie de liaison des effets de retard dans l'interaction dipôle-dipôle résonante. La valeur de l'énergie de liaison de $v = 0$ entre parenthèse est celle obtenue dans [LÉONARD *et al.*, 2003] avec un montage optique contenant une cavité Fabry-Perot et non des AOM comme pour les autres niveaux moléculaires, d'où son importante incertitude. La valeur en gras est celle obtenue avec le montage laser de la figure 2.5.

réalisées au cours de cette thèse. Un nouveau montage d'asservissement a été construit dans le but de désaccorder le laser de PA sur la transition libre-lié $2^3S_1 + 2^3S_1 \rightarrow v = 0$, ce qui n'était pas possible antérieurement sur notre expérience, tout en ayant une stabilité suffisante afin de réaliser une spectroscopie de précision (à 0.5 MHz près). La mesure de l'énergie de liaison de l'état $v = 0$ a pu être réalisée, confirmant les prédictions théoriques de [LÉONARD, 2003] et démontrant l'importance de la contribution des effets de retard dans l'interaction dipôle-dipôle résonante, dus à la vitesse finie de la lumière.

Chapitre 3

La longueur de diffusion a en onde s de l'hélium métastable polarisé

Ce chapitre présente des généralités sur la longueur de diffusion¹ a en onde s . La première partie expose succinctement les bases sur les collisions froides et la notion de longueur de diffusion a , qui seront très utiles pour comprendre l'obtention de a à partir des potentiels d'interaction (chapitre 6). Les deuxième et troisième parties développent les estimations, respectivement théoriques et expérimentales, de a dans le cas de l'hélium métastable polarisé (noté $^4\text{He}^* \uparrow$).

3.1 Généralités sur les collisions froides et la longueur de diffusion

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

Cette partie rappelle brièvement la théorie de la diffusion dans le cas de collisions élastiques entre 2 atomes [COHEN-TANNOUJDI *et al.*, 1973]. Cette théorie est appliquée dans le cas du potentiel d'interaction $^5\Sigma_g^+$ entre deux atomes métastables 2^3S_1 polarisés de spin, déterminé par [STÄRCK and MEYER, 1994], [GADÉA *et al.*, 2002], [DICKINSON *et al.*, 2004] et [PRZYBYTEK and JEZIORSKI, 2005] et qui est noté $U_0(r)$ dans la suite.

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

$$\phi_k(\vec{r}) = \sum_{l=0}^{\infty} \sum_{m=-l}^l \frac{u_{k,l}(r)}{r} Y_l^m(\theta, \varphi) \quad (3.1)$$

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

$$\left(-\frac{\hbar^2}{2\mu} \frac{d^2}{dr^2} + \frac{\hbar^2 l(l+1)}{2\mu r^2} + U_0(r) - \frac{\hbar^2 k^2}{2\mu} \right) u_{k,l}(r) = 0, \quad (3.2)$$

avec $\hbar^2 k^2 / 2\mu$ l'énergie de collision et $\mu = m/2$ la masse réduite (m est la masse de l'hélium). Le terme en $l(l+1)/r^2$ constitue la barrière centrifuge qui, ajoutée au terme $U_0(r)$, représente un potentiel effectif (voir l'encart de la figure 3.1). Loin de l'origine, chaque onde partielle $u_{k,l}(r)/r$ est la superposition d'une onde sphérique entrante et d'une onde sphérique sortante. L'effet du potentiel effectif sur cette

¹D'après [GAO, 1998], les longueurs de diffusion de sont définies qu'en onde s , et p pour un potentiel en $1/R^6$. Pour plus de détail, voir [LEVY and KELLER, 1963].

partie asymptotique est de déphaser l'onde sortante par rapport à l'onde entrante d'une quantité δ_l , de telle sorte que :

$$u_{k,l}(r \rightarrow \infty) \sim \sin(kr - l\pi/2 + \delta_l) . \quad (3.3)$$

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

$$\phi_k(\vec{r}) \approx e^{ikz} + f(\theta, \varphi) \frac{e^{ikr}}{r} , \quad (3.4)$$

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

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

La confrontation des formules (3.1) et (3.3) d'une part, avec la formule (3.4) d'autre part, permet alors d'exprimer $f(\theta, \varphi)$ en fonction de ces seuls déphasages δ_l [COHEN-TANNOUJDI *et al.*, 1973]. De plus, la fonction d'onde de deux bosons indiscernables doit être symétrisée, avec comme conséquence que seules les ondes partielles paires interviennent dans le calcul de la section efficace de collision. Ainsi on montre que :

$$\sigma(k) = \sum_{l \text{ pair}} \sigma_l(k) , \quad \text{avec} \quad \sigma_l(k) = \frac{8\pi}{k^2} (2l+1) \sin^2(\delta_l) . \quad (3.5)$$

La figure 3.1 présente le calcul numérique de la section efficace de collision. L'équation (3.2) a été résolue pour $l = 0$ à 8, de manière à déterminer les déphasages $\delta_l(k)$ pour chacune des ondes partielles $l = 0$ à 8. Les potentiels effectifs correspondants sont donnés par l'encart de la figure 3.1. La solution générale de l'équation de Schrödinger radiale satisfaisant aux conditions aux limites (il faut qu'elle soit nulle à l'origine et qu'elle soit une sinusoïde déphasée à l'infini) est une combinaison linéaire d'une fonction de Bessel sphérique d'ordre l de première espèce ou "régulière" $j_l(r)$ (régulière car elle vaut 0 en $r = 0$) et d'une fonction de Bessel sphérique d'ordre l de deuxième espèce ou "irrégulière" $n_l(r)$ (irrégulière car elle tend vers l'infini en $r = 0$) (voir par exemple [VENTURI *et al.*, 1999]) :

$$\phi(\vec{r}) = A(k) k r j_l(k r) + B(k) k r n_l(k r) \quad \text{avec} \quad \begin{cases} j_l(k r) \equiv \sqrt{\frac{\pi}{2r}} J_{l+1/2}(k r) \\ \text{et} \\ n_l(k r) \equiv \sqrt{\frac{\pi}{2r}} Y_{l+1/2}(k r) , \end{cases}$$

où $J_{l+1/2}(r)$ et $Y_{l+1/2}(r)$ sont les fonctions de Bessel respectivement de première espèce et de deuxième espèce (ou fonction de Neumann). À chacune de ces 2 fonctions est associée une amplitude $A(k)$ et $B(k)$ dépendante de l'énergie de collision $\hbar^2 k^2 / 2\mu$. La résolution numérique de (3.2) en prenant comme solution une somme d'une fonction sinus et cosinus oblige à prendre de grandes distances interatomiques (telles que $l(l+1)/r^2 \ll k^2$) afin d'appliquer l'approximation (3.3), ce qui augmente considérablement le temps de calcul. Avec les fonctions de Bessel sphériques, il suffit que le potentiel $U_0(r)$ soit négligeable devant le terme d'énergie centrifuge $l(l+1)/r^2$. La partie du potentiel $U_0(r)$ qui tend le plus lentement vers 0 est ² en C_6/r^6 , ce qui nécessite de prendre une distance interatomique correspondant aux premiers noeuds de la fonction d'onde (au pire quelques dizaines de noeuds à haute énergie). Le déphasage est alors donné par :

$$\delta_l = \arctan \left(\frac{B(k)}{A(k)} \right) . \quad (3.6)$$

² $C_6 = 3276.680$ en unité atomique d'après [PRZYBYTEK and JEZIORSKI, 2005].

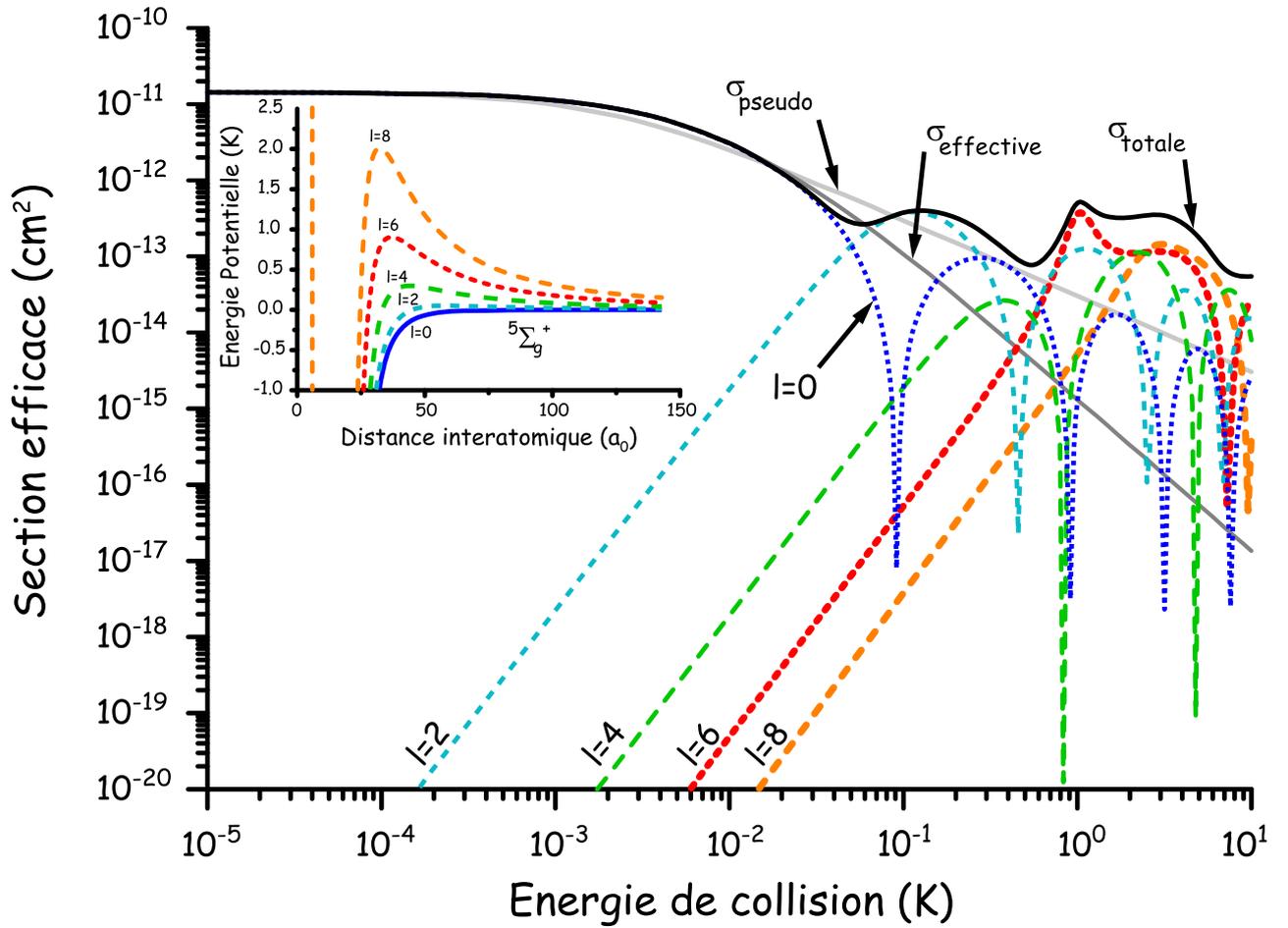


FIGURE 3.1 – Illustration du calcul de la section efficace de collision élastique de $\text{He}^* + \text{He}^*$ par la formule (3.5). Les sections efficaces partielles $\sigma_l(k)$ sont calculées numériquement pour $l = 0$ à 8, à partir du potentiel total, somme du potentiel d’interaction ${}^5\Sigma_g^+$ et du potentiel centrifuge $\hbar^2 l(l+1)/2\mu r^2$. Elles sont représentées en courbes pointillées, en fonction de l’énergie exprimée en unité de température $\hbar^2 k^2/2\mu$. Leur somme constitue la section efficace totale σ_{totale} tracée en trait noir continu. La courbe en gris clair continue est l’expression approchée σ_{pseudo} de la section efficace dans la limite des basses énergies, donnée par la formule (3.13). La courbe en gris foncé continue est l’expression approchée $\sigma_{effective}$ de la section efficace pour des énergies plus importantes, données par la formule (3.14). (Le potentiel total est représenté dans l’encart pour chaque valeur de $l = 0$ à 8).

Chaque onde partielle l apporte sa contribution $\sigma_l(k)$ à la section efficace totale $\sigma(k)$ qui est ensuite calculée par la formule (3.5). Ce calcul montre que le nombre d’ondes partielles contribuant à la valeur de la section efficace de collision diminue avec l’énergie de la collision. En effet, pour une énergie de collision en-dessous d’environ 20 mK, seul le premier terme $l = 0$ de la somme (3.5) contribue à la section efficace totale. On est alors dans le régime des collisions “en onde s ”, dites collisions froides. Enfin, $\sigma(k)$ devient indépendante de k pour des énergies inférieures à quelques dizaines de μK . Dans ce régime, les collisions élastiques sont complètement déterminées par la donnée d’un seul paramètre, **la longueur de diffusion dans l’onde s** .

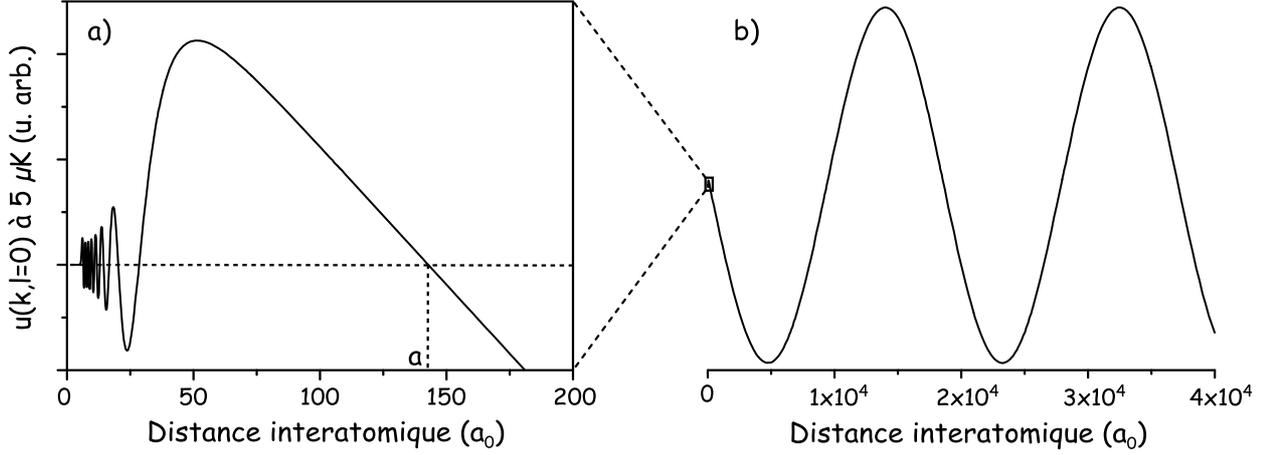


FIGURE 3.2 – Illustration graphique du calcul de la longueur de diffusion pour deux atomes He^* polarisés :
a - Zoom, à de faibles distances interatomiques, de l'onde partielle s $u_{k,l=0}(r)$ pour une énergie de collision $\hbar^2 k^2 / 2\mu$ égale à $k_B \times 5\mu\text{K}$ dans le potentiel de Przybytek et Jeziorski décrivant l'état $^5\Sigma_g^+$.
b - Représentation de la même fonction d'onde sur une échelle plus large : $u_{k,l=0}(R)$ devient une sinusoïde à grande distance. La longueur de diffusion a est la position du premier zéro de cette sinusoïde asymptote, lorsque $k \rightarrow 0$.

3.1.2 Longueur de diffusion

3.1.2.1 Définition

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

$$a = \lim_{k \rightarrow 0} \frac{-\delta_0(k)}{k}. \quad (3.7)$$

D'après la formule (3.5), la section efficace de collision tend alors vers une constante σ_0 , lorsque k tend vers 0 :

$$\sigma_0 = 8\pi a^2. \quad (3.8)$$

La donnée du potentiel $U_0(r)$ permet de calculer la valeur correspondante de a , en résolvant numériquement l'équation (3.2), pour $l = 0$ et $k = 0$. La figure 3.2 présente la fonction d'onde s $u_{k,l=0}(r)$ obtenue pour une énergie de collision de $5\mu\text{K}$ qui est typiquement l'énergie à laquelle le nuage est préparé dans notre expérience. Asymptotiquement, c'est une sinusoïde qui s'écrit, d'après (3.3) et (3.7) :

$$u_{k \rightarrow 0, l=0}(r \rightarrow \infty) \simeq \sin(k(r - a)). \quad (3.9)$$

La longueur de diffusion apparaît donc comme la position limite, lorsque k tend vers 0, du premier zéro de la sinusoïde asymptote comme le montre la figure 3.2 a). Avec le potentiel $U_0(r)$, tel qu'il est donné dans [PRZYBYTEK and JEZIORSKI, 2005], ce calcul conduit à $a \simeq 142.861 a_0 \simeq 7.560\text{ nm}$.

Mais ce raisonnement ne donne qu'une approximation de a . En effet, en $r = a$, le potentiel n'est pas exactement nul, la sinusoïde asymptote est alors déphasée par l'influence du potentiel, décalant la position de son premier zéro. On ajuste l'équation (3.6) par (voir [CÔTÉ and JAMIESON, 1995]) :

$$\tan(\delta_l) = -\frac{\sin(k r_1) u_{k,l=0}(r_2) - \sin(k r_2) u_{k,l=0}(r_1)}{\cos(k r_1) u_{k,l=0}(r_2) - \cos(k r_2) u_{k,l=0}(r_1)}, \quad (3.10)$$

avec $r_{1,2}$ des distances interatomiques. On a ainsi une estimation de la longueur de diffusion a et de la portée effective r_e par [FLAMBAUM *et al.*, 1999] :

$$k \cot \delta_l \simeq -\frac{1}{a} + \frac{1}{2} r_e k^2, \quad (3.11)$$

ce qui donne $a \simeq 142.587 a_0 \simeq 7.545 \text{ nm}$ et $r_e \simeq 62.430 a_0$. La notion de portée effective est abordée dans la partie 3.1.2.3. Un calcul approché (en utilisant l'approximation semiclassique) permet d'avoir une autre valeur de r_e connaissant a [FLAMBAUM *et al.*, 1999] :

$$\left\{ \begin{array}{l} r_e = \frac{\bar{a}}{3} \left[\frac{\Gamma(1/4)}{\Gamma(3/4)} \right]^2 \left[1 - 2 \frac{\bar{a}}{a} + 2 \left(\frac{\bar{a}}{a} \right)^2 \right] \\ \text{avec} \\ \bar{a} = \cos \left(\frac{\pi}{n-2} \right) \left(\frac{\gamma}{n-2} \right)^{\frac{2}{n-2}} \frac{\Gamma \left(\frac{n-3}{n-2} \right)}{\Gamma \left(\frac{n-1}{n-2} \right)} = \sqrt{2\gamma} \frac{\Gamma(3/4)}{\Gamma(1/4)} \approx 0.477989 \sqrt{\gamma} \end{array} \right. , \quad (3.12)$$

où $n = 6$, $\alpha = C_n$ et $\gamma = \sqrt{2\mu\alpha}/\hbar$ (μ est la masse réduite), ce qui donne $r_e = 62.523 a_0$.

3.1.2.2 Pseudo-potentiel

Dans la limite des basses températures (k tend vers 0), l'interaction de paire peut être décrite de manière approchée en assimilant les partenaires de la collision à deux sphères dures. Dans ce cas, le potentiel $U_0(r)$ peut être remplacé (dans l'équation (3.2), écrite pour $l = 0$) par un "pseudo-potentiel" $U_{pseudo}(r)$ [HUANG, 1963] :

$$U_{pseudo}(r) = g \delta(\vec{r}) \frac{\partial}{\partial r} r .$$

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

$$\sigma_{pseudo}(k) = \frac{\sigma_0}{1 + k^2 a^2} . \quad (3.13)$$

Le calcul numérique présenté au paragraphe précédent montre que $\sigma_{pseudo}(k)$ (tracée en gris clair sur la figure 3.1) approche $\sigma(k)$ à mieux que 10 % dès que l'énergie de la collision est inférieure à 660 μK , et à mieux que 1 % pour des énergies inférieures à 66 μK .

3.1.2.3 Potentiels à décroissance "rapide"

Signalons enfin que pour des potentiels décroissant "suffisamment" rapidement (c'est le cas des potentiels en $1/r^6$ tel que ${}^5\Sigma_g^+$ que nous étudions), une expression approchée de la section efficace de collision élastique peut être obtenue à basse température en introduisant la notion de portée effective r_e (voir, par exemple [LANDAU and LIFCHITZ, 1975] ou [COHEN-TANNOUJJI, 1999] partie II-6 et ses références). On obtient alors pour la section efficace de collision en onde s :

$$\sigma_{effective}(k) = \frac{\sigma_0}{\left(1 - \frac{1}{2} k^2 r_e a\right)^2 + k^2 a^2} . \quad (3.14)$$

La formule (3.14) est, par rapport à la formule (3.13), l'expression approchée de la section efficace de collisions élastique, à l'ordre suivant en k , dans la limite des basses températures. D'après la figure 3.1 et la discussion précédente sur le pseudo-potentiel, on conclut que la correction apportée par l'introduction de la portée effective devient pertinente pour des températures typiquement supérieures à environ 66 μK . En prenant les valeurs de a et r_e trouvées dans la partie 3.1.2.1, la section efficace effective $\sigma_{effective}(k)$ (tracée en gris foncé sur la figure 3.1) approche $\sigma(k)$ à mieux que 1 % pour des énergies de collision inférieures à 10 mK.

3.2 Les valeurs théoriques de la longueur de diffusion

Les différentes valeurs de la longueur de diffusion données par la théorie s'appuient sur la modélisation du potentiel d'interaction ${}^5\Sigma_g^+$ entre deux atomes dans l'état métastable à partir de calculs *ab initio* ou semi-empiriques.

3.2.1 Le potentiel de [STÄRCK and MEYER, 1994]

Le premier potentiel considéré comme suffisamment précis (car donnant avec certitude le bon nombre d'états liés) a été proposé dans [STÄRCK and MEYER, 1994]. À partir de ce potentiel, on peut en déduire la valeur de la longueur de diffusion a par la méthode donnée précédemment dans la partie 3.1.2.1. On trouve $a \simeq 156.8 a_0 \simeq 8.296$ nm, cette valeur de 8.3 nm est aussi donnée dans [GADÉA *et al.*, 2002] d'après une communication privée avec G. Peach (référence [5] de cet article), et une portée effective de $r_e \simeq 64.95 a_0$. L'article [STÄRCK and MEYER, 1994] a l'avantage de donner une formule analytique de leur potentiel. Mais les coefficients $C_{6,8,10}$ ne sont pas exacts ³ contrairement à ceux publiés quelques années après dans [YAN and BABB, 1998], le potentiel à longue portée est donc inexact. La longueur de diffusion étant extrêmement sensible au potentiel, la valeur de a n'est donc pas certaine. De plus, aucune barre d'erreur sur le potentiel calculé n'est donnée.

3.2.2 Le potentiel de [GADÉA *et al.*, 2002] et [DICKINSON *et al.*, 2004]

Un autre potentiel a été modélisé dans [GADÉA *et al.*, 2002] et [DICKINSON *et al.*, 2004] et est basé sur des calculs *ab initio* pour de faibles distances interatomiques (inférieures à $18 a_0$) et sur des calculs perturbatifs à longues distances à partir des coefficients $C_{6,8,10}$ donnés par [YAN and BABB, 1998]. La principale difficulté est la manière de relier les 2 parties du potentiel : 5 points (entre $19 a_0$ et $23 a_0$) de la partie à longue portée sont donc ajoutés à ceux de la partie à courte portée pour obtenir une interpolation en utilisant une fonction "spline". Pour $r < 23 a_0$, le potentiel est numérique, au delà, il a une forme analytique. Afin d'avoir une barre d'erreur sur a , différentes approximations sont faites dans les calculs *ab initio* : il est attendu que $a = 230_{-78}^{+0} a_0$ (soit $a = 12.2_{-4.2}^{+0}$ nm) avec une plus grande certitude pour la valeur supérieure [DICKINSON *et al.*, 2004]. Dans un précédent article [GADÉA *et al.*, 2002], une longueur de diffusion de $a = 291 a_0 = 15.4$ nm avait été proposée comme limite supérieure, ce qui correspond d'après [PRZYBYTEK and JEZIORSKI, 2005] à énergie de liaison de l'état lié de $E_{v=14} = -15.3$ MHz. Ces valeurs sont soumises à beaucoup d'incertitudes : la base utilisée est finie, et non infinie, et suivant l'endroit où est choisie la transition entre courte et longue portée, la longueur de diffusion a varie. Il faut remarquer que les calculs *ab initio* ne donnent pas les bons coefficients $C_{6,8,10}$ à grandes distances, ce qui nécessite l'introduction d'un raccord (source d'incertitude importante) entre les potentiels à courte et longue portée.

³Les coefficients utilisés dans [STÄRCK and MEYER, 1994] sont $C_6 = 3.276 \times 10^3$ u.a., $C_8 = 2.104 \times 10^5$ u.a., $C_{10} = 2.171 \times 10^7$ u.a. et sont obtenus en extrapolant à longues distances les calculs *ab initio* de leur potentiel à courte portée, d'où leur incertitude. Les coefficients de [YAN and BABB, 1998] sont $C_6 = 3\,276.680\,0(3)$ u.a., $C_8 = 210\,566.55(6)$ u.a., $C_{10} = 21\,786\,760(5)$ u.a. et ont été obtenue par une méthode considérée comme exacte : la polarisabilité des dipôle, quadrupôle et octopôle électriques ainsi que les coefficients de dispersions associés sont calculée à partir des fonctions d'onde composées d'un ensemble de bases doublées, et déterminées variationnellement. Ces calculs se font pour de grandes distances, les coefficients $C_{6,8,10}$ sont donc exacts.

3.2.3 Le potentiel de [PRZYBYTEK and JEZIORSKI, 2005]

Un groupe polonais [PRZYBYTEK and JEZIORSKI, 2005] a très récemment trouvé un autre potentiel à partir de celui de Born-Oppenheimer (BO) en lui ajoutant des corrections adiabatiques, relativistes, et d'électrodynamique quantique (QED). Contrairement au groupe de Toulouse, leur choix de base pour les calcul *ab initio* permet de retrouver à longue portée presque exactement les coefficients $C_{6,8,10}$ donnés par [YAN and BABB, 1998], permettant d'avoir une expression analytique du potentiel quelle que soit la distance interatomique. Les barres d'erreur viennent de l'incertitude du potentiel et du poids des différentes corrections (estimées à $\pm 10\%$ pour les corrections adiabatiques et $\pm 20\%$ pour les corrections relativistes et QED), ainsi que sur le choix de la nature de la masse (atomique ou nucléaire) de l'hélium à utiliser dans l'équation de Schrödinger. La longueur de diffusion trouvée est de $a = 7.64 \pm 0.20$ nm et l'énergie du dernier état lié de $E_{v=14} = 87.4 \pm 6.7$ MHz. Il faut préciser que cet article a été publié en même temps que les premiers résultats de l'équipe (voir la partie 3.3.5) et l'accord entre la théorie et l'expérience est remarquable.

3.2.4 Comparaison des différents potentiels théoriques

Cette partie expose la manière d'obtenir, à partir d'un potentiel théorique, la longueur de diffusion a et l'énergie de liaison $E_{v=14}$ de l'état $v = 14$ le moins lié de ce potentiel. Les différents potentiels présentés précédemment sont comparés et des approximations reliant $E_{v=14}$ à a sont données.

Afin de relier $E_{v=14}$ à a , on fait la simulation numérique suivante : à partir d'un potentiel théorique, on modifie la partie interne de ce potentiel en le multipliant par un facteur proche de 1, ce qui a pour effet de modifier a et donc $E_{v=14}$. Pour chaque modification du potentiel, on résout l'équation de Schrödinger pour différentes énergies, et on cherche celle qui correspond à $E_{v=14}$. Pour cela, il y a deux méthodes possibles :

- La première consiste à faire la résolution séparément aux courtes distances interatomiques ($r < r_0$) et aux grandes distances ($r > r_0$) avec r_0 choisie à une valeur telle que la fonction d'onde $\psi(r)$ oscille, mais pas à un de ses ventres ni à un de ses noeuds (pour éviter d'avoir une valeur nulle de la fonction d'onde ou de sa dérivée). On cherche l'énergie pour laquelle on aura l'égalité du rapport $\psi'(r_0)/\psi(r_0)$ pour les solutions obtenues aux petites et grandes distances.
- La deuxième consiste à faire la résolution jusqu'à une grande distance interatomique r_∞ (que l'on choisit telle que pour une plus grande valeur, le résultat ne change pas) pour une énergie donnée. On regarde ensuite la valeur de la fonction d'onde ψ en r_∞ : si elle est positive, l'énergie est trop grande, sinon, elle est trop petite. On cherche donc l'énergie pour laquelle $\psi(r_\infty) = 0$, qui est le comportement d'une fonction d'onde d'un état lié.

Ces deux méthodes donnent le même résultat. L'énergie trouvée correspond à celle de l'état lié $E_{v=14}$ et la longueur de diffusion a du potentiel, dont la partie interne est modifiée, est calculée comme décrit dans la partie 3.1.2.1. On a ainsi un lien entre $E_{v=14}$ et a pour chaque modification de la partie interne du potentiel.

Sur la figure 3.3 sont représentés les résultats de cette simulation pour les 4 potentiels de [STÄRCK and MEYER, 1994], [GADÉA *et al.*, 2002], [DICKINSON *et al.*, 2004], et [PRZYBYTEK and JEZIORSKI, 2005] décrits dans la partie 3.2. Les 4 courbes ne diffèrent que par quelques 100 kHz dans le pire des cas, et apparaissent donc comme superposées. Une discussion plus approfondie sur la longueur de diffusion a déduite des différents potentiels à partir de notre mesure de $E_{v=14}$ est détaillée dans la partie 6.2. Différentes approximations sont elles aussi représentées sur la figure 3.3. L'approximation classique

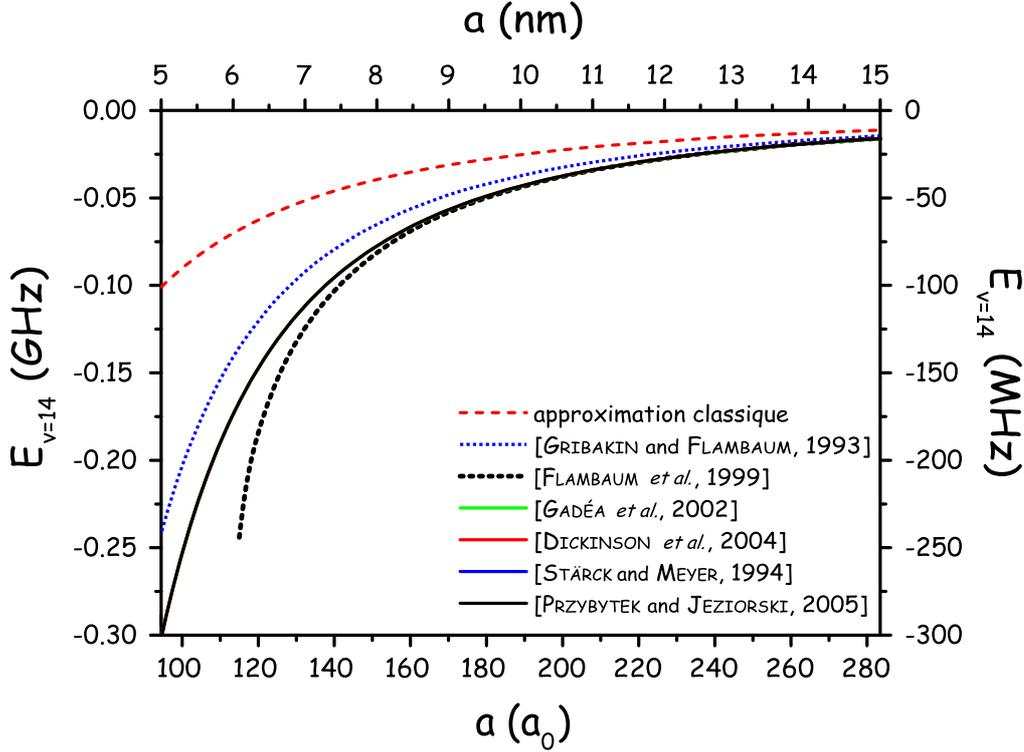


FIGURE 3.3 – Variation de la longueur de diffusion a en fonction de l'énergie vibrationnelle $E_{v=14}$ du dernier niveau lié du potentiel ${}^5\Sigma_g^+$. Les courbes en trait continu représentent la variation de a obtenue pour les différents potentiels théoriques présentés dans la partie 3.2. Les 4 courbes correspondantes sont superposées, ce qui montre bien la robustesse de la méthode spectroscopique à deux photons dans une large mesure indépendante des modèles théoriques. Différentes approximations sont aussi représentées en traits pointillés : en rouge, l'approximation classique $E = -\frac{\hbar}{2\mu a^2}$; en bleu, celle de [GRIBAKIN and FLAMBAUM, 1993] $E = -\frac{\hbar}{2\mu(a-\bar{a})^2}$, qui introduit la longueur de diffusion moyenne \bar{a} ; et en noir, celle de [FLAMBAUM *et al.*, 1999] qui utilise l'équation (3.17) avec la portée effective r_e (équation (3.12)).

suivante :

$$E = -\frac{\hbar}{2\mu a^2}, \quad (3.15)$$

est obtenue à partir de l'amplitude de diffusion $f = \frac{1}{g(k)-ik}$ lorsque l'on se contente du premier terme du développement de $g(k)$ (voir [GRIBAKIN and FLAMBAUM, 1993] ou [LANDAU and LIFCHITZ, 1975] pour plus de détails). Cette approximation est représentée en pointillés rouges sur la figure 3.3. Elle n'est valable que pour des énergies de l'état lié petites (c'est à dire de grandes longueurs de diffusion) et elle est plutôt mauvaise dans la gamme de a qui nous intéresse.

Une deuxième approximation est donnée par [GRIBAKIN and FLAMBAUM, 1993] en introduisant la "longueur de diffusion moyenne" \bar{a} de l'équation (3.12) et qui est de $\bar{a} \approx 33.42 a_0 \approx 1.769$ nm. Le déphasage $\delta_0(k)$ de la fonction d'onde de collision est linéaire pour $k > \bar{a}^{-1}$ avec une pente de $-\bar{a}$. Mais pour $k < \bar{a}^{-1}$, $\delta_0(k)$ a un comportement différent et c'est pour tenir compte de cette différence que l'approximation classique précédente est modifiée en :

$$E = -\frac{\hbar}{2\mu(a-\bar{a})^2}. \quad (3.16)$$

Elle donne une meilleure approximation que $E = -\frac{\hbar}{2\mu a^2}$ (voir la courbe en pointillés bleus).

Une troisième approximation est proposée dans [FLAMBAUM *et al.*, 1999] (voir aussi [LANDAU and LIFCHITZ, 1975]) en prenant le deuxième terme du développement de $g(k)$, avec l'introduction de la

portée effective r_e définie par l'équation (3.12) :

$$k = \frac{1}{a} + \frac{1}{2} r_e k^2 \quad \text{avec} \quad E = -\frac{\hbar^2 k^2}{2\mu}. \quad (3.17)$$

Cette approximation (en pointillés noirs) décrit beaucoup mieux que les précédentes le comportement de $E_{v=14}$ en fonction de a obtenu par les simulations des 4 potentiels. Elle est valable à mieux que 1 % pour $a > 195 a_0$ et que 10 % pour $a > 140 a_0$. Mais pour $a < 115 a_0$, elle n'est plus utilisable, puisque l'équation (3.17) n'a plus de solution réelle.

3.3 Les différentes méthodes expérimentales pour déterminer la longueur de diffusion

3.3.1 Mesure de la taille du condensat en expansion ballistique

La toute première valeur de la longueur de diffusion a a été proposée à l'occasion de la première observation de la condensation de l'He* au IOTA [ROBERT *et al.*, 2001] et à l'ENS [PEREIRA DOS SANTOS *et al.*, 2001], ce qui a été possible grâce à l'inhibition des collisions inélastiques lorsque le nuage est polarisé de spin. Les deux expériences utilisent des méthodes de détection différentes : la première en observant la chute du nuage sur une galette de micro-canaux (MCP), la deuxième par imagerie d'absorption sur une caméra CCD ("Charge-Coupled Device").

La mesure de a se fait par celle du nombre d'atomes dans la phase condensée et de sa taille après une expansion ballistique. Si la déduction de la taille ne présente pas de difficultés particulières, il est en revanche beaucoup plus délicat d'estimer le nombre absolu d'atomes dont les sources d'erreur sont multiples :

la présence de courants de Foucault induit des champs magnétiques résiduels lors de la coupure du piège magnétique, ce qui sépare les différentes composantes de spin, ne permettant que la détection du nuage dans l'état $m = 0$ dans le cas du MCP. Les atomes détectés ne représentent qu'un huitième de ceux piégés d'après les différentes vérifications réalisées [ROBERT *et al.*, 2001]. Dans le cas du CCD, les courants de Foucault font que le faisceau sonde n'est plus exactement à résonance avec le nuage.

l'ionisation Penning étant favorisée en présence de lumière résonante, des pertes dues au faisceau sonde viennent diminuer le nombre d'atomes détectés ([PEREIRA DOS SANTOS, 2002], p. 77).

Le nombre d'atomes condensés est évalué à respectivement 10^5 et 5×10^6 atomes dans les 2 expériences avec une incertitude de 50 %. Puis, à l'aide des mesures de la taille en fonction du nombre d'atomes du condensat, la longueur de diffusion a été estimée à $a = 20 \pm 10$ nm [ROBERT *et al.*, 2001] et à $a = 16 \pm 8$ nm [PEREIRA DOS SANTOS *et al.*, 2001].

3.3.2 Étude des modes hydrodynamiques et observation des collisions élastiques

La deuxième étude [LEDUC *et al.*, 2002] qui a donné une borne sur la longueur de diffusion a a été menée à l'ENS dans le but de sonder les propriétés de collisions élastiques du gaz, et en particulier d'observer le régime hydrodynamique du gaz thermique à partir du plus lent des 2 modes monopole-quadrupole. Le nuage est tout d'abord refroidi jusqu'à une température typique de quelques T_c , la température critique de transition. La température critique T_c , ainsi que le nombre d'atomes à la transition de phase N_c , sont déduits des mesures préalables du nombre relatif d'atomes dans le condensat et

le nuage thermique, évitant ainsi les problèmes de calibration absolue du nombre d'atomes. Au-dessus de T_c , 2 situations extrêmes se produisent :

le régime hydrodynamique où le libre parcours moyen entre 2 particules en collision est plus petit que la dimension du nuage,

le régime sans collision où le mouvement est décrit par un Hamiltonien à une particule.

Dans les 2 cas, le système, lorsqu'il est excité, présente des oscillations pour lesquelles des prédictions théoriques ont été faites ([GUÉRY-ODELIN *et al.*, 1999] et ses références). Cette excitation est générée en modulant la fréquence radiale de piégeage à une fréquence proche de la fréquence de résonance attendue pour le mode étudié, par la modulation du biais B_0 . La modulation est ensuite arrêtée, et le nuage commence à relaxer dans un piège magnétique plus ou moins raide selon la valeur finale choisie pour B_0 . Les oscillations du nuage sont alors visualisées en prenant des images *in situ* du gaz, après des temps de piégeage variables. La fréquence et l'amortissement de l'oscillation de la taille longitudinale sont alors extraits d'un ajustement par une sinusoïde exponentiellement amortie. La confrontation avec la théorie [GUÉRY-ODELIN *et al.*, 1999] permet d'en déduire une mesure du taux de collisions élastiques dans le gaz pour une température de $3T_c$ qui est de $\Gamma_{coll} = 3.5 \times 10^3 \text{ s}^{-1}$, ce qui correspondrait à une longueur de diffusion de $a = 6.7 \text{ nm}$.

En faisant un calcul simple à partir de la valeur de $a = 16 \text{ nm}$ obtenue précédemment dans la même équipe [PEREIRA DOS SANTOS *et al.*, 2001] (voir partie 3.3.1), les auteurs de [LEDUC *et al.*, 2002] obtiennent :

$$\Gamma_{coll} = \bar{n} \sigma \bar{v} = 3.5 \times 10^4 \text{ s}^{-1} \quad ,$$

où \bar{n} et \bar{v} sont la densité moyenne et la vitesse relative moyenne et $\sigma = 8\pi a^2$ la section efficace (3.8) définie dans la partie 3.1.2.1. Le taux de collisions élastiques mesuré est donc inférieur d'un facteur 10 à celui calculé. La valeur de $a = 6.7 \text{ nm}$ étant plus petite que la précédente estimation de $a = 16 \text{ nm}$, les auteurs de [LEDUC *et al.*, 2002] donne une valeur de la longueur de diffusion de $a < 16 \text{ nm}$.

3.3.3 Théorie du refroidissement évaporatif

Le groupe d'Amsterdam [TOL *et al.*, 2004] a développé un modèle simulant les expériences de refroidissement évaporatif dans les situations où la section efficace de diffusion élastique dépend de l'énergie de collision. Ce modèle est utilisé pour regarder l'évolution du nombre d'atomes et de la température pour l'hélium métastable lors d'une rampe d'évaporation où la fréquence de l'onde RF est abaissée progressivement. trois différents taux de pertes sont pris en compte, qui ont pour origine :

les collisions inélastiques qui sont de trois types : les collisions entre les atomes piégés et le gaz résiduel, les collisions à deux corps et à trois corps,

le déversement (ou "spilling") : lorsque la forme ou la profondeur du piège change, les états propres de plus haute énergie du potentiel de piégeage peuvent ne plus être liés. Les atomes dans ses états "se déversent" alors hors du piège,

l'évaporation où, après collision entre deux atomes, le plus énergétique des deux peut s'échapper du piège.

Ce modèle est appliqué à des expériences d'évaporation et la section efficace effective est calculée pour chaque étape d'évaporation à partir de la température et du paramètre de troncature η , avec le seul paramètre libre a . Une valeur de a est alors associée pour chaque étape. Les incertitudes sur a dans les premières étapes sont dues au fait que le modèle ne permet pas de décrire entièrement l'expérience et que a n'est déterminée qu'à partir de l'évaporation, qui ne représente que le quart des pertes d'atomes

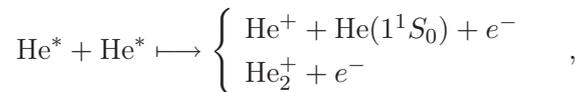
en début d'évaporation. Les incertitudes sur a dans les dernières étapes viennent de l'augmentation de l'imprécision sur la température en fin d'évaporation. La valeur de a finalement retenue est de $a = 10 \pm 5$ nm. À noter que dans un précédent article sur le même thème [HERSCHBACH *et al.*, 2003], la longueur de diffusion était supposée être de $a = 9$ nm (sans barre d'erreur), une plus grande valeur rendant incompatible l'expérience et la théorie sur le refroidissement évaporatif.

3.3.4 Observation des collisions inélastiques

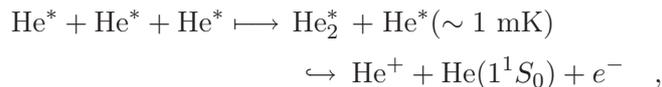
Une expérience menée par le groupe d'Orsay a consisté à utiliser la métastabilité de l'hélium comme moyen de détection par l'observation des ions créés par collisions inélastiques. Lorsque la densité du nuage est suffisamment élevée, un nuage d'atome d'He* piégé magnétiquement produit, bien qu'il soit polarisé de spin, un flux d'ions détectable.

Cette expérience exploite 2 situations spécifiques : la première où, à partir d'un condensat pur, le nombre d'atomes N est relié au potentiel chimique μ et à la longueur de diffusion a ; la deuxième où, au seuil de la condensation, le nombre d'atomes N est relié à la température critique T_c . Ces deux situations permettent d'éliminer la connaissance du nombre absolu d'atomes N . Les mesures de μ et T_c sont déduites précisément par temps de vol. La comparaison des taux d'ionisation d'un condensat pur et d'un nuage à T_c permet alors d'extraire a et les constantes de taux d'ionisation sans utiliser N .

Dans la première situation [SIRJEAN *et al.*, 2002], pour déterminer les constantes de taux d'ionisation à deux corps β correspondant au mécanisme d'ionisation Penning (première ligne) et à l'ionisation associative (deuxième ligne) :



et à trois corps L correspondant à la réaction :



il est nécessaire d'avoir une calibration absolue du nombre d'atomes N et de la densité. Pour cela, le potentiel chimique μ d'un condensat pur est déduit par temps de vol, et ne dépend alors plus que de ce temps de vol, de la masse atomique et de la gravité. Le nombre d'atomes N et la densité dans le condensat n_0 sont finalement reliés seulement à la longueur de diffusion a . Le taux d'ionisation est ensuite mesuré pour différentes densités du nuage. En comparant l'expérience avec le modèle proposé qui suppose que $a = 20$ nm, les constantes d'ionisation obtenues sont alors de $\beta_{a=20} = 2.9 \pm 2.0 \times 10^{-14} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$ et $L_{a=20} = 1.2 \pm 0.7 \times 10^{-26} \text{ cm}^6 \text{ s}^{-1}$.

Dans la deuxième situation [SEIDELIN *et al.*, 2004], le taux d'ionisation est utilisé afin d'identifier le seuil de condensation, détectable par l'augmentation de ce taux associée à l'augmentation de la densité du condensat [SEIDELIN *et al.*, 2003]. La séquence d'évaporation est alors arrêtée au seuil de la condensation pour mesurer le taux d'ionisation et le signal de temps de vol. Ce dernier est ajusté par une fonction de Bose pour en déduire la température critique T_c . Afin de tenir compte des collisions pendant l'expansion hydrodynamique du nuage, la température critique T_c est corrigée à l'aide de l'équation de Boltzmann (voir par exemple [GERBIER *et al.*, 2004] et ses références, ainsi que la théorie de [PEDRI *et al.*, 2003]) appliquée à un gaz idéal de Bose [KAVOULAKIS *et al.*, 2000]. Il faut aussi prendre en compte le taux d'ions détectés, qui dépend de l'efficacité de détection $\alpha = 0.42$, ce qui modifie d'un facteur $1/\alpha$ le taux d'ionisation ainsi que les constantes de taux

d'ionisation à 2-corps β et à 3-corps L , déjà mesurées auparavant [SIRJEAN *et al.*, 2002]. Si cette efficacité α est la même dans les 2 expériences, ce qui a été vérifié, il n'y a aucune influence de α sur la température critique T_c .

La longueur de diffusion a est ensuite déterminée [SEIDELIN *et al.*, 2004] en traçant le taux d'ionisation en fonction de la température critique T_c et en l'ajustant à l'aide d'une fonction donnant le taux d'ionisation avec le seul paramètre libre a , β et L étant eux même paramétrés par a . La longueur de diffusion est alors de $a = 11.3_{-1.0}^{+2.5}$ nm. Les constantes de taux de collisions sont recalculées pour tenir compte de la nouvelle valeur de a , et de la possibilité que l'efficacité de détection α soit d'un facteur 2 plus petit : $\beta = 0.9_{-0.8}^{+1.7} \times 10^{-14}$ cm³ s⁻¹ et $L = 2.5_{-1.7}^{+4.5} \times 10^{-27}$ cm⁶ s⁻¹. Une telle surestimation de α ou la présence de pertes non-ionisantes donneraient une valeur de la longueur de diffusion a plus petite.

3.3.5 Déplacement lumineux de raies moléculaires

Dans notre équipe, une première mesure de a par photoassociation à un photon a été menée, en utilisant les déplacements lumineux produits sur les raies moléculaires du potentiel 0_u^+ en utilisant de fortes intensités laser [KIM *et al.*, 2005a]. Les déplacements lumineux des niveaux moléculaires est un phénomène bien connu, qui a déjà été observé sur des atomes froids pour le sodium Na ([MCKENZIE *et al.*, 2002] et [SAMUELIS *et al.*, 2003]) et le lithium Li ([GERTON *et al.*, 2001] et [PRODAN *et al.*, 2003]). Une théorie des déplacements lumineux a été développée par [BOHN and JULIENNE, 1999] et [SIMONI *et al.*, 2002], et sert de base à cette partie.

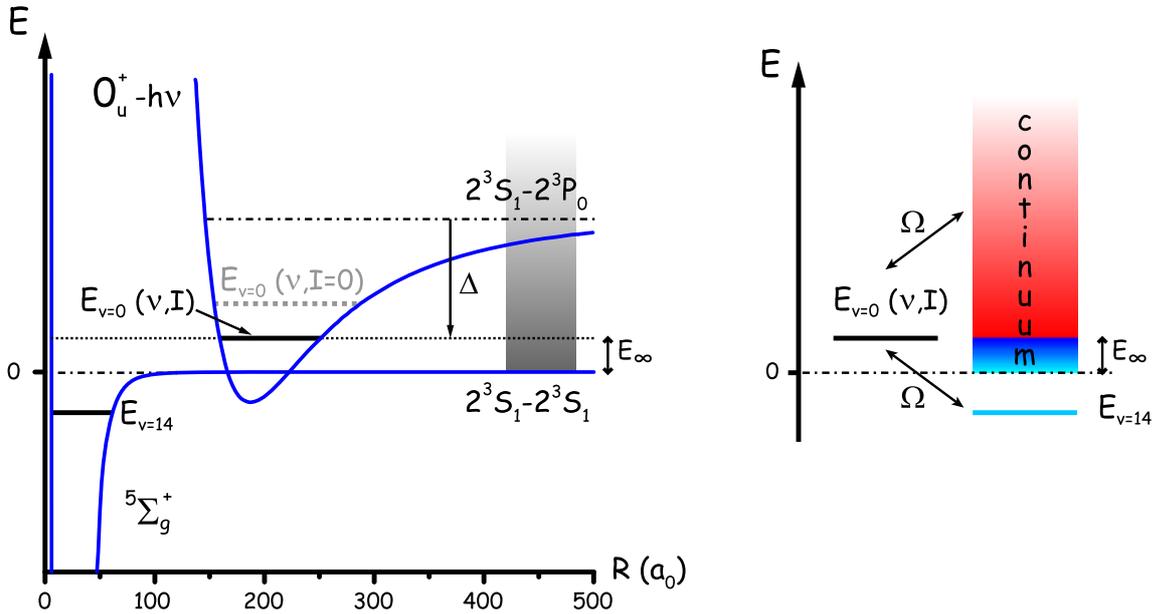


FIGURE 3.4 –

À gauche, le potentiel d'interaction $5\Sigma_g^+$ entre deux atomes d'He* polarisés de spin et le potentiel à purement long portée 0_u^+ sont illustrés dans la représentation en atomes habillés. Δ est le désaccord du laser de PA par rapport à la transition atomique. Les atomes en collision avec l'énergie $E_\infty = k_B T$ sont à résonance avec l'état lié $v = 0$ de 0_u^+ . Cet état se trouve dans le continuum d'état de diffusion, représenté en gris, ce qui produit un déplacement lumineux de $v = 0$. Le dernier état lié $v = 14$ du potentiel $5\Sigma_g^+$, proche de résonance, contribue aussi au déplacement.

À droite, le continuum et les deux états liés sont représentés isolément, afin de mieux illustrer le phénomène de déplacement et les couplages Ω mis en jeu. L'état $v = 0$ subit un déplacement lumineux dont les deux contributions sont le continuum et l'état $v = 14$. D'après l'équation (3.19), tous les états du continuum au-dessus de $v = 0$, c'est-à-dire d'énergie supérieure à E_∞ , vont déplacer $v = 0$ dans le rouge, tandis que ceux en-dessous, d'énergie inférieure à E_∞ , vont le déplacer dans le bleu. L'état $v = 14$, qui est aussi en-dessous de $v = 0$ induit un déplacement dans le bleu d'après l'équation (3.18).

Le laser de PA, de fréquence ν , couple un état moléculaire excité ($v = 0$ sur l'exemple de la figure 3.4) au continuum des états de diffusion et à tout état moléculaire proche de résonance, tel que le dernier état lié $v = 14$ du potentiel ${}^5\Sigma_g^+$. La lumière induit un couplage décrit par l'approximation dipolaire électrique par l'opérateur $\vec{d} \cdot \vec{E}$, où \vec{d} est le dipôle électrique de la molécule, et \vec{E} le champ laser. De ce couplage, noté Ω , résulte un déplacement de la raie moléculaire $v = 0$ quand le laser de PA est à résonance. Il y a donc essentiellement deux contributions au déplacement de l'énergie de liaison $E_{v=0}$ de $v = 0$, une due au continuum (δ_C), et l'autre à l'état $v = 14$ ($\delta_{v=14}$). La contribution de l'état $v = 14$ s'écrit :

$$\delta_{v=14} = \frac{|\langle \Phi_{v=0}^e | \Omega | \Phi_{v=14}^g \rangle|^2}{E_{v=0} - E_{v=14}}, \quad (3.18)$$

où le numérateur est le couplage entre l'état $v = 14$ de fonction d'onde $\Phi_{v=14}^g$ et l'état excité $v = 0$, de fonction d'onde $\Phi_{v=0}^e$. Le signe de ce déplacement est donné par la différence des énergies de liaison des deux niveaux liés $E_{v=0} - E_{v=14}$, qui est négative, d'où un déplacement de la raie $v = 0$ dans le bleu. La contribution du continuum s'écrit de manière similaire, mais il faut intégrer sur tous les états d'énergie E du continuum :

$$\delta_C = \frac{1}{2\pi} \wp \left(\int_0^{+\infty} \frac{\Gamma(E)}{E_{v=0} - E} dE \right) \quad \text{avec} \quad \Gamma(E) = 2\pi |\langle \Phi_{v=0}^e | \Omega | \Psi_E^g \rangle|^2, \quad (3.19)$$

où \wp est la valeur principale. Le couplage $\Gamma(E)$ fait intervenir la fonction d'onde $\Phi_{v=0}^e$ du niveau excité, et celle Ψ_E^g de chaque niveau d'énergie E du continuum du potentiel fondamental. Le signe de chaque contribution individuelle des états de diffusion d'énergie E dépend, comme pour $\delta_{v=14}$, de la différence $E_{v=0} - E$. La somme de ces contributions individuelles va donc dépendre de $E_{v=0}$, c'est-à-dire de l'énergie moyenne des atomes $E_\infty = k_B T$ comme l'illustre la figure 3.4 (partie de droite). Le continuum va donc déplacer la raie $v = 0$ dans le rouge ou le bleu, suivant la température T du nuage atomique.

On a ainsi un déplacement total $\delta_C + \delta_{v=14}$ de la raie $v = 0$ qui peut être aussi bien dans le bleu que dans le rouge, en fonction de la température T . L'amplitude de ce déplacement dépend de la longueur de diffusion a . Cette influence de a à deux origines :

1. La première vient du fait que le couplage $\Gamma(E)$ fait intervenir le recouvrement de Ψ_E^g et $\Phi_{v=0}^e$. Or la position du premier zéro de Ψ_E^g est reliée à a pour de faibles énergies de collision, comme l'illustre la figure 3.2.
2. La deuxième est, comme on l'a vu dans la partie 3.2.4, que l'énergie $E_{v=14}$ du dernier état moléculaire du potentiel ${}^5\Sigma_g^+$ est reliée fortement à a .

On peut donc déduire la longueur de diffusion des amplitudes des déplacements lumineux qui est de $a = 7.2 \pm 0.6$ nm, et qui est en accord avec celle obtenue dans notre expérience à deux photons sur les résonances noires du chapitre 6 et celle estimée par l'effet photo-mécanique du chapitre 4.

Le lecteur pourra trouver la théorie complète appliquée à l'He* ainsi que l'étude expérimentale détaillée que nous avons menée dans la thèse de Maximilien Portier, qui sera soutenue courant 2007. L'article expérimental publié est présenté en annexe E.

3.3.6 Les autres méthodes encore non utilisées sur l'He*

D'autres méthodes de mesure de la longueur de diffusion a existent, mais n'ont pas été appliquées au cas de l'hélium métastable. Par exemple, la mesure des intensités des raies de photoassociation à un photon : pour qu'une transition vers un état électronique excité soit possible, le principe de Franck-Condon impose que l'amplitude de la fonction d'onde de l'état initial soit non nulle au voisinage du point de Condon (c'est à dire à la distance interatomique la plus probable à laquelle se fasse la transition

électronique, voisin du point de rebroussement externe classique de l'état lié excité). Ainsi, l'intensité des raies de transition vers les potentiels électroniques excités est modulée par les variations de la fonction d'onde dans l'état initial de diffusion. Or la position des zéros de cette dernière représente une mesure directe du déphasage $\delta_0(k)$ de l'onde s diffusée, et donc de la longueur de diffusion dans l'état initial (voir la partie 3.1.1). L'analyse de l'intensité des raies de photoassociation a permis la mesure précise des longueurs de diffusion des espèces Li, Na, Rb, K et Cs (voir par exemple l'article de revue [WEINER *et al.*, 1999] et ses références, ainsi que [WILLIAMS *et al.*, 1999] et [DRAG *et al.*, 2000]). Cette méthode n'a pas été appliquée au cas de l'hélium dans le potentiel 0_u^+ car il n'y a pas assez de niveaux moléculaires pour déduire a avec une précision satisfaisante.

L'article de [BUGGLE *et al.*, 2004] se base sur une méthode d'interférence pour mesurer les amplitudes de diffusion en onde s et d grâce à la collision entre deux nuages atomiques. Les nuages sont accélérés à des énergies qui permettent une interférence entre les ondes s et d . On observe alors un halo de diffusion par imagerie d'absorption. Une transformation tomographique des images donnent la distribution angulaire, qui est proportionnelle à la section efficace différentielle. Théoriquement, on peut en déduire les déphasages $\delta_0(k)$ et $\delta_2(k)$ et donc la longueur de diffusion. Cette méthode a l'avantage de ne pas utiliser la densité des nuages.

3.4 Conclusion

Dans ce chapitre, Les différentes estimations théoriques et expérimentales de la longueur de diffusion a en onde s de l'hélium ont été présentées. En particulier, les deux mesures de a les plus récentes sont en contradiction, celle de [SEIDELIN *et al.*, 2004] avec $a = 11.3_{-1.0}^{+2.5}$ nm et celle de [KIM *et al.*, 2005a] avec $a = 7.2 \pm 0.6$ nm réalisée dans notre équipe. Seule cette dernière estimation est en parfaite accord avec la théorie de [PRZYBYTEK and JEZIORSKI, 2005] qui propose $a = 7.64 \pm 0.20$ nm. Il apparaît comme nécessaire de résoudre cette contradiction sur la valeur exacte de a , et d'affiner sa mesure pour réduire la barre d'erreur expérimentale. La méthode de spectroscopie à deux photons semble adéquate, car, comme expliqué dans la partie 3.2.4, une mesure de l'énergie de liaison de l'état $v = 14$ le moins lié du potentiel $^5\Sigma_g^+$ permettrait de déduire a en étant dans une large mesure indépendant des potentiels théoriques. Mais avant d'aborder la mesure spectroscopique de a , une nouvelle méthode pour mesurer a , jamais utilisée auparavant, est présentée dans le chapitre suivant.

Chapitre 4

Effet photo-mécanique de la photoassociation : une nouvelle méthode pour mesurer a

Ce chapitre présente une nouvelle méthode pour mesurer la longueur de diffusion a à partir de la photoassociation à un photon en utilisant un effet mécanique sur le nuage atomique dû à l'impulsion transmise par les photons du laser de PA. Ces effets mécaniques ont fait l'objet d'une publication de notre équipe [KIM *et al.*, 2005b]. Ces effets, à notre connaissance, n'ont jamais été utilisés antérieurement pour mesurer a . Dans un premier temps, la notion de taux de photoassociation est abordée succinctement, puis illustrée par des expériences de mesures de pertes d'atomes dues à la photoassociation du nuage atomique. Cette notion sert aussi dans la dernière partie de ce chapitre qui présente la nouvelle mesure de a par effet photo-mécanique de la PA.

4.1 Taux de photoassociation

Le processus de photoassociation change la densité atomique locale $n(t, \vec{r})$ d'après [MCKENZIE *et al.*, 2002] comme :

$$\dot{n}(t, \vec{r}) = -K_{\text{PA}}(I, \omega) n^2(t, \vec{r}) \quad (4.1)$$

où $K_{\text{PA}}(I, \omega)$ est le taux de photoassociation, dépendant de l'intensité I du laser de PA et de sa fréquence ω . On peut écrire le taux de PA en fonction des éléments de la matrice de diffusion S . L'élément $|S_{0,v}(E, I, \Delta_1)|^2$ est la probabilité de PA par collision lorsque le laser de PA est désaccordé de Δ_1 par rapport à la transition entre l'état électronique $2^3S_1 + 2^3S_1$ (noté 0) et l'état moléculaire v . Il s'écrit, d'après [BOHN and JULIENNE, 1999] :

$$|S_{0,v}(E, I, \Delta_1)|^2 = \frac{\gamma \Gamma}{[E - (\Delta_1 - E_d)]^2 + \left(\frac{\gamma + \Gamma}{2}\right)^2}, \quad (4.2)$$

où γ est la largeur de l'état moléculaire considéré, et Γ le taux de transition associé au laser de PA. E_d est un déplacement lumineux qui est induit par la photoassociation. Une illustration graphique de la probabilité $|S_{0,v}|^2$ est donnée par la figure 4.1.

Le taux de transition peut s'écrire, d'après [BOHN and JULIENNE, 1999] :

$$\Gamma = 2\pi \left| \int_0^\infty V_{0,v}^{\text{rad}}(R) f_0(R) \phi_v(R) dR \right|^2, \quad (4.3)$$

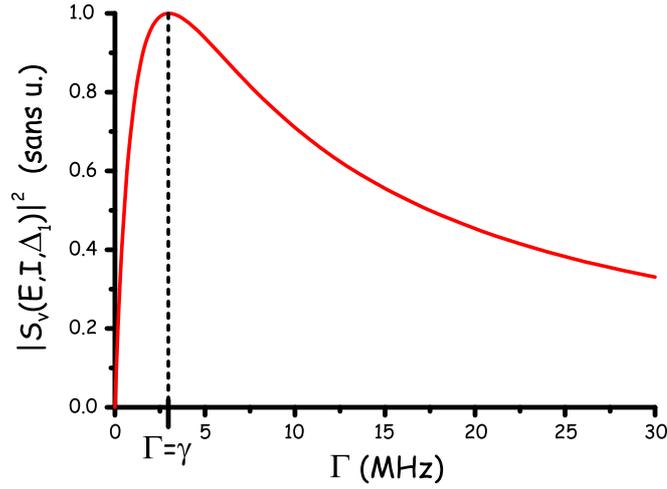


FIGURE 4.1 – Illustration graphique de la probabilité $|S_{0,v}(E, I, \Delta_1)|^2$ du processus de PA en fonction du taux de transition Γ du laser du PA. Le laser est à résonance entre l'état initial et la raie moléculaire v , c'est à dire que $\Delta_1 = E$ (le déplacement lumineux E_d est ici négligé). Dans ce cas la probabilité du processus de PA est de $|S_{0,v}(E, I, \Delta_1)|^2 = 1$ lorsque $\Gamma = \gamma$ (on a pris ici $\gamma = 3$ MHz).

où $\phi_v(R)$ est la fonction d'onde de l'état excité moléculaire v et $f_0(R)$ celle du continuum, qui dépend du vecteur d'onde $k_\infty = \sqrt{2\mu k_B T}/\hbar^2$ à la température T et de la longueur de diffusion a , et que l'on peut approximer pour $R \rightarrow \infty$ à :

$$f_0(R) \simeq \sqrt{\frac{2\mu}{\pi \hbar^2 k_\infty}} \sin[k_\infty(R - a)]. \quad (4.4)$$

$V_{rad}(R)$ est le couplage radiatif qui dépend de l'intensité I et du dipôle électrique moléculaire $d(R)$:

$$V_{rad}(R) = \sqrt{\frac{2\pi I}{c}} d(R),$$

avec $d(R)$ qui peut être écrit en fonction du dipôle atomique, calculé dans [LÉONARD, 2003].

On peut alors écrire le taux de PA en fonction de la l'élément de matrice $|S_{0,v}|^2$ (voir [NAPOLITANO *et al.*, 1994]) :

$$K_{PA} = \frac{k_B T}{h \left(\frac{2\pi \mu k_B T}{h^2} \right)^{3/2}} \sum_{l=0}^{+\infty} (2l+1) \int_0^\infty |S_{0,v}(E, I, \Delta_1)|^2 e^{-E/k_B T} \frac{dE}{k_B T}, \quad (4.5)$$

où μ est la masse réduite de l'hélium, et $k_B T$ l'énergie du nuage atomique. Le taux K_{PA} de PA est en cm^3/s . Si on le multiplie par la densité d'atomes, on a le nombre de molécules formées par seconde. Ainsi, pour une intensité de I_{sat} , on forme environ 21 molécules par seconde dans l'état excité $v = 0$ et environ 78 molécules par seconde dans $v = 1$.

Il est possible de définir un taux de PA à la limite unitaire K_u , qui est le taux correspondant à une probabilité de 1 ($|S_{0,v}|^2 = 1$) de photassocier un atome (on prend seulement ici la contribution de $l = 0$) :

$$K_u = \frac{k_B T}{h \left(\frac{2\pi \mu k_B T}{h^2} \right)^{3/2}} \sum_{l=0}^{+\infty} (2l+1). \quad (4.6)$$

Pour une température de $T = 4 \mu\text{K}$, le taux de PA unitaire vaut $K_u = 1.96 \times 10^{-8} \text{ cm}^3/\text{s}$ (on prend seulement la contribution en onde s pour cette température). Il faut remarquer que K_u est la valeur maximale que peut atteindre K_{PA}

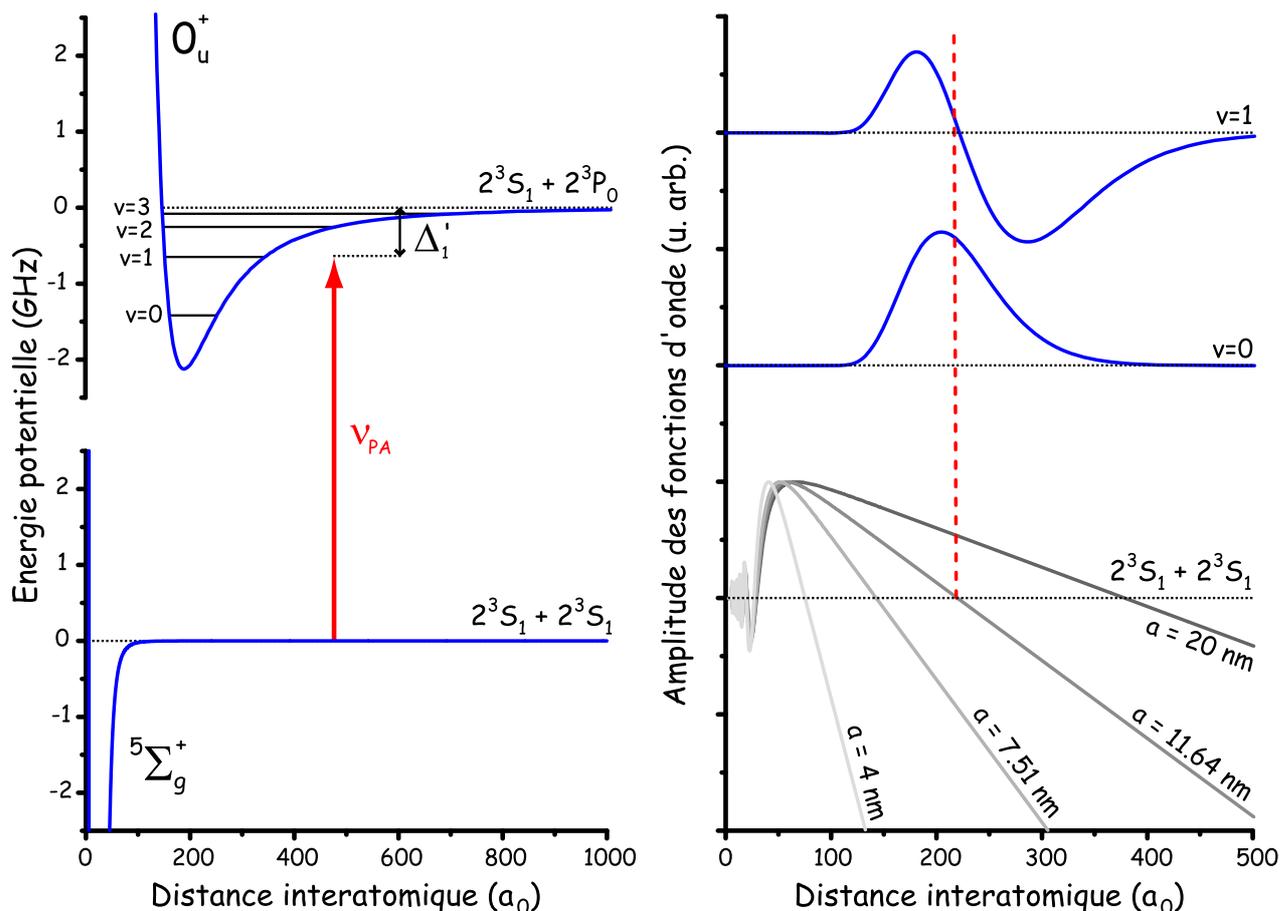


FIGURE 4.2 – À gauche de la figure, est rappelé le schéma de la photoassociation à un photon. L'échelle d'énergie est respectée.

À droite de la figure sont représentées les fonctions d'onde des niveaux excités moléculaires $v = 0$ et $v = 1$ ainsi que celles de l'état de collisions $2^3S_1 - 2^3S_1$ pour une énergie nulle et pour quatre longueurs de diffusion a différentes, $a = 4, 7.5105$ (la valeur mesurée au chapitre 6), 11.64 (la valeur pour laquelle le recouvrement de la fonction d'onde de l'état de collision avec celle de l'état $v = 0$ est nulle), et 20 nm. Les amplitudes relatives des fonctions d'onde ne sont pas respectées, exceptée celle du niveau $v = 0$ relativement à $v = 1$. On peut voir que la fonction d'onde de l'état de collision dépend fortement de la valeur de a . Par conséquent, le recouvrement entre cette fonction d'onde et celle de l'état excité moléculaire varie en fonction de a . La droite verticale en pointillé indique la distance interatomique à laquelle la fonction d'onde de l'état de collision pour $a = 11.64$ nm s'annule. Le recouvrement de cette fonction d'onde avec celle de l'état $v = 0$ est nulle pour cette valeur de a .

Il est important de remarquer que l'on peut calculer les taux K_{PA} par l'intermédiaire du taux de transition Γ . En effet, comme $\Gamma \propto I$ d'après l'équation (4.3), on a aussi $K_{PA} \propto I$ pour des intensités I suffisamment faible. En mesurant l'intensité I , on peut déduire Γ et donc K_{PA} . Ainsi, pour une intensité de I_{sat} , le taux de PA vaut, $K_{PA}^{v=0} 1.38 \times 10^{-12}$ cm³/s pour $v = 0$ et $K_{PA}^{v=1} 5.22 \times 10^{-12}$ cm³/s pour $v = 1$.

Les fonctions d'onde finales des différents états liés du potentiel excité O_u^+ ont été calculées dans [LÉONARD, 2003]. Et, d'après l'équation (4.4), la fonction d'onde de l'état initial $2^3S_1 - 2^3S_1$, peut être calculée facilement (le calcul pour de grandes distances interatomiques est suffisant puisque les états excités sont des états à purement longue distance) et ne dépend que de la longueur de diffusion a . Le recouvrement des fonctions d'onde initiale et finale varie donc en fonction de a comme l'illustre la figure 4.2. Or, le taux de transition Γ est lié au recouvrement des fonctions d'onde des états initial et final d'après l'équation (4.3), il dépend donc aussi de a . Le tableau 4.1 regroupe les taux de transition associés aux niveaux $v = 0$ et $v = 1$ pour différentes valeurs de a . On peut constater que les taux de

transition dépendent très fortement de a . En particulier, pour $a \approx 11.64$ nm, le recouvrement de la fonction d'onde de l'état de collisions $2^3S_1 - 2^3S_1$ avec celle de l'état $v = 0$ s'annule. Comme K_{PA} est relié à Γ , on peut déduire a en mesurant et en comparant les taux K_{PA} de différentes raies moléculaires. C'est ce qui fait l'objet des deux prochaines parties.

a (en nm)	4.00	7.5105	10	11.30	11.64	20.00
$\Gamma_{v=1}/\hbar$ (en Hz)	320.5	201.4	133.6	103.6	96.44	0.910
$\Gamma_{v=0}/\hbar$ (en Hz)	182.2	53.22	8.376	0.355	3×10^{-5}	218.5
$\Gamma_{v=1}/\Gamma_{v=0}$	1.76	3.78	15.95	292	3.2×10^6	0.004

TABLE 4.1 – Pour 6 valeurs de la longueur de diffusion a (dont celles de la figure 4.2) sont reportés les taux de transition Γ de l'équation (4.3) associés aux niveaux moléculaires $v = 1$ et $v = 0$ pour une intensité du laser de PA de $I = I_{\text{sat}} = 0.17$ mW.cm $^{-2}$ (voir [METCALF and VAN DER STRATEN, 1999]), ainsi que le rapport $\Gamma_{v=1}/\Gamma_{v=0}$. On peut constater que ce dernier diverge pour $a \approx 11.64$ nm, car le recouvrement des fonctions d'onde du niveau $v = 0$ et de l'état de collision s'annule pour cette valeur comme l'illustre la figure 4.2. Il est important de noter que le rapport $\Gamma_{v=1}/\Gamma_{v=0}$ est indépendant de I .

4.2 Mesure des pertes d'atomes induites par PA

On a vu dans la partie précédente, que le taux de PA associé à une raie moléculaire dépend du recouvrement entre la fonction d'onde initiale (celle de deux atomes en collision dans l'état 2^3S_1) et la fonction d'onde de l'état moléculaire considéré. On a donc une efficacité du processus PA différente en fonction des raies qui peut être utilisée pour déduire a . Afin de mettre en évidence cette différence, nous avons voulu étudier expérimentalement les pertes d'atomes induites par PA et les comparer avec le modèle de [MCKENZIE *et al.*, 2002] qui donne les variations de la densité d'atomes locale $n(\tau_{\text{PA}}, \vec{r})$ après un temps de PA τ_{PA} comme étant :

$$n(\tau_{\text{PA}}, \vec{r}) = \frac{n(0, \vec{r})}{1 + K_{\text{PA}}(I, \nu_{\text{PA}}) n(0, \vec{r}) \tau_{\text{PA}}}, \quad (4.7)$$

où $K_{\text{PA}}(I, \nu_{\text{PA}})$ est le taux de PA avec I l'intensité du laser de PA et ν_{PA} sa fréquence. Pour avoir le nombre d'atomes perdus, il faut intégrer l'équation (4.7) sur l'ensemble des positions \vec{r} en prenant comme distribution du nombre d'atomes $n(0, \vec{r})$ celle de Maxwell-Boltzmann, l'expérience étant faite à une température de $T = 5$ $\mu\text{K} > T_c$.

On fait l'expérience correspondante pour les raies moléculaires $v = 0$ et $v = 1$ (voir la figure 4.3), en faisant varier l'intensité I tout en gardant τ_{PA} constant. Afin de rendre compte dans l'équation (4.7) de la variation d'intensité, on va faire apparaître la dépendance en I de $K_{\text{PA}}(I, \nu_{\text{PA}})$. Dans notre expérience, les taux de transition associés aux intensités de photoassociation sont négligeables ($\Gamma \approx 0.005$ MHz) devant la largeur du niveau moléculaire qui est de $\gamma \approx 2.7$ MHz. De même, l'énergie de collision $E \approx 0.1$ MHz à faible température est négligeable devant γ . On peut donc réécrire la constante de couplage de l'équation (4.2) de la façon suivante :

$$|S_{0,v}(E, \Delta_1 = E + E_d)|^2 \simeq \frac{4\Gamma}{\gamma}.$$

Le taux de PA est alors de :

$$K_{\text{PA}}(I, \nu_{\text{PA}}) \simeq K_u \frac{4\Gamma}{\gamma}.$$

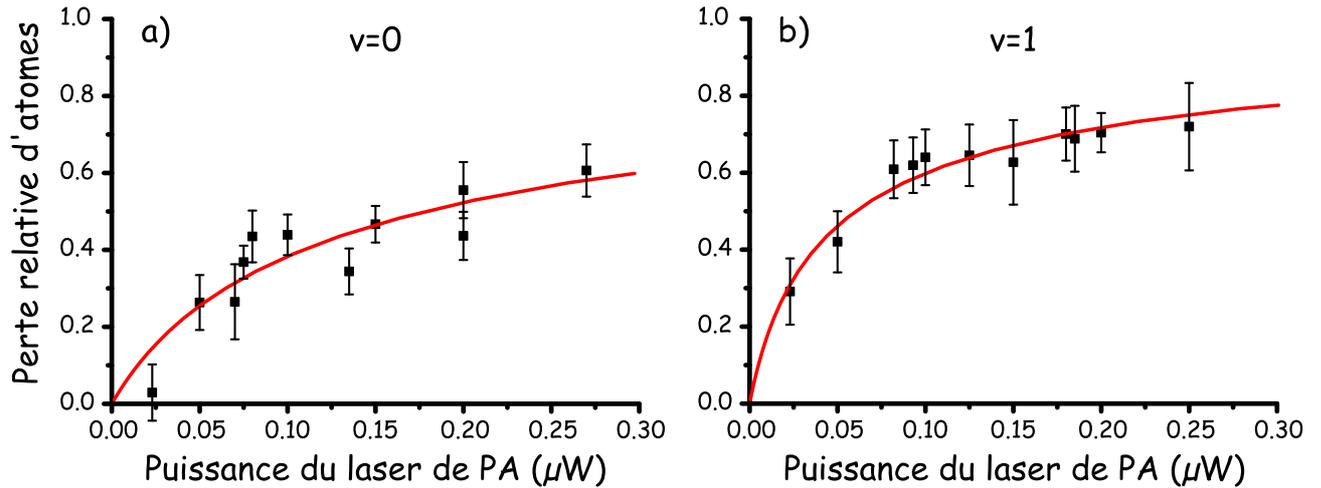


FIGURE 4.3 – Étude des pertes d'atomes (en relatif) lors de la photoassociation du nuage atomique en fonction de l'intensité du laser de PA. Cette figure ne représente pas les pertes d'atomes, mais le rapport de ces pertes sur le nombre d'atomes total. Les courbes en rouge sont obtenues à l'aide de l'équation (4.7) (après intégration sur une distribution de Maxwell-Boltzmann) et n'ont qu'un seul paramètre ajustable \tilde{K} , inclu dans $K_{\text{PA}}(I, \nu_{\text{PA}}) = \tilde{K}(\nu_{\text{PA}})I$ (voir le texte pour plus de précision).

a - Étude des pertes relatives induit par PA à résonance avec $v = 0$. $\tilde{K}_{v=0} = K_u \times 0.44 \times 10^4$. K_u est le taux de PA à la limite unitaire défini par l'équation (4.6).

b - Étude des pertes relatives induit par PA à résonance avec $v = 1$. $\tilde{K}_{v=1} = K_u \times 1.30 \times 10^4$.
($\tau_{\text{PA}} = 1$ ms)

Or, le taux de transition Γ est proportionnel à l'intensité I (pour plus de détail voir l'expression de Γ à la partie 4.1). Si on est donc dans des conditions où $\Gamma \ll \gamma$, on peut écrire que :

$$K_{\text{PA}}(I, \nu_{\text{PA}}) = \tilde{K}(\nu_{\text{PA}})I.$$

Il faut noter que $\tilde{K}(\nu_{\text{PA}})$ contient toutes les autres dépendances, y compris celle sur le recouvrement des fonctions d'onde initiale et finale, que l'on recherche.

On utilise donc \tilde{K} comme paramètre ajustable des courbes théoriques (en rouge sur la figure 4.3) calculées à partir de l'équation (4.7) pour décrire l'évolution des pertes d'atomes en fonction de la puissance du laser de PA (proportionnelle I). On peut tirer deux conclusions des courbes théoriques ajustant les données expérimentales. La première est que le modèle de [MCKENZIE *et al.*, 2002] permet de reproduire qualitativement le comportement des pertes d'atomes, comme on peut le voir sur la figure 4.3. La deuxième est que le rapport des taux de PA déduit des ajustements est de $\tilde{K}_{v=1}/\tilde{K}_{v=0} \approx 3$ (qui correspond à une longueur de diffusion de $a = 6.74$ nm). On peut comparer cette valeur avec celle que l'on obtient par le calcul, comme expliqué dans la partie 4.1, et qui vaut $K_{v=1}/K_{v=0} = 3.78$ (pour $a = 7.5105$ nm). L'expérience donne donc un rapport proche de celui attendu, ce qui est satisfaisant au vu de l'importance des barres d'erreur sur les pertes d'atomes et de la difficile reproductibilité de l'expérience lors de la détermination des nombres d'atomes et donc des pertes.

Il faut remarquer que l'on pourrait directement obtenir une courbe théorique reproduisant les pertes d'atomes, sans avoir recours à un paramètre ajustable \tilde{K} . Mais ceci demanderait une calibration de l'intensité I de PA afin de calculer exactement $K_{v=0}$ et $K_{v=1}$ dans l'équation (4.7). Cette calibration n'a pas été faite lors de cette expérience, ce qui explique que l'on a eu recours au rapport des taux de PA, éliminant ainsi la dépendance en intensité. Mais on peut tout de même déduire des mesures des pertes d'atomes un ordre de grandeur de la longueur de diffusion a . En effet, les mesures montrent que le rapport $K_{v=1}/K_{v=0}$ est faible, inférieure à 10. Le tableau 4.1 permet alors d'exclure des longueurs

de diffusions supérieures à 10 nm, le rapport $K_{v=1}/K_{v=0}$ étant supérieur à 15. Ces mesures effectuées dans cette partie contredisent la valeur de a de [SEIDELIN *et al.*, 2004] qui donne $a < 10$ nm.

4.3 Effet mécanique induit par la photoassociation

4.3.1 Déplacement du nuage

Lors de l'analyse des spectres de PA, nous utilisons en général les signaux sur la température du nuage, sa densité optique et son nombre d'atomes. Mais nous avons pu observer un autre effet sur une quatrième caractéristique du nuage, sa position. Cet effet mécanique de la photoassociation sur le nuage a été découvert fortuitement et a fait l'objet d'un article [KIM *et al.*, 2005b]. On peut voir cet effet sur la figure 4.4 où les positions du nuage atomique sur deux axes du piège sont représentées en fonction du désaccord du laser de PA.

En peut en déduire deux choses :

La première est que cet effet n'affecte le nuage que dans l'axe de propagation du faisceau de PA.

Ce déplacement est de l'ordre de plusieurs dizaines de μm (le maximum que l'on ait observé est d'environ 250 μm) pour un nuage de 180 μm dans la direction longitudinale. L'origine du déplacement du nuage est donc due à ce faisceau laser.

La seconde est que cet effet apparaît pour un certain désaccord du laser de PA qui correspond à celui d'une raie moléculaire. On est donc en présence d'un effet moléculaire.

Cet effet peut être expliqué de la façon suivante : les atomes du nuage absorbent un photon qui a une énergie d'environ 1 eV (1.86×10^{-19} J exactement pour une longueur d'onde de 1083 nm), puis la molécule se désexcite en émettant radiativement un photon de même longueur d'onde approximativement, mais dans une direction arbitraire. Ainsi, les atomes subissent en moyenne un déplacement nul donné par l'impulsion de recul due à l'absorption du photon. Bien qu'une partie seulement des atomes soit photoassociée, la thermalisation du nuage va distribuer l'énergie de recul totale apportée par la photoassociation, expliquant un mouvement macroscopique de l'ensemble du nuage atomique, qui est alors visible sur nos spectres.

4.3.2 Mesure de la fréquence du piège

Si les atomes subissent une impulsion donnée par le faisceau de PA à résonance, ils doivent donc, si on ne coupe pas le piège magnétique, y faire des oscillations. Or, nous avons déjà une étape dans la séquence temporelle expérimentale qui peut être utilisée dans ce but (voir la partie 2.3) : nous avons une séquence de thermalisation entre la photoassociation et la coupure du piège dont la durée τ_{therm} (définie dans la partie 2.3 et figure 2.4) peut être modifiée. Ainsi, le piège est coupé à différents moments et l'amplitude des oscillations du nuage est amplifiée par l'expansion balistique de τ_{tof} pendant laquelle le nuage se déplace horizontalement sous l'effet de son impulsion finale au moment de la coupure. Nous obtenons alors les oscillations très visibles de la figure 4.5-a.

La fréquence de ces oscillations dépend de la forme du piège. Elles permettent donc la mesure de la fréquence de piégeage dans l'axe du piège parallèle à l'axe de propagation du faisceau de PA. Pour faire précisément cette mesure, on répète plusieurs fois la même expérience, mais pour des temps de thermalisation τ_{therm} s'étalant sur 1 s. On obtient alors la figure 4.5-b dont on extrait, à l'aide d'un ajustement par une sinusoïde, la fréquence de piégeage longitudinale qui est alors de $\omega_{\parallel} = 2\pi \times (90.06 \pm 0.01)$ Hz. On mesure habituellement les fréquences du piège par une autre méthode, en faisant osciller

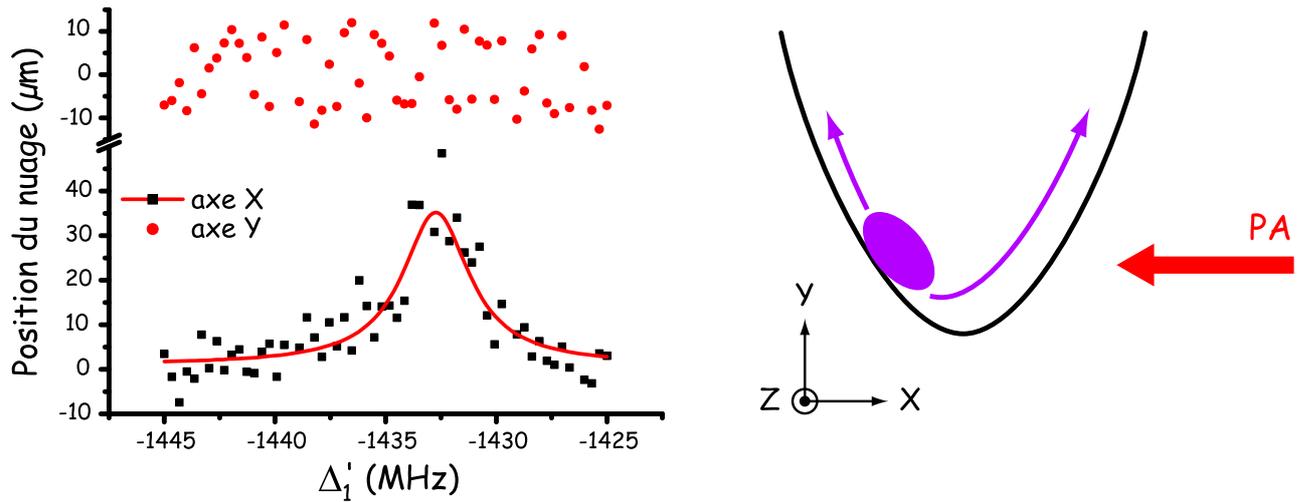


FIGURE 4.4 – Spectre de photoassociation pour la raie $v = 0$ en mesurant la position du nuage suivant l'axe X (axe de propagation du faisceau de PA) et l'axe Y (perpendiculaire à la direction de propagation). Une résonance moléculaire apparaît sur la position du nuage suivant l'axe X, mais pas suivant l'axe Y. Le schéma de droite illustre l'interprétation de ce phénomène, le nuage est déplacé par l'impulsion que lui communique le faisceau de PA.

($P_1 = 10$ mW, $\tau_{PA} = 10$ μ s, $\tau_{\text{therm}} = 400$ μ s)

le nuage en appliquant un gradient de champ magnétique pendant un bref moment (voir [LÉONARD, 2003], p. 36). La valeur déduite par cette méthode est de $\omega_{\parallel} = 2\pi \times (90.8 \pm 0.1)$ Hz. Les deux valeurs sont différentes de 0.8 % et leur barre d'erreur ne se recouvre pas, mais la différence n'est pas significative, trois ans séparant le moment où ont été faites ces deux expériences. Il est plus important de remarquer que la précision de la nouvelle méthode est 10 fois supérieure à l'ancienne. Ceci est dû au fait que l'expérience de la figure 4.5-b a été faite sur un temps beaucoup plus long (1 s) que celle qui lui est antérieure (17 ms). Seule ω_{\parallel} a été mesurée avec la photoassociation. Il est bien évident que ω_{\perp} peut l'être de la même façon, il suffit de changer la direction du faisceau de PA en le mettant transversalement au piège magnétique.

On peut remarquer aussi sur la figure 4.5-b un amortissement avec un temps caractéristique de l'ordre de $\tau = 2.5$ s. Cet amortissement est dû aux pertes naturelles par évaporation, les atomes qui sortent du piège emportant une énergie supérieure à l'énergie moyenne.

On a ainsi avec la photoassociation une autre méthode extrêmement simple pour mesurer les fréquences de piégeage. Mais elle est plus délicate à mettre en place sur une expérience qui ne fait pas de photoassociation, alors que l'ajout d'une bobine pour créer un gradient de champ suffit dans l'autre méthode. Il faut aussi noter qu'en photoassociant, nous utilisons une raie moléculaire, mais *a priori* une raie atomique suffirait. Que des molécules soient créées ou non est secondaire, seule l'impulsion donnée par la lumière est utile pour avoir un déplacement du nuage.

4.3.3 Détermination de la longueur de diffusion a

On peut aussi étudier les oscillations du nuage avec la photoassociation vers une autre raie moléculaire que $v = 0$. C'est ce que nous avons fait avec $v = 1$, dans le but de comparer les amplitudes des oscillations comme le montre la figure 4.6-a. On peut remarquer que ces amplitudes varient linéairement en fonction de l'intensité du laser de PA, ce qui confirme que le nuage est suffisamment froid pour explorer la partie harmonique du piège, comme expliqué dans la partie 1.3.1. En effet, pour des valeurs suffisamment faibles de l'intensité de PA I_1 , le nombre d'atomes photoassociés N_{PA} est proportionnel au taux de PA

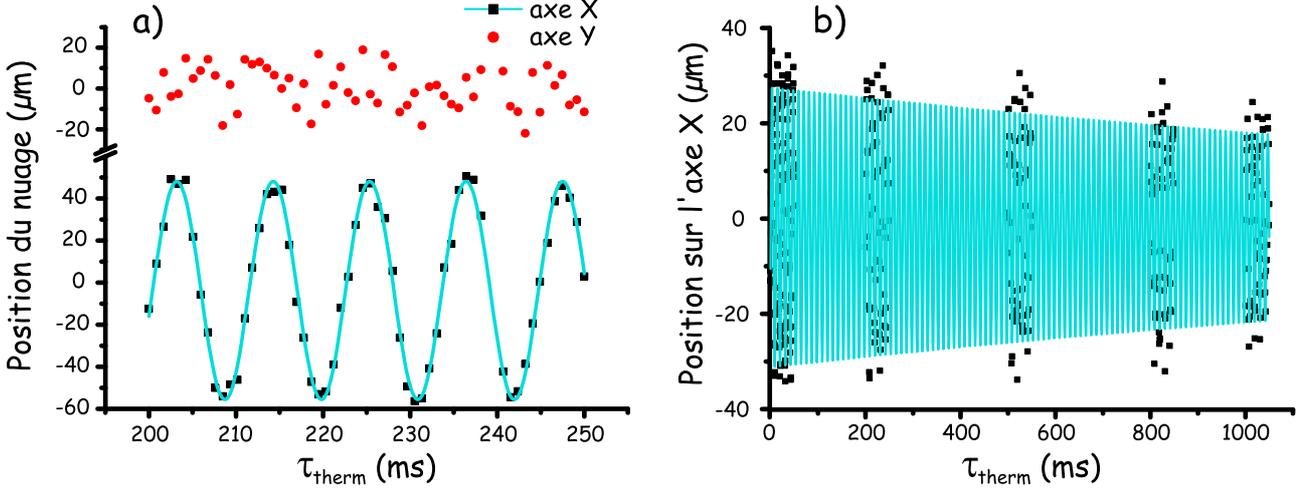


FIGURE 4.5 –

a - Oscillations du nuage dans le piège magnétique, en fonction du temps de thermalisation τ_{therm} , observées après expansion ballistique. Les oscillations n'apparaissent que sur l'axe X, c'est-à-dire dans la direction de propagation du faisceau de PA. La courbe en bleu est un ajustement sinusoïdale.

($P_1 = 4.2 \text{ mW}$, $\tau_{\text{PA}} = 100 \text{ }\mu\text{s}$)

b - Oscillations du nuage pour 5 expériences du même type que celle de la figure-a, mais pour des plages de temps τ_{therm} différents, allant de 0 à 1 s. De cette figure, on extrait à l'aide d'un ajustement sinusoïdale amortie (courbe en bleu) la fréquence de piégeage selon l'axe X (ou axe longitudinal) qui est de $\omega_{\parallel} = 2\pi \times (90.06 \pm 0.01) \text{ Hz}$ et le temps caractéristique d'amortissement qui est d'environ $\tau = 2.5 \text{ s}$.

($P_1 = 2.5 \text{ mW}$, $\tau_{\text{PA}} = 100 \text{ }\mu\text{s}$)

K_{PA} , lui-même proportionnel à I et l'impulsion moyenne du nuage est, après thermalisation, de $N_{\text{PA}} \hbar \vec{k}$ (\vec{k} étant relié à notre longueur d'onde de $\lambda = 1083 \text{ nm}$). Après la coupure du champ magnétique de piégeage, le nuage se déplace librement et parcourt une distance proportionnelle à son impulsion (et au temps de vol) et donc à I . On a bien des amplitudes d'oscillation linéaires en fonction de l'intensité du laser de PA dans un piège harmonique.

Un ajustement linéaire en fonction de I_1 donne des pentes de $11.8 \pm 0.5 \text{ }\mu\text{m/mW}$ pour $v = 0$ et $44.3 \pm 2.8 \text{ }\mu\text{m/mW}$ pour $v = 1$. Cette différence entre les deux pentes est due au fait que la constante de couplage $\Gamma_{v=1}$ (ou taux de transition) de la raie $v = 1$ est supérieure à celle de $v = 0$ à cause d'un meilleur recouvrement des fonctions d'onde initiale et finale (pour plus de détails voir la partie 4.1). Le rapport $\Gamma_{v=1}/\Gamma_{v=0}$ des constantes de couplage est donc égal au rapport des amplitudes d'oscillation, qui est de 3.75 ± 0.40 d'après la figure 4.6-a.

Les mesures des amplitudes d'oscillations nous permettent d'en déduire la longueur de diffusion a , comme l'illustre la figure 4.6-b, où est représenté le rapport des amplitudes en fonction de a . Ce rapport diverge pour $a \approx 11.64 \text{ nm}$, ce qui est attendu car le noeud de la fonction d'onde initial (voir la figure 2.1) est au milieu de la fonction d'onde finale (de $v = 0$), produisant un recouvrement des fonctions d'onde nul et donc une constante de couplage $\Gamma_{v=0}$ valant zéro. De part et d'autre de cette divergence, on peut tirer une valeur de a à partir de notre valeur expérimentale du rapport d'amplitude d'oscillation. On obtient $a = 7.48_{-0.36}^{+0.29} \text{ nm}$ et $13.83 \pm 0.09 \text{ nm}$. Il aurait fallu faire cette expérience pour une autre raie moléculaire ($v = 2$ par exemple) pour exclure l'une des deux valeurs.

On a ainsi une nouvelle méthode utilisant la photoassociation qui permet de déduire la longueur de diffusion a . Cette méthode est très simple expérimentalement, il suffit d'être à résonance avec différentes raies moléculaires et photoassocier un nuage à une température de quelques μK pour différentes intensités de PA (un condensat n'est même pas nécessaire). La théorie est elle aussi très simple, la connaissance

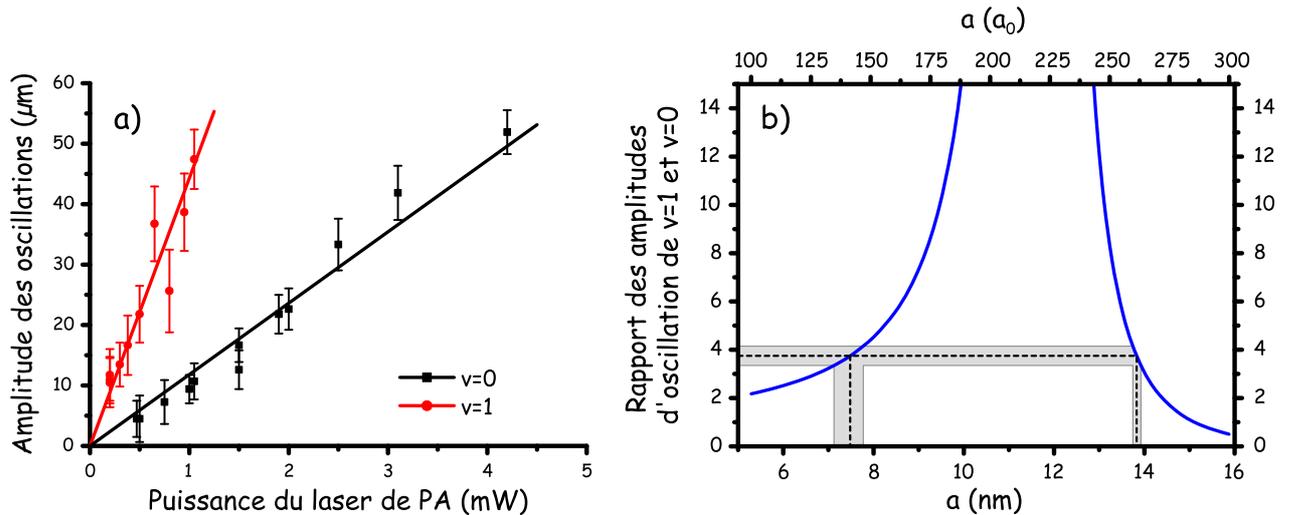


FIGURE 4.6 –

a - Amplitude des oscillations en fonction de la puissance du laser de PA pour deux raies moléculaires, $v = 0$ et $v = 1$. Un ajustement linéaire donne des pentes de $11.8 \pm 0.5 \mu\text{m}/\text{mW}$ pour $v = 0$ et $44.3 \pm 2.8 \mu\text{m}/\text{mW}$ pour $v = 1$. Les pentes sont différentes car elles sont proportionnelles aux taux de PA des deux raies, qui sont différents.

($\tau_{\text{PA}} = 100 \mu\text{s}$)

b - Rapport théorique des amplitudes des oscillations de la figure-a en fonction de la longueur de diffusion a , obtenue à partir du rapport des taux de PA des deux raies $v = 0$ et $v = 1$ qui dépendent de a . Avec un rapport d'amplitude ($v = 1$ sur $v = 0$) expérimental de 3.75 ± 0.40 représenté par la zone grisée, on obtient deux plages de valeurs pour la longueur de diffusion, qui sont de $a = 7.48^{+0.29}_{-0.36}$ nm et 13.83 ± 0.09 nm.

des parties à longue portée des potentiels suffisent pour calculer les constantes de couplage Γ_v , aucun modèle des potentiels d'interaction n'est nécessaire. Cette méthode n'a jamais été utilisée auparavant, et permet pourtant de calculer a de façon très efficace comme on la vu, la valeur de $a = 7.48^{+0.29}_{-0.36}$ nm étant en parfaite accord avec nos deux autres mesures présentées au chapitre 6 et dans l'annexe E. En effet, la longueur de diffusion la plus précise mesurée au chapitre 6 est de $a = 7.5105 \pm 0.0010$ nm, ce qui donne $\Gamma_{v=1}/\Gamma_{v=0} = 3.78$, on a donc un excellent accord.

4.4 Conclusion

Dans ce chapitre, on a montré que des taux K_{PA} de photoassociation dépendent de la longueur de diffusion a , et que leur mesure pour différentes raies moléculaires excitées permet de déduire une valeur de a . Afin d'illustrer ce principe, on a voulu obtenir une estimation de a à partir de l'étude des pertes d'atomes induits par PA. Cette méthode est similaire à celle, présentée dans la partie 3.3.6, où l'on mesure les intensités des raies de photoassociation à un photon. Mais les mesures des pertes d'atomes sont trop bruitées pour en déduire a .

Toutefois, une autre méthode permet d'estimer les taux K_{PA} . Elle se base sur l'observation d'un déplacement du nuage atomique sous l'effet de l'impulsion du laser de PA, ce qui permet au nuage d'effectuer des oscillations dans le piège magnétique. L'impulsion ainsi communiquée est reliée à l'intensité du laser de PA et au taux K_{PA} associé à la raie moléculaire excitée. Par la mesure des amplitudes des oscillations du nuage, on peut donc déduire les taux K_{PA} de différentes raies et en déduire a . Cette méthode n'a jamais été utilisée auparavant et permet pourtant une mesure précise de a dans notre cas, que l'on estime être de $a = 7.48^{+0.29}_{-0.36}$ nm et qui est en excellent accord avec la mesure du chapitre 6 ($a = 7.5105 \pm 0.0010$ nm) et avec la théorie de [PRZYBYTEK and JEZIORSKI, 2005] ($a = 7.64 \pm 0.20$ nm).

Il faut mentionner que l'on a aussi observé un effet photo-mécanique à deux photons, qui fait l'objet de l'annexe B.

Chapitre 5

La spectroscopie à deux photons

Ce chapitre introduit les bases qui serviront à l'analyse des spectres de photoassociation pour déduire a du chapitre 6, ainsi que la durée de vie de molécules exotiques que l'on peut produire à l'aide de la spectroscopie à deux photons (chapitre 7). La première partie présente la technique de spectroscopie à deux photons dont la théorie est traitée dans la deuxième partie. Les deux dernières parties abordent les différents types de signaux obtenus par la spectroscopie à deux photons et leur interprétation.

5.1 Principe de la spectroscopie à deux photons

La spectroscopie à deux photons est une méthode de photoassociation qui tire profit de la remarque suivante : au cours d'une expérience de photoassociation à un photon, la paire d'atomes, excitée par l'absorption de ce photon vers un niveau lié moléculaire, peut se désexciter radiativement en une paire liée dans l'état fondamental. Cette transition est possible sous réserve que le recouvrement entre les deux états moléculaires vibrationnels considérés soit non nul. Elle peut être aussi stimulée par l'utilisation d'un second laser désaccordé vers le bleu par rapport au laser de photoassociation. Une transition Raman stimulée à deux photons permet alors de transférer une partie de la population d'atomes de l'état de diffusion vers un état lié dans le potentiel fondamental.

Le schéma de principe de la photoassociation à deux photons est représenté sur la figure 5.1 dans le cas de l'hélium métastable : un premier photon de fréquence ν_1 excite, à partir d'une paire libre d'atomes dans l'état 2^3S_1 , un dimère géant dans l'état $v = 0$ du potentiel 0_u^+ à très longue portée, et un deuxième photon de fréquence ν_2 couple l'état moléculaire $v = 0$ à l'état moléculaire lié $v = 14$ du potentiel électronique initial $5\Sigma_g^+$. Comme on l'a vu dans la partie 4.1, le taux de photoassociation induit par le deuxième photon dépend de l'élément de matrice réduit du dipôle électrique moléculaire entre les deux états moléculaires couplés. Le recouvrement des fonctions d'ondes initiale et finale (représentées sur la figure 5.1) est donc à prendre en compte dans cette estimation pour le choix du niveau excité. Or l'état excité $v = 0$ présente le meilleur recouvrement des fonctions d'ondes avec l'état $v = 14$. De plus, bien que le recouvrement de la fonction d'onde de l'état $v = 0$ avec celle du continuum $2^3S_1 + 2^3S_1$ est plus faible que celui des 5 autres états du potentiel 0_u^+ avec le continuum, il est moins faible que ne le sont les recouvrements des fonctions d'ondes des 5 autres états avec l'état $v = 14$. Le choix de $v = 0$ comme état de transition est donc celui qui représente notre meilleur espoir de détecter le niveau lié $v = 14$.

Cette technique de production de molécules dans l'état électronique fondamental a été appliquée avec succès par plusieurs équipes ([LABURTHE TOLRA *et al.*, 2001], [WYNAR *et al.*, 2000], et [ABRAHAM *et al.*, 1995]). Dans le groupe de Heinzen [WYNAR *et al.*, 2000], par exemple, une spectroscopie extrêmement

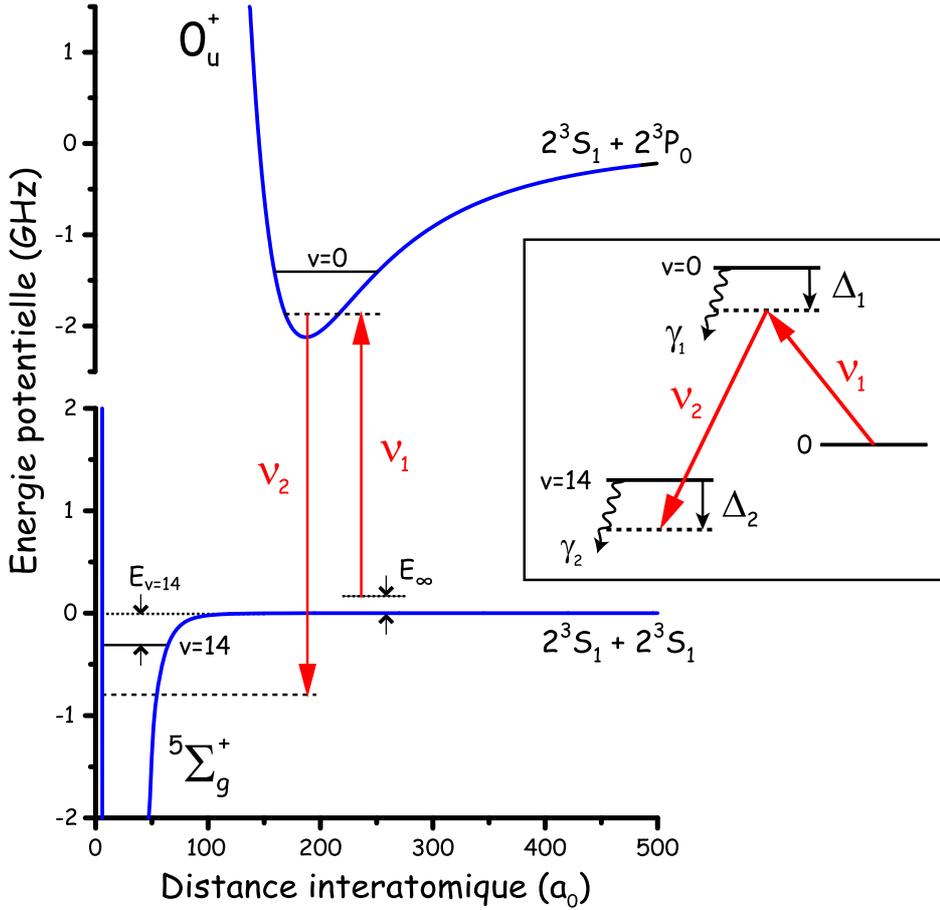


FIGURE 5.1 – Schéma de principe d’une expérience de photoassociation à deux photons. L’échelle d’énergie n’est pas respectée. ${}^5\Sigma_g^+$ est le potentiel d’interaction entre 2 atomes métastables polarisés 2^3S_1 , $v = 14$ en est le niveau vibrationnel le moins lié. Le laser L_1 de fréquence ν_1 induit une transition “libre-lié” avec un désaccord de Δ_1 entre l’état électronique $2^3S_1 + 2^3S_1$, et l’état moléculaire $v = 0$ du potentiel O_u^+ . Le laser L_2 de fréquence ν_2 permet une transition “lié-lié” avec un désaccord de $\Delta_2 - \Delta_1$ entre les états moléculaires $v = 0$ et $v = 14$. Ces 2 niveaux sont caractérisés par des taux de désexcitation spontanée de γ_1 et γ_2 . Une partie des notations utilisées, notamment la définition de Δ_1 et Δ_2 , provient de [BOHN and JULIENNE, 1996] et [BOHN and JULIENNE, 1999].

fine de molécules produites à partir d’un condensat de ${}^{87}\text{Rb}$ a permis de mettre en évidence l’influence de l’environnement des molécules sur leur énergie de liaison. Des effets très fins (dans la gamme du kHz), interprétés dans le cadre d’une théorie de champ moyen, ont démontré l’existence d’interactions atomes-molécules et/ou molécules-molécules.

Cette technique permet de mesurer très précisément l’énergie de liaison du dernier état lié du potentiel fondamental, et donc, en particulier d’en déduire la longueur de diffusion.

Les désaccords Δ_1 et Δ_2 sont définis dans l’encart de la figure 5.1 :

$$\begin{cases} \Delta_1 = E_{v=0} - h\nu_1 \\ \text{et} \\ \Delta_2 = h\nu_2 - (E_{v=0} - E_{v=14}) + \Delta_1 = E_{v=14} - h(\nu_1 - \nu_2) \end{cases}$$

Ces définitions proviennent de la théorie de [BOHN and JULIENNE, 1996] et [BOHN and JULIENNE, 1999] qui sert à l’analyse des spectres, et seront donc souvent utilisées, malgré que Δ_2 dépende de Δ_1 , ce qui peut compliquer certains raisonnements. On définit aussi les désaccords Δ'_1 et Δ'_2 comme étant les désaccords respectifs du premier et second photon par rapport à la transition atomique $2^3S_1 \rightarrow 2^3P_0$. Ces désaccords sont ceux utilisés pour l’obtention des spectres, et ils en constituent l’abscisse. On a

donc :

$$\begin{cases} \Delta'_1 = -\Delta_1 - (E_\infty + E_{2^3P_0} - E_{v=0}) \\ \text{et} \\ \Delta'_2 = -\Delta_2 - (E_\infty + E_{2^3P_0} - E_{v=0} - E_{v=14}) \end{cases} .$$

5.2 Théorie de la spectroscopie à deux photons, interprétation et formule d'ajustement

La théorie de la spectroscopie à deux photons est développée dans [BOHN and JULIENNE, 1996] et [BOHN and JULIENNE, 1999] que nous utilisons pour ajuster nos spectres expérimentaux. Cette théorie donne les éléments de la matrice S de diffusion $S_{0,v=0}$ et $S_{0,v=14}$ (l'état 0 représente l'état de collision $2^3S_1 + 2^3S_1$), dont le module carré donne les probabilités de former une molécule dans l'état v considéré :

$$\begin{cases} |S_{0,v=0}|^2 = \frac{n(\Gamma, \Omega, \gamma_1, \gamma_2, \Delta_1, \Delta_2, E_\infty)}{d(\Gamma, \Omega, \gamma_1, \gamma_2, \Delta_1, \Delta_2, E_\infty)} \\ |S_{0,v=14}|^2 = \frac{16\Gamma\gamma_2\Omega^2}{d(\Gamma, \Omega, \gamma_1, \gamma_2, \Delta_1, \Delta_2, E_\infty)} \end{cases}, \quad (5.1)$$

où

$$\begin{aligned} n(\Gamma, \Omega, \gamma_1, \gamma_2, \Delta_1, \Delta_2, E_\infty) &= 16\Gamma\gamma_1 \left[(E_\infty - \Delta_2)^2 + \left(\frac{\gamma_2}{2}\right)^2 \right] \\ d(\Gamma, \Omega, \gamma_1, \gamma_2, \Delta_1, \Delta_2, E_\infty) &= 16\Omega^4 - 8\Omega^2 [-\gamma_2(\Gamma + \gamma_1) + 4(E_\infty - \Delta_1)(E_\infty - \Delta_2)] \\ &\quad + [(\Gamma + \gamma_1)^2 + 4(E_\infty - \Delta_1)^2] [\gamma_2^2 + 4(E_\infty - \Delta_2)^2], \end{aligned}$$

avec $\Delta_{1,2}$ les désaccords des lasers L_1 et L_2 définis sur la figure 5.1, $\gamma_{1,2}$ les largeurs respectives des niveaux moléculaires $v = 0$ et $v = 14$, et E_∞ l'énergie de collision de deux atomes dans l'état 2^3S_1 . Γ est le taux associé à la transition continuum-lié $2^3S_1 + 2^3S_1 \rightarrow v = 0$ et Ω est la fréquence de Rabi de la transition lié-lié $v = 0 \rightarrow v = 14$:

$$\begin{cases} \Gamma = 2\pi \left| \int_0^\infty V_{0,v=0}^{rad}(R) f_0(R) \phi_{v=0}(R) dR \right|^2 \\ \hbar\Omega = \left| \int_0^\infty V_{v=0,v=14}^{rad}(R) \phi_{v=0}(R) \phi_{v=14}(R) dR \right| \end{cases},$$

avec $V^{rad}(R)$ le couplage radiatif, $\phi_{v=0}(R)$ la fonction d'onde de l'état moléculaire excité $v = 0$, $\phi_{v=14}(R)$ celle de l'état $v = 14$ et $f_0(R)$ celle du continuum. Ces notations reprennent celles de la théorie de Bohn et Julienne. Il faut noter que, comme V^{rad} est proportionnel à la racine de l'intensité, on a $\Gamma \propto I_1$ et $\Omega \propto \sqrt{I_2}$.

Les probabilités de transfert $|S_{0,v=0}|^2$ et $|S_{0,v=14}|^2$ sont utilisées pour les ajustements des spectres. Les paramètres de ces ajustements sont aux nombres de 9 :

- le taux de transition Γ du laser L_1 . Pour les intensités I_1 utilisées, les valeurs de Γ sont négligeables devant celles de γ_1 et γ_2 (voir partie 7.2.1). On le fixe donc à $\Gamma = 0.004$ MHz.
- la fréquence de Rabi Ω du laser L_2 . On peut obtenir une valeur de Ω en le calibrant (partie 7.1.1).
- les désaccords $\Delta_{1,2}$ des lasers L_1 et L_2 définis sur la figure 5.1. Ils sont laissés libres lors des ajustements.

- la largeur $\gamma_1/2\pi = 2.7 \pm 0.3$ MHz de l'état $v = 0$ du potentiel 0_u^+ . Il est important de noter que γ_1 dépend de l'intensité : on a effectivement observé que la raie $v = 0$ s'élargie à forte intensité. γ_1 est donc laissé libre si on utilise de fortes intensités, et il est fixé à faibles intensités.
- la largeur γ_2 de l'état $v = 14$ du potentiel $^5\Sigma_g^+$. Sa mesure fait l'objet du chapitre 7.
- l'énergie de collision E_∞ de deux atomes dans l'état 2^3S_1 . Elle est déterminée en mesurant la température moyenne du nuage.
- un offset et une amplitude. Les probabilités de transfert étant proportionnels aux signaux de PA, ces deux paramètres supplémentaires permettent d'adapter la formule d'ajustement aux différents spectres suivant que l'on observe la température, le nombre d'atomes, la densité optique ou la position du nuage.

Les ajustements sont utilisés sur les figures des spectres pour “guider l'oeil”, et non pour avoir une mesure quantitative des paramètres laissées libres. Seul le chapitre 7 utilise les ajustements pour une mesure quantitative de γ_2 .

5.3 Les différents types de signaux obtenus

La spectroscopie à deux photons donne différents signaux en fonction des désaccords des lasers L_1 et L_2 , de leur intensité et selon le laser qui est balayé en fréquence. On peut recenser 3 types de spectres, ayant tous en commun la présence de résonance noire atomes-molécules.

5.3.1 La résonance noire atomes-molécules

Habituellement, le terme de **résonance noire** est utilisé pour décrire la superposition d'états de deux niveaux atomiques stables g_1 et g_2 (voir la figure 5.2). Ces niveaux sont couplés, avec ou non un certain désaccord Δ , à un niveau atomique e excité par deux lasers. Si les deux lasers sont à résonance, le niveau excité e n'est plus peuplé. Ceci est dû aux interférences destructives des deux amplitudes de transition vers le niveau e . Si on appelle Ω_1 et Ω_2 les couplages des transitions, l'état |état noir> associé à la résonance noire peut s'écrire :

$$|\text{état noir}\rangle = \Omega_1 |g_2\rangle - \Omega_2 |g_1\rangle .$$

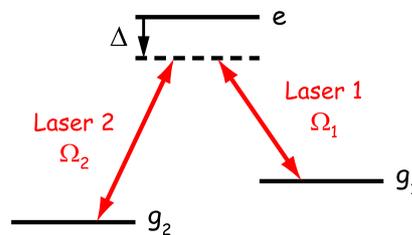


FIGURE 5.2 – Configuration de niveaux permettant d'observer les résonances noires.

Les résonances noires sont un outil très utilisé pour de nombreuses applications, telles que les magnétomètres ultrasensibles, le refroidissement laser sub-recul, le transfert cohérent de population entre deux états stables (STRIRAP), la transparence induite électromagnétiquement (EIT).

Les **résonances noires atomes-molécules** sont similaires aux résonances noires dans un atome. Les niveaux atomiques du précédent schéma 5.2 doivent être remplacés par des niveaux moléculaires ou

niveaux avec deux atomes libres. La figure 5.3 explique comment observer un état noir atome-molécule. Afin de comprendre le phénomène se produisant, on commence par la photoassociation à un photon : on crée des molécules excitées e à partir d'une paire d'atomes libres g_1 en illuminant le nuage atomique avec le premier laser. Lorsque le second laser illumine à son tour le nuage, l'état noir apparaît si la condition de résonance Raman est satisfaite $h\nu_2 - h\nu_1 = E_{g_1} - E_{g_2}$.

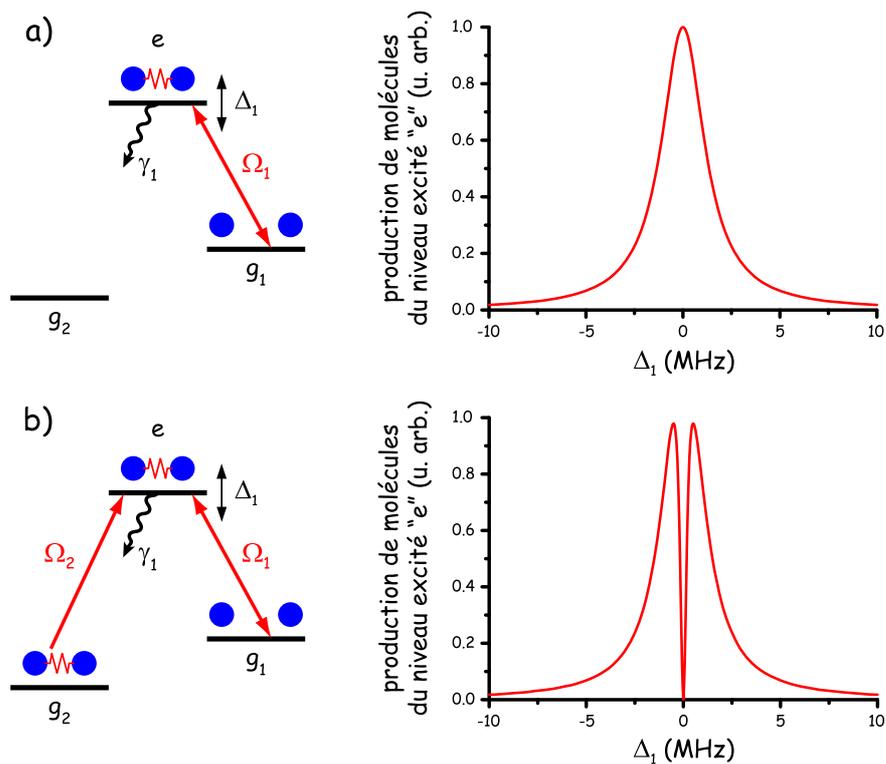


FIGURE 5.3 – Principe de la résonance noire atome-molécule :

a - Production de molécules du niveau excité e en fonction du désaccord Δ_1 du laser depuis le niveau e . Le laser lie ensemble deux atomes libres du niveau g_1 pour former une molécule excitée. Cette molécule se désexcite radiativement avec un taux γ_1 , qui donne la largeur à mi-hauteur de la lorentzienne représentant la raie moléculaire.

b - Quand est appliqué un second laser (de fréquence fixée), le niveau moléculaire excité e est couplé avec le niveau moléculaire fondamental g_2 , inhibant fortement la formation de molécule dans l'état e . Un état noir est ainsi créé par la superposition cohérente d'états atomiques et moléculaires. La largeur de cette résonance noire dépend de l'intensité du second laser. Sur cette figure, les deux lasers sont considérés comme étant à résonance avec le niveau e afin de simplifier l'illustration. Il est bien évident que le phénomène de résonance noire est présent lorsque les deux lasers sont à résonance avec un niveau virtuel, comme l'illustre la figure 5.2, l'essentiel étant que la condition Raman soit remplie.

Plusieurs expériences mettant en évidence les résonances noires ont été faites, notamment dans le groupe de P. Pillet sur le césium à une température inférieure à $200 \mu\text{K}$ ([LABURTHE TOLRA *et al.*, 2001] et [LISDAT *et al.*, 2002]), dans le groupe de C. Zimmermann sur lithium dans un MOT (0.5 mK) [SCHLÖDER *et al.*, 2003]. Plus récemment en 2005, deux autres groupes ont étudié les résonances noires, R. Grimm avec le rubidium dans un BEC [WINKLER *et al.*, 2005] et P. D. Lett avec du sodium à une température inférieure à $300 \mu\text{K}$ [DUMKE *et al.*, 2005]. Il est à noter que dans ce dernier article, il n'est pas fait mention de résonance noire mais de "transparence électriquement induite" (EIT), ce qui est similaire.

5.3.2 Le doublet Autler-Townes

Le premier type spectre obtenu avec la spectroscopie à deux photons correspond au cas où le laser L_2 est à résonance entre les niveaux moléculaires $v = 0$ et $v = 14$ ($\Delta_2 = \Delta_1$), pendant que le laser L_1 est balayé (voir le schéma de principe de la figure 5.4). Si on utilise de fortes intensités pour le laser L_2 , un couplage (à la fréquence de Rabi Ω) est induit entre les deux niveaux moléculaires, couplage plus grand que la largeur naturelle $\gamma_1/2\pi = 2.7$ MHz de l'état excité $v = 0$ ($\Omega \gtrsim \gamma_1$). Ceci a pour effet d'habiller les deux niveaux moléculaires, formant une structure de pic dédoublé comme le montre la figure 5.4-a. On appelle cette structure **le doublet Autler-Townes** en référence à la première description dans [AUTLER and TOWNES, 1955]. L'équation (5.1) donnant l'ajustement des spectres permet de calculer l'écart entre les deux pics du doublet¹ :

$$\sqrt{-\gamma_2^2 + 2\sqrt{2\Omega^2(2\Omega^2 + \gamma_1\gamma_2 + \gamma_2^2 + \Gamma\gamma_2)}}.$$

Si la puissance du second laser est suffisante, c'est à dire si sa fréquence de Rabi Ω est plus grand que la largeur γ_2 de l'état $v = 14$, l'écart du doublet est approximativement de 2Ω .

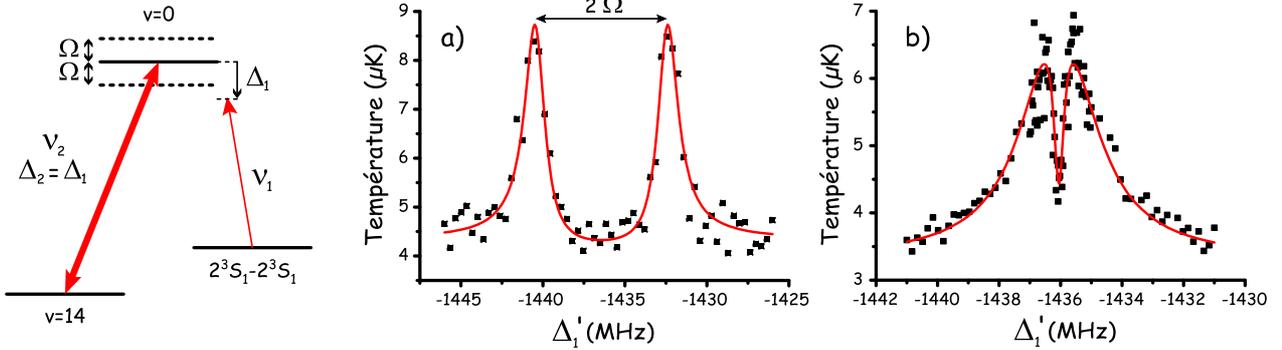


FIGURE 5.4 – Spectroscopie à deux photons lorsque le laser L_1 est balayé et le laser L_2 est à résonance ($\Delta_2 = \Delta_1$).

a - Aux fortes intensités du laser L_2 ($\Omega \gtrsim \gamma_1$, où Ω est la fréquence de Rabi du laser L_2), les niveaux $v = 0$ et $v = 14$ sont habillés, on observe donc deux pics bien distincts, caractéristiques du doublet Autler-Townes.

($P_1 = 10 \mu\text{W}$, $P_2 = 500 \mu\text{W}$, $\tau_{\text{PA}} = 500 \mu\text{s}$)

b - Aux faibles intensités du laser L_2 ($\Omega \lesssim \gamma_1$), il n'y a plus de séparation nette des deux pics, mais une suppression de la photoassociation visible par un creux étroit typique du phénomène de résonance noire ainsi mis en évidence.

($P_1 = P_2 = 10 \mu\text{W}$, $\tau_{\text{PA}} = 1 \text{ms}$)

Si on utilise de faibles intensités du laser L_2 ($\Omega \lesssim \gamma_1$), on n'observe plus de doublet nettement séparé. Mais on va mettre en évidence le phénomène de cohérence atomes-molécules, qui n'apparaissait pas avant, car dissimulé par l'écart entre les deux pics formés. On a une résonance noire lorsque la condition Raman est satisfaite, c'est à dire lorsque $\Delta_2 = E_\infty$. Il faut noter que le terme de résonance noire n'est pas approprié dans notre expérience car on ne peut pas obtenir une inhibition complète du signal de photoassociation à cause de la durée de vie finie de l'état $v = 14$.

5.3.3 L'effet Raman stimulé

Si le laser L_2 est loin de résonance par rapport la transition lié-lié $v = 0 \rightarrow v = 14$ ($\Delta_2 \neq \Delta_1$), on observe une dissymétrie du précédent doublet (figure 5.5-a) : lorsque l'on balaye le laser L_1 , on voit pour $\Delta_1 \approx E_\infty$ un premier pic proche de la fréquence de transition libre-lié $2^3S_1 + 2^3S_1 \rightarrow v = 0$ qui

¹Il faut préciser que cette équation n'est valable que si les deux pics du doublet est visible, c'est-à-dire que l'intensité du laser L_2 (et donc Ω) ne soit pas trop petite pour que le terme sous la racine carré soit positif.

présente les mêmes caractéristiques que la raie habituellement observée lors de la photoassociation à un photon ; le deuxième pic, obtenu quand $\Delta_2 \approx E_\infty$, est fortement dissymétrique comme le montre la figure 5.5-b avec un profil de Fano ([FANO, 1961] et [LOUNIS and COHEN-TANNOUJDI, 1992]) et est associé au **processus Raman stimulé** entre $v = 0$ et $v = 14$.

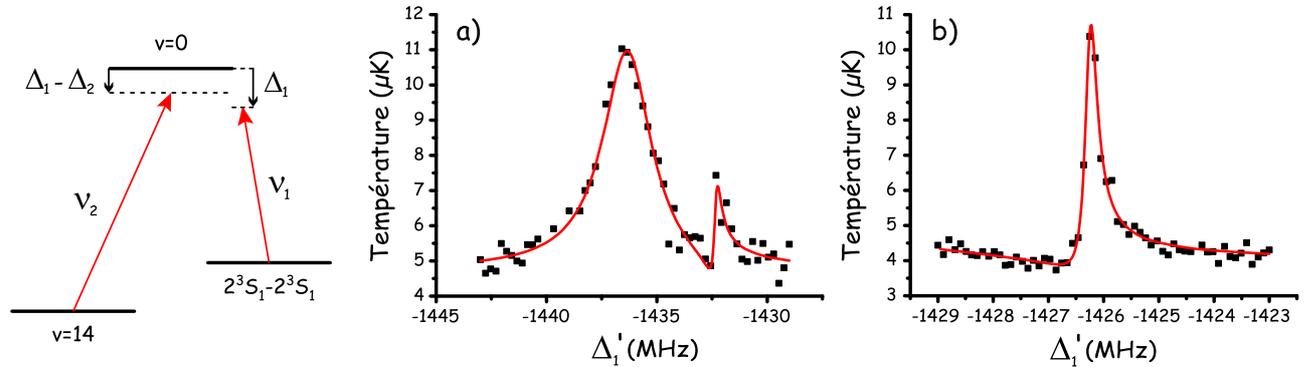


FIGURE 5.5 – Spectroscopie à deux photons lorsque le laser L_1 est balayé et le laser L_2 est hors résonance ($\Delta_2 \neq \Delta_1$). **a** - Lorsque $\Delta_1 = E_\infty$ on obtient la raie à un photon, et lorsque $\Delta_2 \approx E_\infty$ apparaît le pic Raman stimulé avec une forte assymétrie.

($P_1 = 10 \mu\text{W}$, $P_2 = 20 \mu\text{W}$, $\tau_{\text{PA}} = 500 \mu\text{s}$, $\Delta_1 - E_\infty + (\nu_1 - \nu_2) = -95.4 \text{ MHz}$)

b - Agrandissement du pic Raman pour $\Delta_1 \approx -10 \text{ MHz}$ et $\Delta_2 \approx E_\infty$. Son assymétrie est due à la présence de la résonance noire dans le rouge du pic Raman, juste à son pied.

($P_1 = 200 \mu\text{W}$, $P_2 = 50 \mu\text{W}$, $\tau_{\text{PA}} = 200 \mu\text{s}$, $\Delta_1 - \Delta_2 = -10 \text{ MHz}$)

La résonance noire est toujours présente lorsque la condition Raman $\Delta_2 = E_\infty$ est respectée. Elle apparaît au pied du pic Raman du côté le plus raide, mais elle est nettement moins visible sur le signal du processus Raman stimulé que dans le cas du doublet Autler-Townes où l'on voyait clairement la suppression de la photoassociation.

5.3.3.1 La passage du doublet Autler-Townes à l'effet Raman stimulé

Il est important de noter que l'on passe continument du doublet Autler-Townes à l'effet Raman stimulé comme on le voit sur la figure 5.6. En faisant varier la fréquence ν_2 du laser L_2 par pas de 1 MHz, on obtient différents spectres tels que ceux des figures 5.6-a, -b, -c représentant respectivement, un profil Raman dans le rouge de $v = 0$, un doublet Autler-Townes (à peu de choses près, L_2 n'étant pas exactement à résonance) et un profil Raman dans le bleu de $v = 0$. Les positions des deux pics en fonction de ν_2 sont reportées sur la figure 5.6-d et forment deux branches d'hyperbole ayant pour asymptotes les droites en traits tiretés. Ces droites représentent les énergies (à h près, en prenant E_∞ pour origine des énergies) des états non couplés $v = 0$ (asymptote horizontale) et $v = 14$ habillé du second photon (asymptote diagonale de pente 1). L'écart entre les deux raies est représenté sur la figure 5.6-e et décrit aussi une branche d'hyperbole d'après l'équation suivante, qui donne l'écart Δ entre les raies quels que soient les désaccords des deux lasers :

$$h\Delta = h\sqrt{4\pi^2(\Delta_1 - \Delta_2)^2 + 4\Omega^2}. \quad (5.2)$$

L'écart minimum entre les deux branches de l'hyperbole est donc obtenu dans le cas du doublet d'Autler-Townes quand $E_{v=0} = E_{v=14} + h\nu_2$ et vaut alors deux fois la pulsation de Rabi Ω du laser L_2 .

Pour plus de détails sur l'interprétation physique de ces figures en terme d'atomes habillés, on peut se référer à ([COHEN-TANNOUJDI *et al.*, 1996], chap. 6).

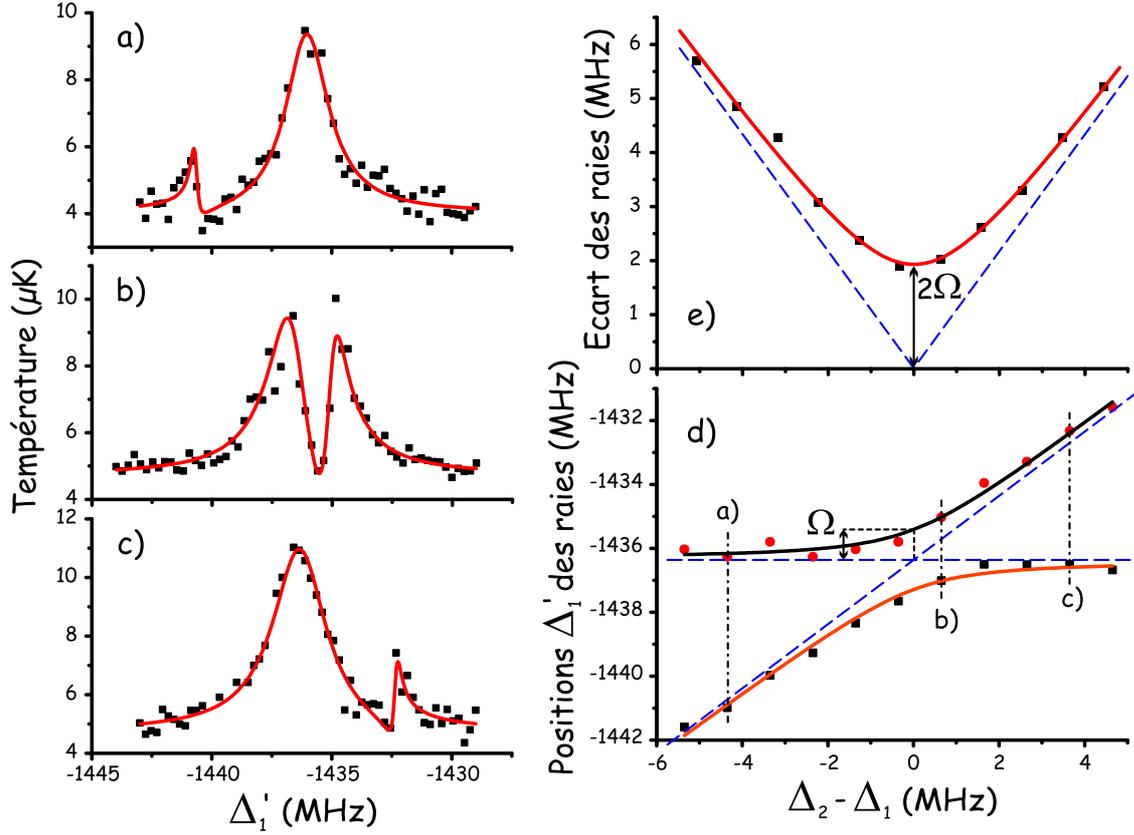


FIGURE 5.6 – Spectroscopies à et hors résonance.

($P_1 = 10 \mu\text{W}$, $P_2 = 20 \mu\text{W}$, $\tau_{\text{PA}} = 500 \mu\text{s}$)

a - Profil Raman dans le rouge de $v = 0$ ($\Delta_2 > \Delta_1$) pour $\Delta_1 - \Delta_2 = +4.35 \text{ MHz}$.

b - Doublet Autler-Townes lorsque le laser L_2 est à résonance ($\Delta_2 = \Delta_1$) pour $\Delta_1 - \Delta_2 = -0.65 \text{ MHz}$

c - Profil Raman dans le bleu de $v = 0$ ($\Delta_2 < \Delta_1$) pour $\Delta_1 - \Delta_2 = -3.65 \text{ MHz}$.

d - Variation avec la fréquence ν_2 du laser L_2 (ou avec $\Delta_1 - \Delta_2$ car $h(\nu_2 + \Delta_1 - \Delta_2) = E_{v=0} - E_{v=14}$ est constant) de la position des deux raies repérées par leur désaccord Δ'_1 . Les droites en traits tiretés représentent les états non couplés $v = 0$ et $v = 14$ plus un photon d'énergie $h\nu_2$. Les positions des deux raies ($v = 0$ et $v = 14$) des différentes figures-a, -b, et -c sont repérées sur les deux hyperboles par les pointillés verticaux.

e - Variation avec la fréquence ν_2 du laser L_2 de l'écart entre les deux raies qui forme une branche d'hyperbole. Les droites en traits tiretés en sont les asymptotes de pentes -1 et 1.

5.3.3.2 Définition du désaccord Raman

Le désaccord Raman est défini comme étant $\Delta_1 - \Delta_2$ (voir le schéma de la figure 5.5). Le pic Raman est donc dans le rouge de la raie correspondant à l'état $v = 0$ quand ce désaccord est positif (figure 5.6) et est dans le bleu dans le cas contraire, comme on l'a déjà vu dans la partie 5.3.3 qui présente les différents signaux observés. Ce désaccord est l'écart entre la raie correspondant au niveau lié $v = 0$ et la résonance noire qui est au pied du pic Raman. Mais sa mesure exacte n'est pas si facile expérimentalement, pour deux raisons :

- d'une part, la résonance noire est peu visible dans le cas de l'émission Raman stimulé. Il faut rappeler que la résonance noire est une inhibition de la photoassociation, qui apparaît dans toutes les configurations (Autler-Townes, Raman stimulé et photoassociation frustrée) quand la condition de résonance entre les deux lasers de PA est remplie ($\Delta_2 = E_\infty$). Dans la configuration Autler-Townes à très faible intensité (figure 5.4-b), elle est très visible car elle est située à un maximum de la photoassociation. Mais pour une configuration Raman, elle est située au pied d'un pic, où il y a un effet réduit de la photoassociation. Elle se détache donc très difficilement du fond du

spectre. Il est donc plus facile de mesurer le désaccord Raman comme la distance entre les deux pics du spectre (le pic principal associé à $v = 0$ et le pic Raman, voir figure 5.5-a). L'erreur faite de cette manière est inférieure à 1 MHz.

- d'autre part, il faut souligner que, pour que le pic Raman ait une amplitude suffisante pour se détacher du bruit de fond, il faut mettre des intensités relativement élevées. Plus le désaccord Raman voulu est élevé, plus il faut augmenter la puissance. Or de fortes intensités produisent des déplacements lumineux de la raie $v = 0$ de plusieurs MHz dans le rouge (les plus importants déplacements observés sont de plus de 25 MHz). La raie Raman se déplace aussi dans le rouge lorsqu'elle est dans le rouge de la raie $v = 0$ (dans le bleu dans l'autre cas), mais de quelques MHz seulement (voir l'annexe C). La figure 5.7 illustre les conséquences de ces déplacements lorsque l'on observe un pic Raman dans le rouge de $v = 0$: pour un désaccord appliqué de $\Delta_1 - \Delta_2 = +20$ MHz, on obtient la figure 5.7-a, pour un désaccord de +30 MHz, la figure 5.7-b. Comme il faut 4 fois plus de puissance pour avoir +30 MHz de désaccord Raman que pour en avoir +20 MHz, la raie $v = 0$ s'est déplacée dans le rouge de plus de 20 MHz (figure 5.7-b) car on peut voir l'aile de la raie $v = 0$ à quelques MHz du pic Raman. Le désaccord réel est donc inférieur à +30 MHz. Ainsi, tout les pic Raman observés dans le rouge de $v = 0$ auront un désaccord inférieur à celui appliqué à cause du déplacement lumineux de $v = 0$ dans le rouge, et il est impossible d'obtenir un désaccord Raman de plusieurs dizaines de MHz. Si on observe un pic Raman dans le bleu de la raie $v = 0$, le désaccord Raman réel sera au contraire plus important, la raie $v = 0$ s'éloignant du pic Raman sous l'effet de fortes intensités.

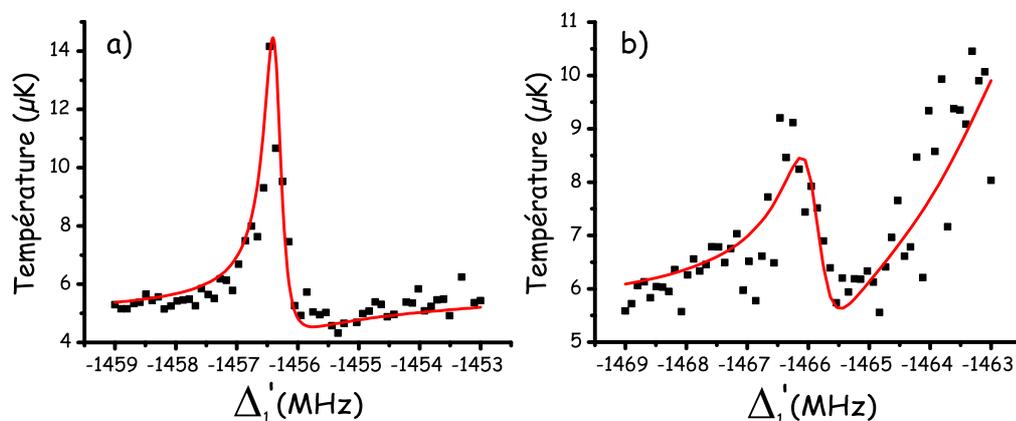


FIGURE 5.7 – Deux pics Raman dans le rouge de la raie moléculaire $v = 0$.

a - Pic Raman à un désaccord de +20 MHz. La raie est bien définie, et sa symétrie est inversée comparée à un pic Raman dans le bleu de $v = 0$.

($P_1 = 1$ mW, $P_2 = 100$ μ W, $\tau_{PA} = 100$ μ s, $\Delta_1 - \Delta_2 = +20$ MHz)

b - Pic Raman à un désaccord de +30 MHz. Ici, on peut voir clairement l'apparition de la raie $v = 0$ dans le bleu du pic Raman. Le désaccord réel est donc bien moindre que les +30 MHz attendus, à cause des intensités utilisées qui déplacent la raie $v = 0$ dans le rouge. On peut penser que la raie $v = 0$ puisse rattraper, voire dépasser le pic Raman si l'on met suffisamment de puissance laser, mais nous n'avons jamais tenté l'expérience.

($P_1 = 4$ mW, $P_2 = 50$ μ W, $\tau_{PA} = 5$ μ s, $\Delta_1 - \Delta_2 = +30$ MHz)

Dans toute la suite nous nous sommes donc limités à l'étude des pics Raman dans le bleu de $v = 0$, où les désaccords réels (qui tiennent compte des déplacements lumineux) sont supérieurs aux désaccords appliqués².

²Lorsqu'il est indiqué, dans les légendes des figures, un certain désaccord, c'est le désaccord appliqué, et non le désaccord réel. On est donc certain d'avoir au moins le désaccord indiqué. Ceci n'a aucune incidence dans la suite, car la formule

5.3.4 La photoassociation frustrée

Le troisième type de signal est la **photoassociation frustrée** qui est basée sur le même principe que les deux précédents signaux, sauf que les rôles des lasers L_1 et L_2 sont inversés : le laser L_2 sert de sonde, et le laser L_1 est fixe. On a donc deux cas possibles. Le premier où le laser L_1 est à résonance avec la transition libre-lié $2^3S_1 + 2^3S_1 \rightarrow v = 0$ ($\Delta_1 \approx E_\infty$, voir le premier schéma de principe de la figure 5.8), causant des pertes dans le nuage d'atomes. Le laser L_2 est balayé et, lorsqu'il est à résonance avec la transition lié-lié $v = 0 \rightarrow v = 14$, on observe une diminution des pertes comme le montre la figure 5.8-a sur le signal de température et la figure 5.8-b sur le signal de densité optique. La résonance noire se produit au moment de l'inhibition des pertes. On est dans une configuration similaire au doublet Autler-Townes. C'est de cette manière que la longueur de diffusion du Lithium a été mesurée [ABRAHAM *et al.*, 1995].

Le deuxième cas apparaît quand le premier photon est hors résonance ($\Delta_1 \neq E_\infty$, voir le deuxième schéma de principe de la figure 5.8). On est donc dans une configuration similaire au processus de Raman stimulé, avec un rôle inversé des lasers. On obtient les signaux de la figure 5.8-c pour la température et figure 5.8-d pour la densité optique.

5.3.5 Choix de la méthode choisie pour détecter le niveau $v = 14$

La photoassociation frustrée présente des désavantages si l'on cherche la position de l'état $v = 14$ sans connaître auparavant pour quelle fréquence et pour quelles intensités des deux lasers elle apparaîtra. On peut recenser plusieurs difficultés :

- On peut voir (notamment sur la figure 5.4-b) que le signal à un photon est plus bruité à son sommet que sur ses ailes. Or la PA frustrée utilise le laser L_1 à résonance, ce qui oblige à avoir un signal de résonance noire très net qui puisse se détacher du bruit produit par le laser L_1 .
- Si l'intensité du deuxième photon est trop grande, la raie $v = 0$ peut se dédoubler en deux pics écartés de plus de 20 MHz, ce qui fait que l'on verra une déplétion très large au lieu d'un creux étroit bien défini. De plus, bien que le deuxième laser soit hors de résonance avec la transition libre-lié $2^3S_1 + 2^3S_1 \rightarrow v = 0$, il engendre des pertes dans le nuage par formation de molécules dans l'état $v = 0$ qui s'ajouteront au signal en dissimulant la déplétion.
- Il est en général plus difficile de travailler "en négatif" avec un nuage détruit par photoassociation, car il est expérimentalement possible d'avoir des fluctuations du flux d'atomes qui ne seront alors pas visibles ou des instabilités de la fréquence de battement du laser de PA qui ne seront pas décelables.

Ces divers désavantages sont d'autant plus criants que nous avons employé cette méthode pendant un an pour essayer de détecter, en vain, un quelconque signal, en pensant à tort que l'effet Raman stimulé serait plus difficilement détectable.

Il est donc plus simple d'utiliser la raie à un photon obtenue avec le balayage du laser L_1 et d'ajouter le laser L_2 avec une fréquence ν_2 donnée et avec la plus grande intensité possible (c'est à dire une intensité qui ne produit pas plus de pertes non résonantes avec la transition libre-lié $2^3S_1 + 2^3S_1 \rightarrow v = 0$ que n'en fait le laser L_1 , afin que la raie à un photon soit toujours visible). Il suffit alors, pour différentes valeurs de ν_2 , de regarder l'évolution du spectre de $v = 0$, jusqu'à ce qu'apparaisse un dédoublement.

d'ajustement qui tient compte de ce désaccord n'est utilisée pour les pics Raman que pour ajuster les spectres (afin de guider l'oeil) et non pour en déduire des informations quantitatives où il serait nécessaire de connaître le désaccord Raman exact.

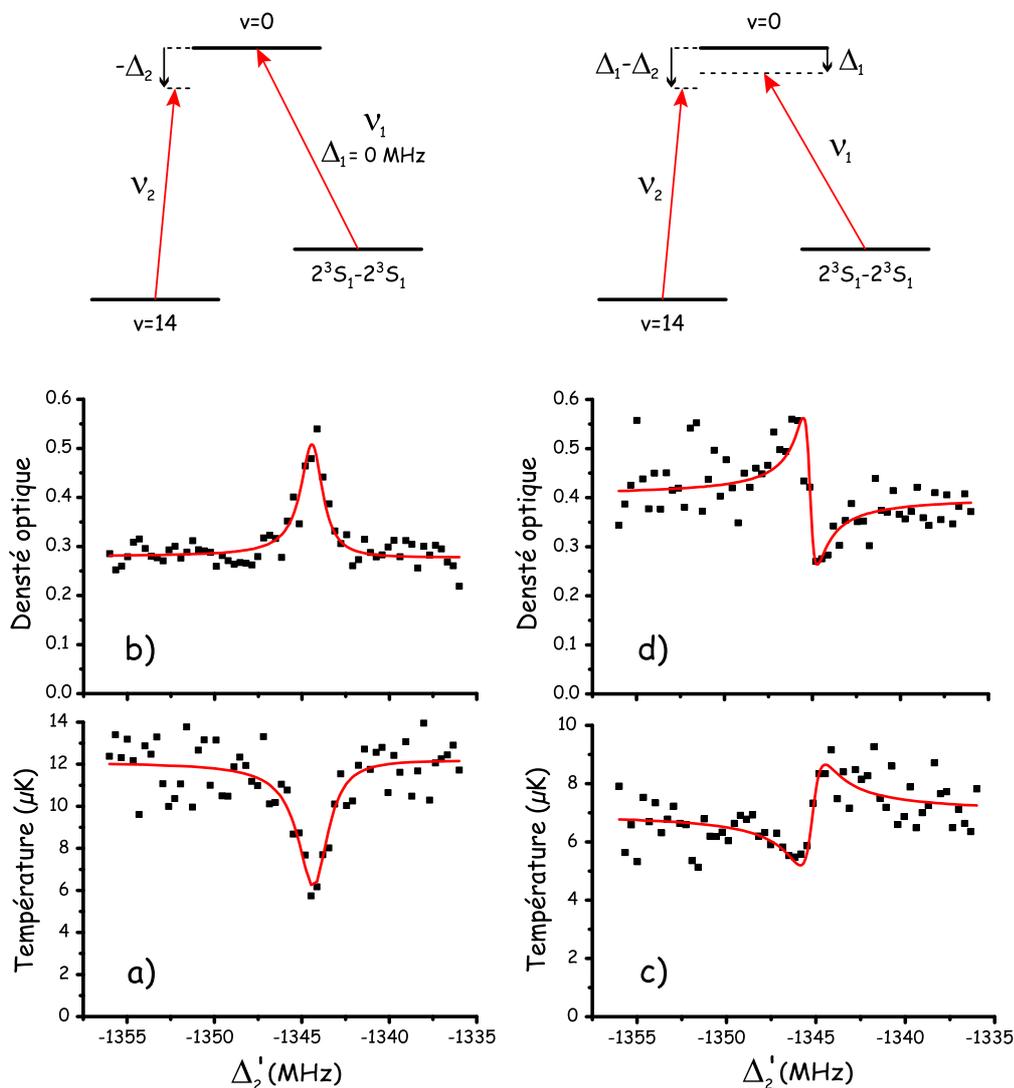


FIGURE 5.8 – Signaux de photoassociation frustrée dans différentes conditions expérimentales.

a & b - Spectroscopie à deux photons lorsque le laser L_1 est à résonance ($\Delta_1 \approx E_\infty$) et le laser L_2 est balayé (première colonne). C'est donc une configuration Autler-Townes avec une inversion des rôles des lasers.

($P_1 = 10 \mu\text{W}$, $P_2 = 20 \mu\text{W}$, $\tau_{\text{PA}} = 500 \mu\text{s}$, $\Delta_1 - \Delta_2 = 0 \text{ MHz}$)

a - Le laser L_1 est à résonance avec $v = 0$ et crée donc des pertes dans le nuage par photoassociation. Lorsque le laser L_2 est suffisamment intense, le niveau moléculaire $v = 0$ est habillé et se sépare en deux niveaux. Le laser L_1 sort donc de résonance et on observe une diminution des pertes. Il s'agit de photoassociation frustrée.

b - Même chose que la figure précédente mais sur le signal de densité optique au lieu du signal de température. La diminution des pertes dans le nuage d'atomes augmente la densité optique lorsque $\Delta_2 = E_\infty$.

c & d - Spectroscopie à deux photons lorsque le laser L_1 est hors résonance ($\Delta_1 \neq E_\infty$) et le laser L_2 est balayé. C'est donc une configuration Raman stimulé avec une inversion des rôles des lasers.

($P_1 = 10 \mu\text{W}$, $P_2 = 30 \mu\text{W}$, $\tau_{\text{PA}} = 500 \mu\text{s}$, $\Delta_1 - E_\infty = -1.2 \text{ MHz}$)

c - Cette figure est plus délicate à interpréter car peu intuitive. Les pertes ne sont pas maximales puisque le laser L_1 n'est pas à résonance. Il y a donc une augmentation des pertes (le sommet du signal) quand le laser L_2 est à résonance avec $v = 0$ ($\Delta_2 = E_\infty$), et le creux indique une diminution des pertes ($\Delta_2 \approx \Delta_1$).

d - Même chose que la figure précédente mais sur le signal de densité optique au lieu du signal de température.

Cette méthode est la plus simple et la plus rapide, et permet de ne faire varier qu'un seul paramètre, la fréquence ν_2 . C'est de cette manière que nous avons découvert la position de l'état lié $v = 14$.

5.4 Origine et interprétation des signaux

Par imagerie d'absorption, on obtient des informations sur la taille du nuage atomique (et donc sa température), sur sa densité optique et sur son nombre d'atomes. On a alors trois spectres possibles pour analyser les expériences de photoassociation à deux photons.

Les spectres ont deux origines : soit on observe une perte d'atomes, dans ce cas on a un signal clair sur le nombre d'atomes et donc sur la densité optique, soit on observe un chauffage, dans ce cas on a un signal clair sur la température et aussi sur la densité optique. Dans les deux cas, on aura tout de même un signal sur la densité optique à cause de la dilution du nuage par chauffage ou par pertes d'atomes. Le but de cette partie est le suivant : afin d'obtenir un ajustement des spectres dont on peut déduire les paramètres (tels que γ_2 pour estimer la durée de vie de molécules dans l'état $v = 14$, et Ω pour calibrer l'intensité du second laser), on cherche à obtenir les signaux le moins bruités. Il faut donc trouver les conditions expérimentales (les intensités des deux lasers, les temps de thermalisation et de PA) qui puisse optimiser nos signaux, sachant que ces conditions ne sont pas les mêmes pour le signal sur la température et le nombre d'atomes. Dans cette partie, on explique comment optimiser les deux types de signaux (température et nombre d'atomes) dans le cas de l'observation de résonance noire ou du profil Raman.

5.4.1 Optimisation du signal sur la température

Pour avoir les meilleurs spectres de PA avec la température du nuage, on a vu qu'il faut ajouter une étape entre celle de photoassociation et d'expansion balistique : on laisse le nuage dans le piège magnétique pour qu'il thermalise pendant un temps de $\tau_{\text{therm}} = 400$ ms avant de couper le piège, ce qui permet d'utiliser des puissances faibles et des temps de PA courts. Ceci a deux avantages :

- On minimise ainsi l'influence des conditions expérimentales qui peuvent produire des élargissements sur les spectres et perturber leur ajustement.
- On a ainsi un signal de température qui se détache nettement du bruit d'autant plus qu'il a peu de pertes d'atomes. En effet, moins il y a de pertes, plus la densité est élevée, plus on peut augmenter le chauffage et donc l'amplitude du signal de température.

On obtient alors les figures 5.9-a, -b, -c. On peut voir que l'on a un signal sur la température bien défini (figure 5.9-a), alors que celui sur la densité optique est trop bruité (figure 5.9-b) pour pouvoir extraire une position ou une largeur. L'ajustement (courbe en rouge) de la densité optique est le même que celui sur la température, à une amplitude et un décalage en ordonnée près. Quant au nombre d'atomes (figure 5.9-c), aucune diminution n'est visible. Il est donc très facile d'optimiser uniquement le signal de température, sans avoir de pertes d'atomes notable.

Un pic Raman est représenté sur les figures 5.9-d, -e, -f afin de montrer que le signal sur la température est le moins bruité des trois. Les intensités utilisées sont plus élevées que sur les figures 5.9-a, -b, -c, car les lasers sont désaccordés de $\Delta_1 - \Delta_2 = -10$ MHz. Elles produisent alors des pertes (figures 5.9-f) contrairement à la figure 5.9-c, mais en faible nombre. On a voulu augmenter ces pertes d'atomes comme nous le faisons dans la partie suivante, mais il nous a été impossible d'obtenir un signal de grande amplitude avec peu de bruit. On peut l'expliquer de la manière suivante : l'amplitude du signal de pertes dans le cas du doublet Autler-Townes est donnée par les pertes produites avec la photoassociation dans

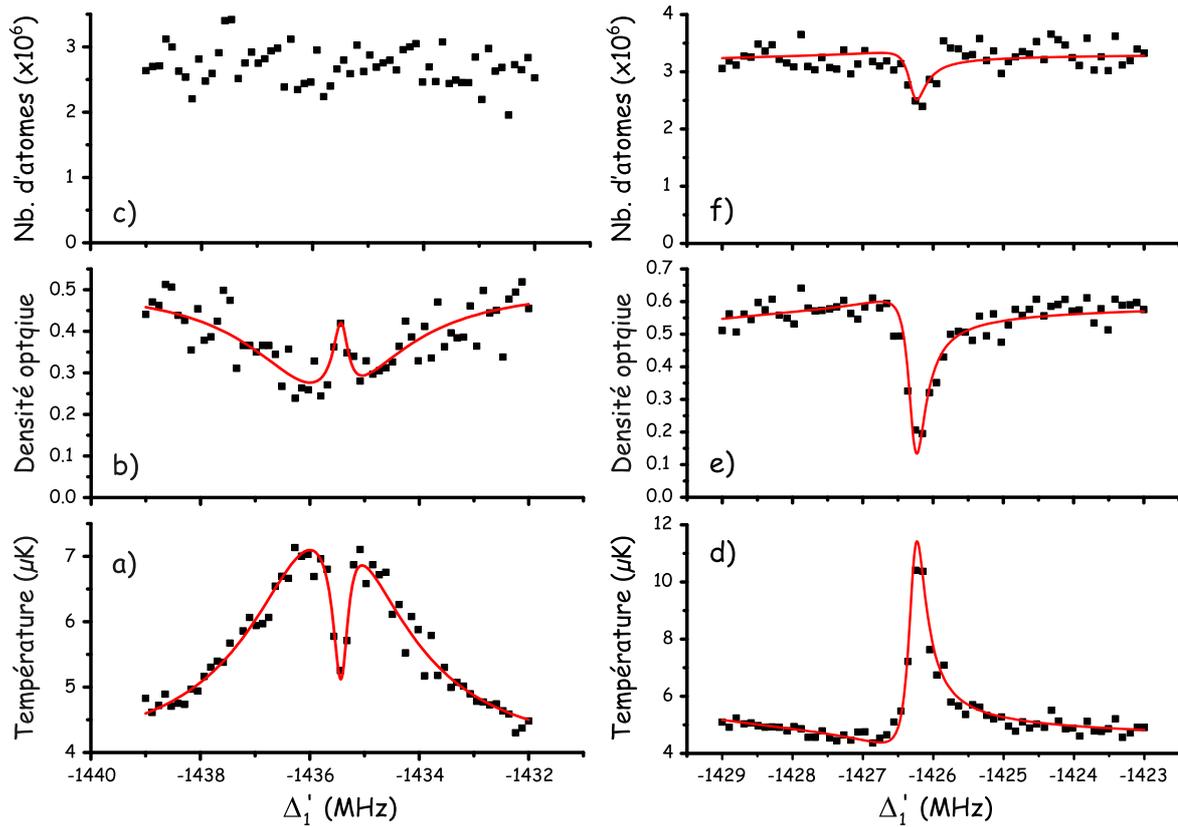


FIGURE 5.9 – Signaux de résonance noire et d’effet Raman obtenus avec les trois types de signaux (sur la température, la densité optique et le nombre d’atomes) obtenus par l’analyse des images d’absorption.

a - Signal de résonance noire mesuré sur la température du nuage avec une étape supplémentaire de thermalisation afin d’optimiser le chauffage. L’ajustement est le même que pour -b et -c, à une amplitude et un offset près.

b - Idem sur la densité optique.

c - Idem sur le nombre d’atomes.

($P_1 = 10 \mu\text{W}$, $P_2 = 3 \mu\text{W}$, $\tau_{\text{PA}} = 500 \mu\text{s}$, $\tau_{\text{therm}} = 400 \text{ms}$)

d - Signal Raman mesuré sur la température du nuage pour un désaccord Raman de $\Delta_1 - \Delta_2 = -10 \text{MHz}$. Une étape de thermalisation a été rajoutée pour optimiser le chauffage.

e - Idem sur la densité optique.

f - Idem sur le nombre d’atomes sans ajustement.

($P_1 = 200 \mu\text{W}$, $P_2 = 50 \mu\text{W}$, $\tau_{\text{PA}} = 100 \mu\text{s}$, $\tau_{\text{therm}} = 400 \text{ms}$, $\Delta_1 - \Delta_2 = -10 \text{MHz}$)

l’état moléculaire $v = 0$, mais celles du signal Raman sont dues à $v = 14$. Il apparaît alors que les molécules dans l’état $v = 14$ sont peu nombreuses, d’où le peu de pertes, mais libèrent beaucoup plus d’énergie quand elles se dés excitent que les molécules dans $v = 0$, d’où un chauffage plus efficace.

Comme le signal de température est le seul que l’on peut obtenir avec peu de bruit et une grande amplitude dans le cas du pic Raman, tous nos spectres Raman seront présentés avec le signal de température du nuage atomique.

5.4.2 Optimisation du signal sur le nombre d’atomes

Les pertes d’atomes ont deux origines :

- Elles peuvent venir de la formation de molécules qui, lorsqu’elles se dés excitent, donnent deux atomes qui peuvent sortir du piège.
- Elles peuvent venir du chauffage créé par des atomes suffisamment énergétiques (produits de dés excitations de molécules) qui expulsent des atomes piégés lors de collisions.

Le signal sur le nombre d'atomes permet d'estimer le nombre de molécules formées. Mais pour cela, il ne faut pas compter les pertes dues au chauffage que l'on cherche donc à minimiser. On a donc cherché à augmenter les pertes produites par photoassociation et à diminuer le chauffage. Pour cela, il suffit d'utiliser de fortes intensités et/ou de longs temps de PA et de prendre un temps de thermalisation $\tau_{\text{therm}} = 0$ ms pour minimiser le chauffage. En pratique, si on veut des signaux moins bruités sur le nombre d'atomes, il est préférable de choisir des temps de PA longs ($\tau_{\text{PA}} = 10$ ms pour les figures 5.10-a, -b, -c) avec des puissances usuelles. C'est le cas de la figure 5.10-c, où on a ainsi un excellent signal, et tout particulièrement sur la densité optique (figure 5.10-b). Mais un chauffage est tout de même présent (figure 5.10-a). Il est en effet impossible de le supprimer, car, comme expliqué dans la partie 1.3.2, on ne coupe pas le piège magnétique brusquement, et c'est pendant les 200 ms d'ouverture lente du piège que s'effectue une thermalisation du nuage. Cette thermalisation n'est pas complète mais suffit à avoir un signal visible sur la température. Il faudrait, pour le réduire au maximum, couper brusquement le piège, ce qui créerait des courants de Foucault, perturbant notre nuage et la détection d'absorption, et augmenterait le bruit de nos signaux.

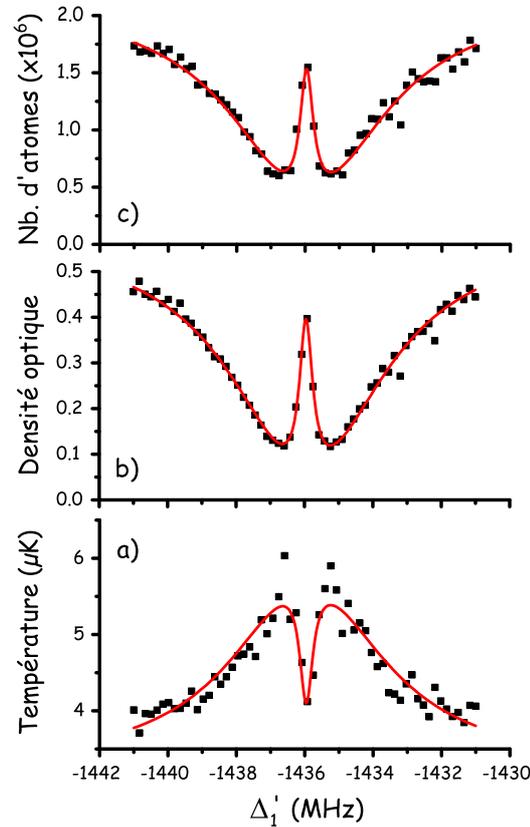


FIGURE 5.10 – Signaux de résonance noire obtenus avec les trois types de signaux (sur la température, la densité optique et le nombre d'atomes) obtenus par l'analyse des images d'absorption.

a - Signal de résonance noire mesuré sur la température du nuage sans étape de thermalisation afin d'optimiser les signaux sur la densité optique et le nombre d'atomes. L'ajustement est le même que pour -b et -c, à l'amplitude et l'offset près.

b - Idem sur la densité optique.

c - Idem sur le nombre d'atomes.

($P_1 = P_2 = 10 \mu\text{W}$, $\tau_{\text{PA}} = 10$ ms, $\tau_{\text{therm}} = 0$ ms)

Il est important de noter que la position de la résonance noire sur les trois spectres est identique ainsi que sa largeur, comme le montre l'utilisation de l'ajustement avec des paramètres égaux pour les trois figures 5.10-a, -b, -c. Ceci est déterminant pour la mesure de l'énergie de liaison $E_{v=14}$, puisqu'elle

dépend de la position de la résonance noire. Ainsi, quel que soit le signal utilisé, on a le même résultat.

Comme nous avons eu un très bon signal sur la densité optique, nous avons voulu l'utiliser afin de chercher l'intensité critique I_2^c du laser L_2 en-dessous de laquelle la résonance noire n'est plus visible à cause du bruit de nos spectres. On obtient alors les figures 5.11-a, -b, -c pour des conditions expérimentales usuelles. Le signal sur la température (figure 5.11-a) ne permet que difficilement de voir la présence de la résonance noire noyée dans le bruit au sommet de la raie. Une mesure de sa position ou de sa largeur n'est donc pas possible. Par contre, le signal de densité optique (figure 5.11-b) est peu bruité (le bruit ne représente que 5 % de l'amplitude contre 30 % pour la température) et la résonance noire est très claire comme le montre l'agrandissement de la figure 5.11-b. Pour de faibles intensités du laser L_2 , l'effet de thermalisation n'est plus suffisant pour avoir un meilleur signal sur la température, car la thermalisation augmente le bruit, mais ne le diminue pas. La densité optique est donc à privilégier dans ce cas à cause de son faible bruit. Quant au signal sur le nombre d'atomes 5.11-c, la résonance noire n'est pas du tout visible, le seul moyen de la faire ressortir du bruit étant d'augmenter les pertes d'atomes, c'est à dire en utilisant, pour les mêmes intensités, un temps de photoassociation τ_{PA} plus long et un temps de thermalisation τ_{therm} nul. L'intensité utilisée ($P_2 = 0.3 \mu W$) pour les figures 5.11-a, -b, -c correspond à $4 \times 10^{-4} W/cm^2$ soit $2.4 \times I_{sat}$ ³. Pour $P_2 < 0.3 \mu W$, la résonance n'apparaît plus à cause du bruit. Il faut préciser que la recherche de cette intensité I_2^c est délicate à cause de la difficile reproductibilité des signaux qui demande une expérience optimisée au mieux afin de réduire le bruit (la figure 5.10-b, et 5.11-b sont parmi les moins bruitées obtenues sur plusieurs mois).

Comme il nous a été impossible d'avoir des signaux sur la densité optique et le nombre d'atomes sans avoir d'effet de chauffage par la photoassociation, ce qui aurait permis une interprétation uniquement en terme de nombre de molécules formées, nous n'avons pas poursuivi dans cette voie avec le piège magnétique actuel.

5.4.3 Conclusion sur l'optimisation des différents signaux

Finalement, les trois signaux nous donnent les mêmes caractéristiques (largeur et position) des résonances noires et des pics Raman. Mais on a choisi de se servir seulement des signaux de température. En effet, si on utilise de fortes intensités ou de longs temps de PA pour optimiser le signal sur le nombre d'atomes, le nuage se dilue progressivement pendant τ_{PA} , et la photoassociation est de moins en moins efficace lorsque le laser de PA est à résonance avec $v = 0$. Tandis que si le laser de PA est proche mais pas à résonance (de 1.5 MHz par exemple), le nuage se dilue peu et la photoassociation est constante pendant toute la durée τ_{PA} . On a ainsi une amplitude du signal de PA qui sature à résonance, mais pas sur les ailes de la raie, ce qui élargit le spectre. C'est ce qui a été observé par [MCKENZIE *et al.*, 2002]. Le spectre est déformé à cause d'une photoassociation trop forte et les ajustements, dont on extrait γ_2 , sont faussés. Si au contraire on optimise la température, le nombre d'atomes est constant et le nuage ne se dilue pas car l'augmentation de température se produit pendant la thermalisation et non pendant la photoassociation. On ne déforme donc pas les raies si on optimise le signal température. C'est pour cette raison que tous les spectres présentés dans cette thèse sont exploités avec le signal de température.

5.4.4 Interprétation des signaux

L'interprétation des signaux de température n'est pas évidente car le chauffage peut avoir deux sources possibles : la dissociation (par désexcitation ou non) des molécules de l'état $v = 0$ ou de l'état $v = 14$. En utilisant la théorie de Bohn et Julienne, nous avons calculé séparément les deux éléments

³ $I_{sat} = 0.17 mW/cm^2$ d'après [METCALF and VAN DER STRATEN, 1999]

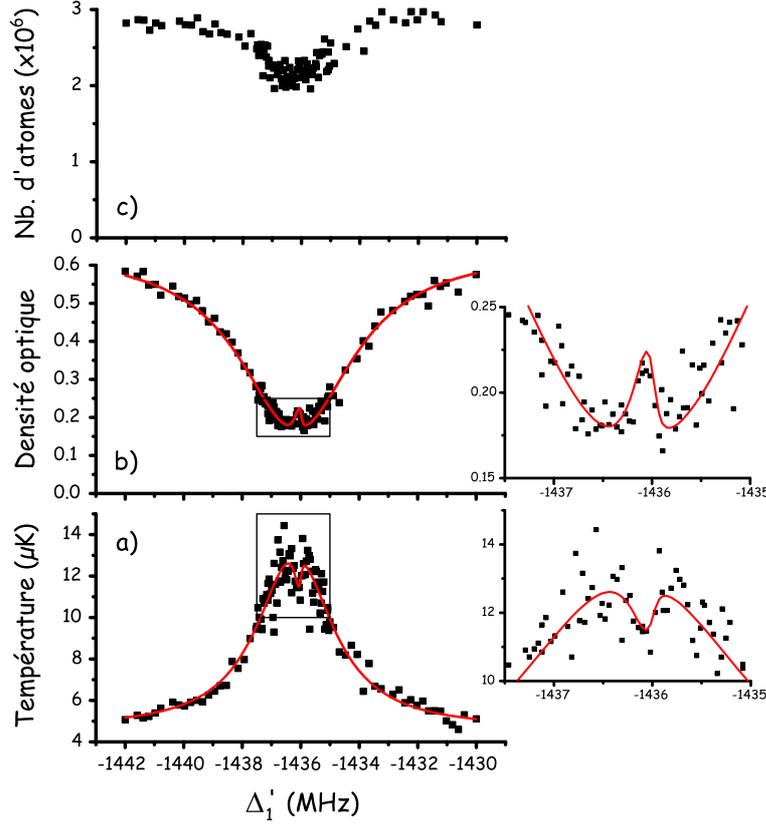


FIGURE 5.11 – Signaux de résonance noire obtenus avec les trois types de signaux (sur la température, la densité optique et le nombre d’atomes) obtenus par l’analyse des images d’absorption.

a - Signal de résonance noire mesuré sur la température du nuage avec la plus petite intensité I_2 possible pour le laser L_2 avec les paramètres expérimentaux habituels. L’ajustement (tracé pour $\gamma_2 = 0.1$ MHz) n’est pas celui de l’équation (5.1) mais tient compte d’un effet de moyennage sur l’énergie des atomes dans le nuage (voir l’équation (7.2) et la partie 7.1.2). L’encart à droite est un agrandissement de la résonance noire.

b - Idem sur la densité optique avec un agrandissement.

c - Idem sur le nombre d’atomes sans ajustement.

($P_1 = 10 \mu\text{W}$, $P_2 = 0.3 \mu\text{W}$, $\tau_{\text{PA}} = 1$ ms, $\tau_{\text{therm}} = 400$ ms)

$S_{0,v=14}$ et $S_{0,v=0}$ de la matrice S . On trouve que $S_{0,v=0}$ est plus petit que $S_{0,v=14}$ pour les paramètres expérimentaux que l’on utilise (typiquement ceux des figures 5.4 et 5.5), la plus grande valeur du rapport $S_{0,v=14}/S_{0,v=0} \approx 11$ étant donnée dans le cas des spectres par effet Raman stimulé (figure 5.5-b).

De plus, l’efficacité du chauffage provenant de $v = 14$ peut être plus importante que l’efficacité due à $v = 0$. Mais ce n’est pas le cas si on regarde la forme du signal de la figure 5.5-b. Le signal calculé à partir de $S_{0,v=14}$ est symétrique contrairement à celui de $S_{0,v=0}$ qui est typique des profils assymétriques de Fano (voir par exemple [LOUNIS and COHEN-TANNOUJJI, 1992] et ses références, ainsi que la figure 4-a de [KOELEMEIJ and LEDUC, 2004]). Expérimentalement, on observe clairement un profil assymétrique comme celui de la figure 5.5-b, ce qui montre que l’échauffement dû à $v = 0$ est dominant. En conséquence, on ajuste nos courbes expérimentales avec la seule contribution de $S_{0,v=0}$.

On peut tout de même s’inquiéter qu’il y ait un effet petit, mais non négligeable, de $S_{0,v=14}$ qui pourrait perturber nos résultats, notamment dans la détermination de γ_2 , le paramètre le plus sensible étant la largeur du pic Raman aux larges désaccords $\Delta_2 - \Delta_1$. Le pic Raman a un profil différent si on utilise $S_{0,v=14}$ ou $S_{0,v=0}$, mais sa largeur est très similaire dans l’un ou l’autre cas, ce qui permet d’omettre l’influence de $S_{0,v=14}$.

Finalement, on peut essayer de comprendre pourquoi le signal de température est si peu sensible à

la désexcitation due à $v = 14$. La désexcitation vient probablement de l'ionisation Penning. Ces ions ont une grande énergie et quittent immédiatement le piège magnétique sans chauffer le nuage. Même s'ils entrent en collision avec des atomes piégés, ils les expulsent immédiatement. C'est le phénomène contraire pour les molécules dans l'état $v = 0$ qui se désexcitent radiativement (en deux atomes ou vers un autre état lié), comme le montre [LÉONARD *et al.*, 2004] : certains des produits de désexcitation ont un état de spin et une énergie suffisamment petite pour être piégés mais assez élevée pour chauffer le nuage.

5.5 Conclusion

Dans ce chapitre, la notion de spectroscopie à deux photons appliquée à l'hélium métastable est décrite. La théorie de [BOHN and JULIENNE, 1996] et [BOHN and JULIENNE, 1999] est brièvement rappelée. Cette théorie est utilisée dans la suite de ce manuscrit et permet d'ajuster nos spectres afin d'en tirer les caractéristiques, telle que la durée de vie de l'état $v = 14$ qui est mesurée au chapitre 7. La notion de résonance noire atomes-molécules, qui permet la mesure de la longueur de diffusion au chapitre 6, est présentée avec les différents spectres obtenus expérimentalement. On distingue le doublet Autler-Townes, le profil de Fano de la raie Raman, et la photoassociation frustrée. L'optimisation de ces différents spectres en fonction des signaux sur la température, la densité optique et le nombre d'atomes est détaillée, ainsi que leur interprétation.

Chapitre 6

Mesure de la longueur de diffusion a avec la résonance noire atomes-molécules

Dans ce chapitre est donnée une mesure de la longueur de diffusion en onde s de l'hélium métastable avec la technique de la spectroscopie à deux photons à partir des spectre de résonance noire. Cette méthode permet de mesurer l'énergie de liaison $E_{v=14}$ du dernier état lié $v = 14$ du potentiel fondamental ${}^5\Sigma_g^+$ (partie 6.1) en tenant compte de l'influence des conditions expérimentales, en particulier la température du nuage. Grâce aux différents potentiels théoriques ${}^5\Sigma_g^+$, on peut relier cette énergie $E_{v=14}$ à la longueur de diffusion a (partie 6.2). Une dernière partie fait une comparaison des valeurs de a obtenues par les différentes méthodes décrites dans la partie 3.3 et la présente mesure, la plus précise de toutes. Cette mesure a fait l'objet d'une publication [MOAL *et al.*, 2006].

6.1 Mesure de $E_{v=14}$

Pour déterminer l'énergie de liaison $E_{v=14}$ du dernier état lié $v = 14$ du potentiel fondamental ${}^5\Sigma_g^+$, on mesure la position de la résonance noire, puis on tiens compte des éventuels décalages en fréquence produits par les conditions expérimentales. La première étape est donc de déterminer le centre de la résonance noire Δ_1^{centre} sur les spectres. La procédure utilisée est expliquée et appliquée au spectre de la figure 6.1.

6.1.1 Influence des conditions expérimentales

Une fois la position de la résonance noire déterminée, on vérifie l'influence sur cette position des différents paramètres expérimentaux et des décalages en fréquence qu'ils peuvent induire. C'est pour cela que les mesures ont été faites avec une faible intensité des deux lasers L_1 et L_2 (que l'on a pris telle que $P_1 = P_2 = 10 \mu\text{W}$) afin qu'ils n'induisent pas de déplacements lumineux. Dans cette partie, plusieurs sources de décalage sont passées en revue (champ magnétique, impulsion de recul, température) afin de déterminer si elles ont ou non une influence dans notre expérience.

Dans le cas de la mesure des énergies des niveaux moléculaires du potentiel 0_u^+ (voir [LÉONARD *et al.*, 2003], [LÉONARD *et al.*, 2004] et [LÉONARD, 2003]), plusieurs décalages en énergie avaient été analysés dans le cas de la photoassociation à un photon. Reprenons le même raisonnement pour deux photons. Suite à l'absorption d'un premier photon d'énergie $h\nu_1$ et d'impulsion $\hbar\vec{k}_1$ et l'émission d'un deuxième

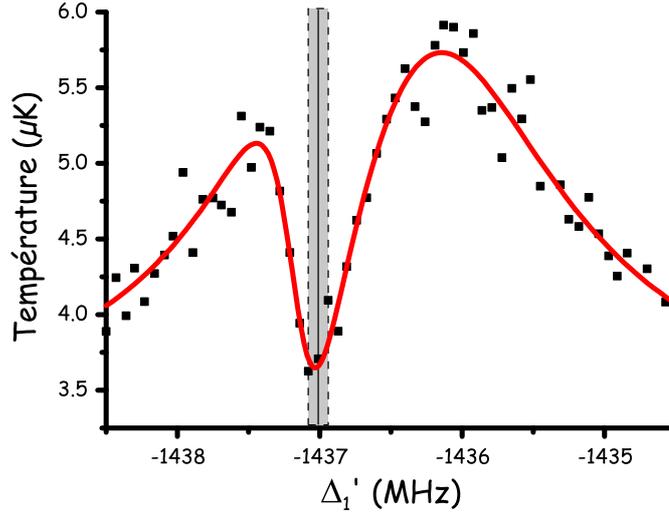


FIGURE 6.1 – Agrandissement d’une résonance noire pour une température de $T \approx 2.63 \mu\text{K}$ d’après la calibration de la température présentée dans la partie 1.5. La position de la résonance noire est donnée par l’ajustement (en rouge) du spectre par l’équation 5.1, et est sur cette figure de $\Delta_1^{\text{centre}} = -1437.01 \text{ MHz}$. La barre d’erreur (zone grisée) est déterminée de la manière suivante : on décale la courbe de l’ajustement en la centrant sur le point expérimental le plus proche de la position de la résonance noire Δ_1^{centre} . Si la courbe n’ajuste pas les points décrivant la résonance noire, la largeur de la barre est la différence de fréquence entre la position du point expérimental et Δ_1^{centre} , sinon, on prend le point voisin et on refait la même procédure. Plus le spectre est bruité, plus le point choisi sera loin du centre de la résonance noire. Sur cette figure, décaler la courbe d’ajustement sur le premier point voisin de centre Δ_1^{centre} est suffisant, la position de la résonance noire est donc de $\Delta_1^{\text{centre}} = -1437.01 \pm 0.07 \text{ MHz}$.

($P_1 = P_2 = 10 \mu\text{W}$, $\tau_{\text{PA}} = 1 \text{ ms}$)

photon d’énergie $h\nu_2$ et d’impulsion $\hbar\vec{k}_2$, on a, d’après la conservation de l’énergie et de l’impulsion totales :

$$\left\{ \begin{array}{l} E_\infty + h(\nu_1 - \nu_2) = E_2 \\ \text{et} \\ \vec{P}_\infty + \hbar(\vec{k}_1 - \vec{k}_2) = \vec{P}_2 \end{array} \right. \quad \text{avec} \quad \left\{ \begin{array}{l} E_\infty = \frac{\vec{P}_\infty^2}{2\mu} + \frac{\vec{p}_{rel}^2}{\mu/2} - \vec{\mu} \cdot (\vec{B}(\vec{r}_{a1}) + \vec{B}(\vec{r}_{a2})) \\ \text{et} \\ E_2 = E_{v=14} + \frac{\vec{P}_2^2}{2\mu} - \vec{\mu} \cdot \vec{B}(\vec{r}_2) \end{array} \right. \quad (6.1)$$

où \vec{p}_{rel} est l’impulsion relative des deux atomes a_1 et a_2 dans l’état de collision $2^3S_1 - 2^3S_1$, E_∞ et \vec{P}_∞ sont l’énergie et l’impulsion de a_1 et a_2 , E_2 et \vec{P}_2 ceux de l’état moléculaire $v = 14$ (l’origine des énergies est prise comme étant l’énergie de l’asymptote du potentiel $^5\Sigma_g^+$). $\vec{B}(\vec{r}_{a1})$, $\vec{B}(\vec{r}_{a2})$ et $\vec{B}(\vec{r}_2)$ sont les champs magnétiques localisés à la position de chaque atome (\vec{r}_{a1} et \vec{r}_{a2}) et de la molécule dans $v = 14$ (\vec{r}_2), avec $\vec{\mu}$ le moment magnétique d’un atome dans l’état 2^3S_1 . Le facteur de Landé vaut 2 pour l’hélium, donc $\|\vec{\mu}\| = -2\mu_B$, avec $\mu_B < 0$ le magnéton de Bohr. On en déduit finalement la différence entre l’énergie de liaison d’une molécule dans $v = 14$ et la différence de fréquences des deux lasers de PA :

$$E_{v=14} - h(\nu_1 - \nu_2) = -\frac{\hbar^2}{2\mu} (\vec{k}_1 - \vec{k}_2)^2 - \frac{\hbar}{\mu} \vec{P}_\infty \cdot (\vec{k}_1 - \vec{k}_2) + \frac{\vec{p}_{rel}^2}{\mu/2} + \vec{\mu} \cdot (\vec{B}(\vec{r}_2) - \vec{B}(\vec{r}_{a1}) - \vec{B}(\vec{r}_{a2})) \quad (6.2)$$

Le premier terme du membre de droite de l’équation (6.2) est l’énergie de recul de la molécule après avoir absorbé un premier photon et émis de façon stimulé un deuxième photon. Les deux photons ont donc des vecteurs d’onde de direction opposée et l’énergie de recul est $\hbar^2(k_1 - k_2)^2/2\mu$. Or la quantité $\hbar^2 k^2/2\mu$ est de l’ordre de 21 MHz pour un photon avec une longueur d’onde de 1083 nm (c’est à dire avec

une fréquence de 277 THz). $\hbar^2(k_1 - k_2)^2/2\mu$ est donc négligeable devant 21 MHz puisque la différence de fréquence entre les deux photons est d'environ 90 MHz.

Le deuxième terme du membre de droite est nul puisque les impulsions des photons et celle du centre de masse ne sont pas corrélées : $\langle \vec{k} \cdot \vec{P}_\infty \rangle = 0$.

Le troisième terme provient de l'énergie cinétique relative des deux atomes. La valeur moyenne de ce terme donne, d'après [LÉONARD *et al.*, 2004] :

$$\left\langle \frac{\vec{p}_{rel}^2}{\mu/2} \right\rangle = \frac{3}{2} k_B T . \quad (6.3)$$

L'énergie $E_{v=14}$ dépend donc de la température T à laquelle est préparée le nuage. C'est en faisant varier la température T et en extrapolant à zéro la position de la résonance noire que l'on va tirer notre valeur de la position de l'état moléculaire $v = 14$ dans la partie qui suit.

Le quatrième terme est le décalage Zeeman induit par le champ magnétique de piégeage. Ce décalage pour deux atomes libres vaut d'après [LÉONARD *et al.*, 2004] :

$$\left\langle \vec{\mu} \cdot \left(\vec{B}(\vec{r}_{a1}) + \vec{B}(\vec{r}_{a2}) \right) \right\rangle = 2\mu B_0 + \frac{3}{2} k_B T , \quad (6.4)$$

où le terme $3k_B T/2$ est donné par le théorème d'équipartition pour décrire le moyennage inhomogène du déplacement Zeeman. La contribution due à la molécule est la même que celle de deux atomes libres $2\mu B_0 + \frac{3}{2} k_B T$, elles se compensent donc, avec une correction qui tient compte de l'interaction dans la molécule. Ainsi, le quatrième terme est nul à cette correction près. Afin de mesurer cette dernière, on a fait varier le biais B_0 du champ magnétique de 0.35 à 6 Gauss comme le montre la figure 6.2, mais cette contribution semble être négligeable puisqu'aucune dépendance n'apparaît, on a donc :

$$\left\langle \vec{\mu} \cdot \left(\vec{B}(\vec{r}_2) - \vec{B}(\vec{r}_{a1}) - \vec{B}(\vec{r}_{a2}) \right) \right\rangle \simeq 0$$

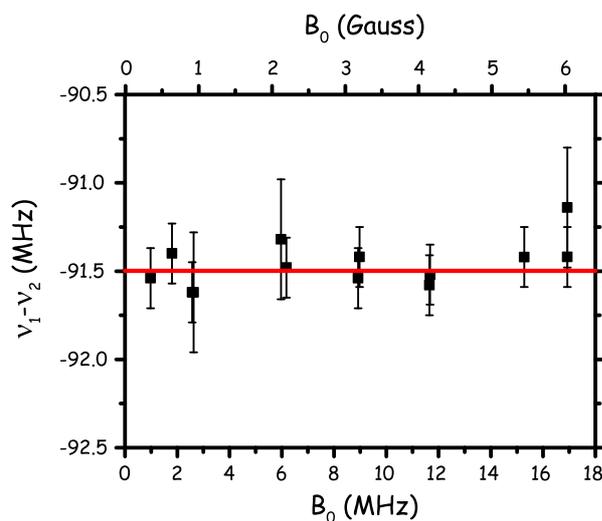


FIGURE 6.2 – Influence du biais B_0 du champ magnétique sur la position de la résonance noire mesurée par la différence de fréquences $\nu_1 - \nu_2$ entre les deux photons. On ajoute jusqu'à ± 1 A au courant dans les bobines Helmholtz du piège pour modifier le biais B_0 habituellement utilisée. La rampe d'évaporation est ajustée pour chaque mesure afin d'avoir toujours la même température initiale du nuage.

($P_1 = P_2 = 10 \mu\text{W}$, $\tau_{\text{PA}} = 200 \mu\text{s}$)

D'autres mécanismes de décalage peuvent intervenir, comme l'interaction de champ moyen qui modifie à la fois l'énergie du niveau initial et du niveau final, et produit un décalage des raies moléculaires,

dépendant de la densité. Dans l'état initial 2^3S_1 , tout d'abord, l'interaction du champ moyen vaut $4\pi a\hbar^2 n/m$, où $n < 2 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$ est la densité atomique, $a \approx 7.5 \text{ nm}$ la longueur de diffusion et m la masse de He. On en déduit que l'interaction de champ moyen est plus petite que 4.6 kHz, nettement inférieure à notre précision sur $E_{v=14}$ et que l'on va donc négliger. En ce qui concerne l'état moléculaire final, on a essayé de voir un possible effet de densité comme le montre la figure 6.3. On peut conclure qu'il n'y a pas d'effet visible.

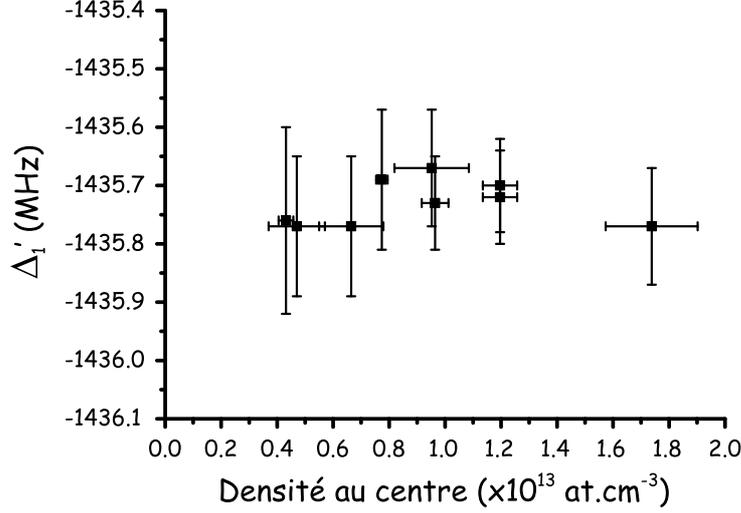


FIGURE 6.3 – Influence de la densité au centre du nuage sur la position de la résonance noire. On fait varier la densité du nuage en modifiant la puissance de l'onde radio-fréquence des dernières étapes d'évaporation tout en ajustant leurs fréquences afin d'avoir toujours la même température initiale du nuage. On adapte aussi le temps de photoassociation τ_{PA} à la densité pour ne pas détruire le nuage.

($P_1 = P_2 = 10 \mu\text{W}$)

Comme on modifie le temps de photoassociation τ_{PA} en fonction de la densité du nuage, il faut vérifier une possible dépendance avec τ_{PA} , c'est à dire avec l'énergie déposée dans le nuage. Le résultat a été là aussi négatif.

Finalement, l'énergie de liaison de l'état moléculaire $v = 14$ est obtenue grâce à la différence de fréquence entre les deux laser de PA et à la température T du nuage :

$$E_{v=14} = h(\nu_1 - \nu_2) + \frac{3}{2} k_B T. \quad (6.5)$$

6.1.2 Détermination de $E_{v=14}$

Il reste donc un seul effet à vérifier, celui de la contribution de l'énergie cinétique relative des deux atomes (le troisième terme de l'équation (6.2)) et donc de la température T du nuage. Pour faire varier T , on change la fréquence de fin de rampe d'évaporation en se servant de la calibration présentée dans la partie 1.3.3. Le nombre d'atomes N et la densité au centre $n(\vec{0})$ varient avec T , le temps de photoassociation τ_{PA} doit être ajusté pour chaque T pour conserver la même amplitude du signal de PA. Mais comme on l'a vu dans la partie précédente, N , $n(\vec{0})$ et τ_{PA} n'induisent pas de décalage de la résonance noire. On observe donc seulement l'influence de la température du nuage, que l'on fait varier entre 0.5 et 10 μK . Les mesures sont présentées sur la figure 6.4.

On s'attend, d'après l'équation (6.5), à ce que le rapport entre l'énergie de l'état de collision et le décalage en fréquence de la résonance noire soit de $\frac{3}{2} \frac{k_B T}{h|\nu_1 - \nu_2|} = 1$. On a donc fait un ajustement linéaire de nos mesures qui tient compte des barres d'erreur horizontales et verticales. On obtient un pente de

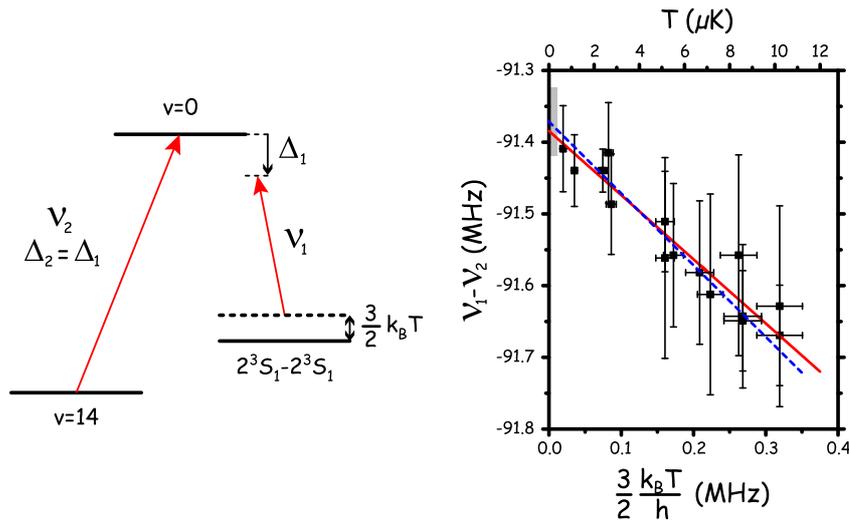


FIGURE 6.4 – Influence de la température T , exprimée en MHz, sur la différence de fréquences $\nu_1 - \nu_2$ des lasers. Les barres d'erreurs relatives sur la température sont d'environ 9 %. Un ajustement linéaire classique (c'est à dire qui tient compte seulement des barres d'erreurs verticales) donne $\nu_1 - \nu_2 = -91.383 \pm 0.022$ MHz à température nulle et une pente de -0.900 ± 0.188 . Si on utilise un programme en *Fortran* permettant de faire un ajustement linéaire (en trait plein rouge) avec les barres d'erreur verticales et horizontales, on obtient un résultat très proche : une origine de -91.384 ± 0.030 MHz et une pente de -0.894 ± 0.210 . La droite en pointillé est un ajustement avec une pente de 1. Le temps de photoassociation τ_{PA} est adapté en fonction de la température T afin d'optimiser le signal, le nombre d'atomes et la densité variant avec T . ($P_1 = P_2 = 10 \mu\text{W}$)

-0.894 ± 0.210 , qui est compatible avec la valeur attendue de 1. Il faut remarquer qu'un tel ajustement est un moyen de calibrer notre température. Cet ajustement permet aussi d'en déduire l'énergie de l'état du dernier état lié, $E_{v=14} = -91.38 \pm 0.06$ MHz, où la barre d'erreur est prise comme étant celle sur la position des résonances noires aux plus basses températures.

6.2 Détermination de a

Après avoir obtenue la mesure de $E_{v=14}$, on peut en déduire la longueur de diffusion a par la méthode présentée dans la partie 3.2.4 : on modifie la partie à courte portée du potentiel d'interaction en le multipliant par un facteur proche de 1 afin d'obtenir différentes valeurs du couple $(E_{v=14}, a)$. On applique cette procédure aux trois différents potentiels publiés dans [STÄRCK and MEYER, 1994], [GADÉA *et al.*, 2002], et [DICKINSON *et al.*, 2004] pour obtenir la figure 3.3.

Mais pour le potentiel de [PRZYBYTEK and JEZIORSKI, 2005], on utilise une méthode différente pour calculer $(E_{v=14}, a)$. En effet, pour les trois potentiels précédents, l'incertitude vient essentiellement du calcul du potentiel à courte portée (voir la discussion de la partie 3.2), d'où sa modification par un facteur multiplicatif. Pour le potentiel de [PRZYBYTEK and JEZIORSKI, 2005], il n'y a pas de raison de faire cette modification, les calculs à courte portée donnant les bons coefficients $C_{6,8,10}$ pour les longues portées. Nous utilisons donc la même méthode que dans [PRZYBYTEK and JEZIORSKI, 2005] : en plus de leur potentiel V_0 , les auteurs définissent deux autres potentiels, placés au-dessus (pour V_U) et en-dessous (pour V_L) de V_0 , obtenus de tel manière que ces deux potentiels encadrent les barres d'erreur $\Delta(r)$ du potentiel V_0 (on a $\Delta(r) = V_U(r) - V_0(r) = V_0(r) - V_L(r)$). Pour modifier le potentiel et donc la longueur de diffusion a , ils prennent le potentiel $V_0 + \alpha\Delta$ avec $-1 < \alpha < +1$. Par cette méthode, on a une valeur du couple $(E_{v=14}, a)$ pour chaque modification du potentiel V_0 et on obtient la courbe (en trait noir) de la figure 3.3.

Afin de tenir compte d'autres sources d'erreur, les auteurs de [PRZYBYTEK and JEZIORSKI, 2005] utilisent la même procédure pour un deuxième potentiel, qui est le précédent (V_0) auquel ils ont ajouté les corrections adiabatique V_{ad} et relativiste V_{rel} . Ils répètent cette procédure pour encore deux autres potentiels, qui sont les mêmes que précédemment (V_0 et $V_0 + V_{ad} + V_{rel}$) en prenant la masse nucléaire de l'hélium au lieu de la masse atomique¹. On a ainsi quatre potentiels différents :

1. V_0 avec la masse atomique,
2. $V_0 + V_{ad} + V_{rel}$ avec la masse atomique,
3. V_0 avec la masse nucléaire,
4. $V_0 + V_{ad} + V_{rel}$ avec la masse nucléaire,

que l'on modifie (en leur rajoutant le terme $+\alpha\Delta$ avec $-1 < \alpha < +1$) pour avoir quatre valeurs du couple ($E_{v=14}$, a) pour chaque modification faite.

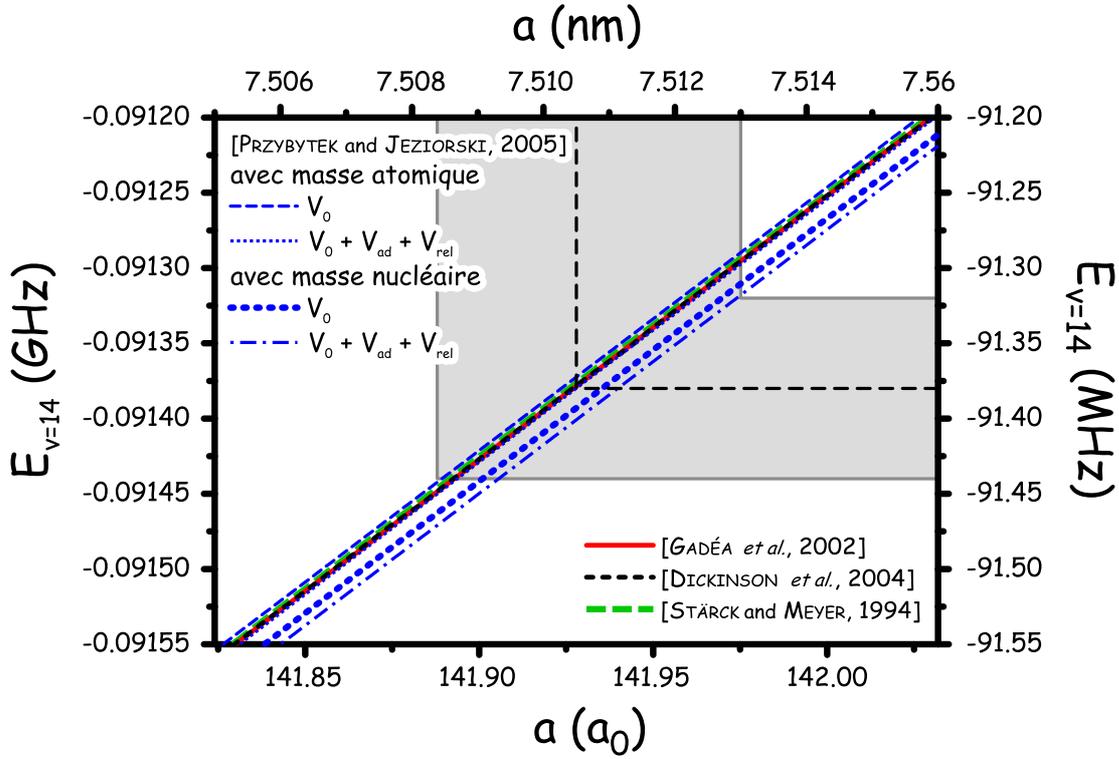


FIGURE 6.5 – Variation en fonction de la longueur de diffusion a de l'énergie de liaison $E_{v=14}$ du dernier niveau lié du potentiel ${}^5\Sigma_g^+$. On a un total de 7 courbes obtenues pour les différents potentiels théoriques (voir le texte pour plus de précision) : 3 courbes (en noir, rouge et vert) pour les potentiels de, respectivement, [STÄRCK and MEYER, 1994], [GADÉA *et al.*, 2002], et [DICKINSON *et al.*, 2004], les 4 autres en bleus pour les différents potentiels envisagés dans [PRZYBYTEK and JEZIORSKI, 2005]. La barre d'erreur expérimentale sur l'énergie $E_{v=14}$, qui est de -91.38 ± 0.06 MHz, donne une valeur (zone grisée) de la longueur de diffusion de $a = 7.5105 \pm 0.0025$ nm. Mais pour tenir compte de possibles corrections théoriques ou expérimentales que l'on aurait pu négliger, la barre d'erreur est doublée, on a donc $a = 7.5105 \pm 0.0025$ nm.

On a donc un total de sept potentiels (les quatre définies dans [PRZYBYTEK and JEZIORSKI, 2005] et ceux de [STÄRCK and MEYER, 1994], [GADÉA *et al.*, 2002], et [DICKINSON *et al.*, 2004]) qui permettront de déduire a à partir de $E_{v=14}$. Pour cela, on se sert encore de la méthode employée dans [PRZYBYTEK and JEZIORSKI, 2005] qui diffère un peu de celle présentée dans la partie 3.2.4 :

¹Dans [PRZYBYTEK and JEZIORSKI, 2005], les auteurs précisent que dans certains calculs, il est plus usuel d'utiliser la masse nucléaire plutôt que la masse atomique, et dans d'autres, la masse atomique plutôt que la masse nucléaire. Ils donnent donc leurs résultats avec les deux masses.

- Le déphasage $\delta(k)$ de la fonction d'onde de collision est obtenu avec l'équation (3.10) en résolvant l'équation de Schrödinger radiale (3.2) jusqu'à une distance inter-atomique de $5 \times 10^5 a_0$ pour des énergies de l'ordre de 10^{-5} μ hartrees (soit environ 3 μ K). Les différentes valeurs obtenues de $\delta(k)$ sont ajustées par l'équation (3.11). On obtient alors une valeur de a .
- Pour déduire la valeur de $E_{v=14}$ correspondante, on utilise la méthode exposée dans la partie 3.2.4 : on résoud l'équation de Schrodinger radiale (3.2) jusqu'à 1500 a_0 et on cherche l'énergie pour laquelle $\psi(1500 a_0) = 0$.

On obtient la figure 6.5 où sont représentées les 7 courbes reliant $E_{v=14}$ à a . Pour une valeur donnée de $E_{v=14}$, les courbes ne diffèrent que de 0.001 nm, alors que l'incertitude expérimentale sur $E_{v=14}$ (qui est de ± 0.06 MHz) donne une barre erreur sur a large de ± 0.0025 nm. On voit ainsi la robustesse de la méthode spectroscopique à deux photons car, quel que soit le potentiel considéré, l'erreur sur a provient essentiellement de l'expérience (l'incertitude expérimentale est 5 plus grande que l'incertitude théorique) : on est ainsi pas dépendant d'un modèle théorique contrairement aux mesures de a faites par d'autres groupes (voir la discussion sur les valeurs expérimentales de a , partie 3.3). On peut remarquer sur la figure 6.5 que la contribution des corrections adiabatique V_{ad} et relativiste V_{rel} ou la contibution du changement de la masse atomique par la masse nucléaire dans la potentiel de [PRZYBYTEK and JEZIORSKI, 2005] ne sont pas négligeables² puisque l'erreur induite sur a est de respectivement $0.24 \times 10^{-3} a_0$ et $0.63 \times 10^{-3} a_0$. Ces contributions incitent à la prudence quant à la largeur de la barre d'erreur sur a . Afin d'être certain de tenir compte aussi bien des corrections théoriques que de différents effets expérimentaux qui modifieraient la valeur de a et que l'on aurait pu oublier, on a préféré doubler la barre d'erreur sur a , qui est donc de ± 0.0025 nm. La valeur de a , déduite de la figure 6.5 est finalement³ de $a = 7.5105 \pm 0.0025$ nm.

6.3 Comparaison des différentes déterminations de a

Comparons notre valeur de $a = 7.5105 \pm 0.0025$ nm avec les autres déterminations présentées dans les parties 3.3 et 3.2. La figure 6.6 rassemble l'ensemble de ces déterminations. On constate que, avant 2005, la plupart des estimations donnaient $a > 8$ nm, et sont peu précises, à cause essentiellement de leur dépendance au nombre d'atomes N , qui est difficile à calibrer. Seul la valeur de [SEIDELIN *et al.*, 2004] ($a = 11.3_{-1.0}^{+2.5}$ nm) ne dépend pas de N et a par conséquent une barre d'erreur plus petite. Mais cette valeur est en nettement contradiction avec celle obtenue dans ce chapitre, la différence entre ces deux valeurs étant⁴ de 40 %. Il faut ajouter que notre valeur est de loin la plus précise, notre incertitude étant 700 plus petite que celle de [SEIDELIN *et al.*, 2004].

La confrontation de notre valeur de a avec la théorie montre que seul celle de [PRZYBYTEK and JEZIORSKI, 2005], qui est la plus récente, est en parfait accord avec notre estimation. Les auteurs donnent en effet une valeur de $a = 7.64 \pm 0.20$ nm et une énergie de liaison de $E_{v=14} = 87.4 \pm 6.7$ MHz, elle aussi en accord avec notre mesure de $E_{v=14} = -91.38 \pm 0.06$ MHz. Notre valeur confirme donc les

²On peut ajouter que la différence pourtant minime (0.027 %) entre le masse atomique et la masse nucléaire constitue l'incertitude théorique la plus importante

³Il faut remarquer que dans [MOAL *et al.*, 2006], il est annoncé que $a = 7.512 \pm 0.005$ nm, alors que l'estimation présentée dans ce chapitre est de $a = 7.5105 \pm 0.0025$ nm. Cette légère différence est due à une meilleure calibration de la température faite depuis la publication de l'article (voir la partie 1.3.3), et est inférieure à la barre d'erreur sur a . Cette différence ne porte donc pas à conséquence. De plus la barre d'erreur de l'estimation présentée dans ce chapitre est plus petite que dans l'article, la mesure ayant été améliorée depuis.

⁴Cette contradiction serait apparemment due à une mauvaise calibration de l'efficacité de détection du MCP utilisé par le groupe d'Orsay, ainsi qu'à la complexité du modèle théorique sur lequel s'appuie leur estimation de a .

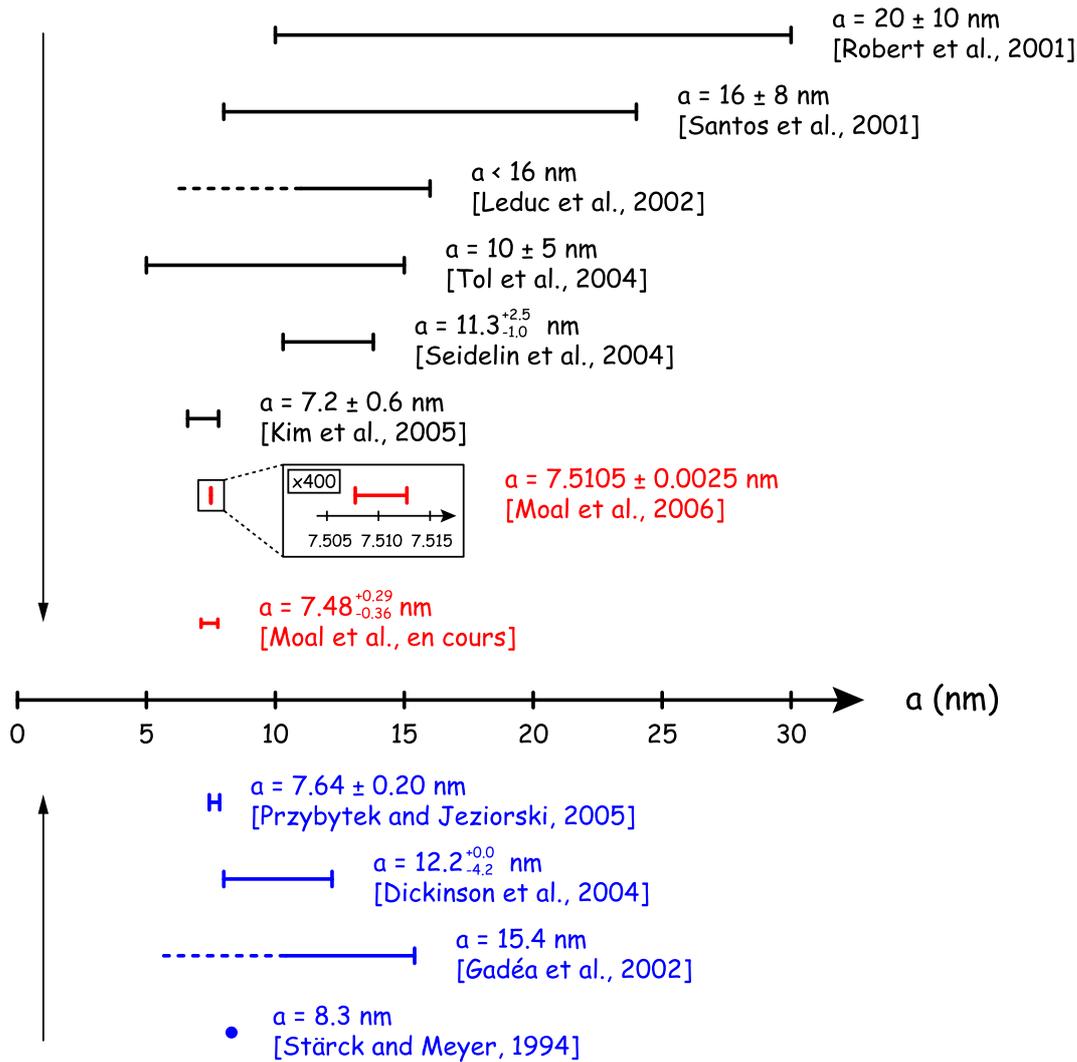


FIGURE 6.6 – Comparaison des valeurs de la longueur de diffusion a de l'hélium métastable présentées dans les parties 3.3 et 3.2. Les différentes valeurs de a sont représentées en bleu dans la partie inférieure pour les déterminations théoriques, en noir dans la partie supérieure pour les déterminations expérimentales, et en rouge dans la partie supérieure pour celles présentées dans ce chapitre et dans la partie 4.3. Les deux flèches sur le côté gauche indique l'ordre de publication.

calculs *ab initio* de la partie à courte portée du potentiel. Il faut préciser que ces calculs donnent les mêmes coefficients $C_{6,8,10}$ que [YAN and BABB, 1998] à longues portées, ce qui est une confirmation supplémentaire de leur justesse.

6.4 Conclusion

Dans ce chapitre, on a vu l'application de la technique de spectroscopie à deux photons au cas de l'hélium métastable, afin de mesurer l'énergie $E_{v=14}$ de liaison du niveau $v = 14$ le moins lié du potentiel fondamental $^5\Sigma_g^+$. Différentes sources de décalages de cette énergie ont été passées en revue, mais une seule est suffisamment importante pour qu'on en tient compte, la température de l'état initial de collision. Après avoir déterminé $E_{v=14}$, on déduit la longueur de diffusion en onde s a avec l'aide des différentes théories décrivant le potentiel $^5\Sigma_g^+$. On a vu que l'incertitude expérimentale est 5 fois supérieure à l'incertitude théorique : la valeur de a ainsi déduite est robuste et ne dépend que très peu de la théorie. De plus, l'estimation de a est de loin la plus précise à ce jour avec une valeur de $a = 7.5105 \pm 0.0025$ nm.

Chapitre 7

Mesure de la durée de vie de l'état

$v = 14$ du potentiel ${}^5\Sigma_g^+$

Ce chapitre détaille la mesure de la durée de vie intrinsèque d'une molécule dans le niveau le moins lié $v = 14$ ($J = 2$) du potentiel ${}^5\Sigma_g^+$. Cette molécule a la particularité d'être formée à partir de deux atomes métastables polarisés de spin. La connaissance de sa durée de vie est susceptible d'apporter de précieuses informations sur l'ionisation Penning, mécanisme le plus probablement à l'origine de la destruction de cette molécule. En effet, l'inhibition de l'ionisation Penning dans une molécule pour deux atomes polarisés de spin n'était pas connue expérimentalement et théoriquement au début de ce travail. Une détermination théorique de la durée de vie, récemment publiée dans [BEAMS *et al.*, 2006] suite à un article [MOAL *et al.*, 2006] de notre équipe, donne une valeur de $150 \mu\text{s}$ due à l'auto-ionisation de la molécule par le couplage spin-dipôle entre les potentiels ${}^5\Sigma_g^+$ et ${}^1\Sigma_g^+$. Il est donc intéressant de comparer cette valeur théorique de la durée de vie avec une mesure que l'on peut déduire des signaux de PA à deux photons.

7.1 Étude de la largeur de la résonance noire atomes-molécules

Cette partie présente une estimation de la durée de vie de l'état $v = 14$ à l'aide de la mesure de la largeur de la résonance noire atomes-molécules (voir partie 5.3.1) que l'on peut relier à la largeur γ_2 du niveau $v = 14$, la durée de vie valant $\frac{1}{\gamma_2}$.

7.1.1 Calibration de la fréquence de Rabi du deuxième laser

Si l'on veut utiliser la résonance noire pour la mesure de γ_2 , le meilleur moyen est de se servir de l'ajustement issu de la théorie de Bohn et Julienne (équation (5.1) de la partie 5.2) qui nous donne une valeur de γ_2 , qui est ici le paramètre ajustable. Les autres paramètres de l'ajustement sont connus (voir partie 5.2), sauf la fréquence de Rabi Ω du laser L_2 que l'on peut calibrer.

En effet on a vu dans la partie 5.3.3 que, dans le cas où l'on a le doublet Autler-Townes, l'écart entre les deux pics du doublet est égal à deux fois la fréquence de Rabi Ω du laser L_2 (voir figure 7.1-a). D'où l'idée de faire une calibration de Ω en fonction de l'intensité I_2 du laser L_2 . On a donc utilisé des puissances pour le laser L_2 comprises entre $0.5 \mu\text{W}$ et 4 mW et mesuré l'écart du doublet, que l'on a reporté sur la figure 7.1-b. Plusieurs difficultés se posent à forte puissance :

- À forte intensité I_2 , la raie $v = 0$ est déplacée de plusieurs MHz, et le doublet n'est alors plus symétrique, l'écart n'est donc plus de 2Ω . Il faut donc ajuster systématiquement la fréquence du

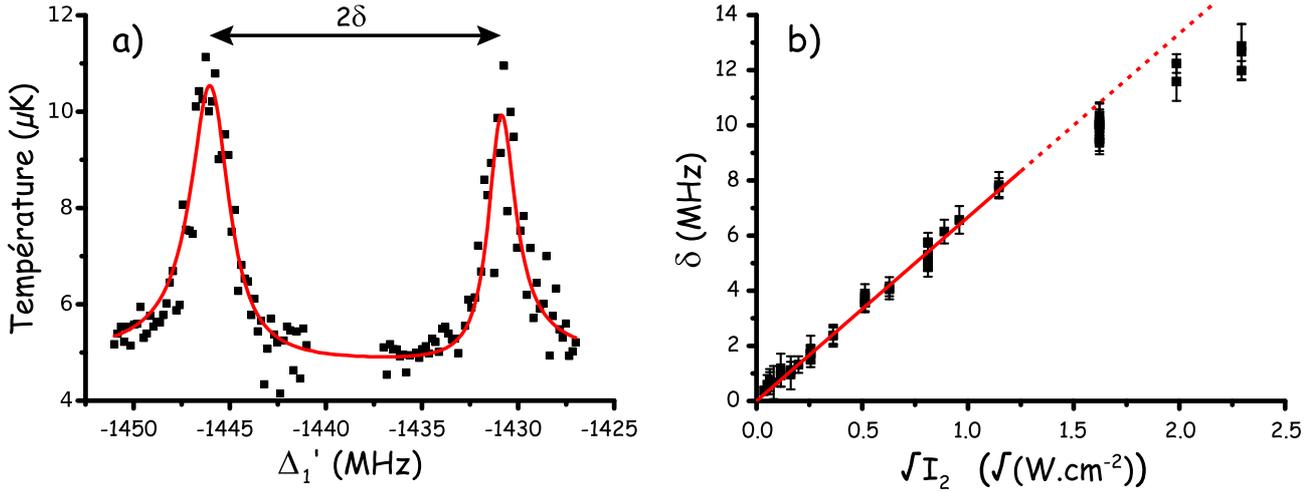


FIGURE 7.1 – Calibration de l'intensité du deuxième photon.

a - Doublet Autler-Townes dont l'écart des deux raies est donné par deux fois la fréquence de Rabi Ω du laser L_2 d'après l'équation (5.2).

($P_1 = 1 \text{ mW}$, $P_2 = 200 \mu\text{W}$, $\tau_{\text{PA}} = 100 \mu\text{s}$)

b - Écart du doublet en fonction de la racine carré de l'intensité I_2 du laser L_2 , d'où une unité en $\sqrt{\text{W}\cdot\text{cm}^{-2}}$. Un ajustement linéaire ne tenant pas compte des points au delà de $\sqrt{I_2} = 1.5 \sqrt{\text{W}\cdot\text{cm}^{-2}}$ donne la calibration de Ω en fonction de I_2 : $\Omega(I_2) = \sqrt{I_2} \times (6.67 \pm 1.00) \text{ MHz}$ avec I_2 en $\text{W}\cdot\text{cm}^{-2}$.

deuxième photon pour retrouver la symétrie, ce qui est assez délicat car une différence de 0.4 MHz (pour un écart de 20 MHz) suffit pour perdre de façon très claire la symétrie.

- L'écart est parfois trop important (jusqu'à 25 MHz) pour pouvoir observer les deux pics en un seul spectre (large de 20 MHz), les AOMs que l'on utilise pour changer la fréquence des lasers provoquant des variations d'intensité de plus de 5 % sur des spectres plus larges. Les deux pics du doublet sont donc observés séparément, en deux spectres, rendant plus complexe la recherche de la symétrie (voir la remarque précédente).
- Au-delà d'une certaine intensité (correspondant à $\sqrt{I_2} > 1.5 \sqrt{\text{W}\cdot\text{cm}^{-2}}$), l'écart du doublet n'est plus exactement proportionnel à Ω , comme on peut le voir sur la figure 7.1-b. Une explication probable est que l'on a atteint des fréquences de Rabi de l'ordre de 10 MHz, ce qui n'est pas négligeable devant le désaccord de 90 MHz avec la transition libre-lié $2^3S_1 + 2^3S_1 \rightarrow v = 0$: bien qu'il soit hors résonance, le second photon induit donc un couplage entre l'état excité $v = 0$ et le continuum des états de collision du potentiel $^5\Sigma_g^+$. Ce couplage n'est plus négligeable devant celui entre les deux états liés $v = 0$ et $v = 14$ et modifie l'écart du doublet, qui n'est alors plus linéaire en $\sqrt{I_2}$.
- Pour la même raison que précédemment (le laser L_2 est hors résonance avec la transition libre-lié $2^3S_1 + 2^3S_1 \rightarrow v = 0$, mais induit tout de même un couplage avec cette transition), le laser crée un certain nombre de molécules dans l'état $v = 0$ qui se désexcite radiativement et crée donc des pertes, et ceci quelle que soit la fréquence du laser L_1 : le doublet est donc noyé dans un fond de pertes quand I_2 augmente. Pour pallier ce problème, la solution consiste à diminuer le temps de photoassociation τ_{PA} afin de diminuer les pertes, mais ce faisant, on diminue aussi l'efficacité du laser L_1 et donc la hauteur du doublet. Il faut alors compenser cet effet en augmentant l'intensité I_1 du laser L_1 . Mais cette procédure a ses limites : on a remarqué que pour de fortes intensités, les deux raies du doublet s'élargissent et leur hauteur diminue, ce qui n'est pas prévu par l'équation (5.1) (la hauteur doit être constante), ce que l'on avait déjà observé lors de l'étude des déplacements

lumineux (voir [KIM *et al.*, 2005a] et partie 3.3.5). En introduisant dans l'équation (5.1) une largeur γ_1 du niveau $v = 0$ qui dépend de l'intensité I_1 (par exemple avec une dépendance linéaire), on reproduit non seulement l'élargissement des raies du doublet, mais aussi le fait que leur hauteur diminue. On a finalement deux effets secondaires dus aux fortes intensités I_2 , l'un qui induit un fond de pertes, l'autre qui diminue l'amplitude du doublet. Diminuer τ_{PA} et augmenter I_1 ne permettent plus de diminuer les pertes, ni d'augmenter le rapport signal sur bruit, l'amplitude du doublet devenant de plus en plus faible. On a ainsi une limite sur l'intensité I_2 à partir de laquelle le doublet n'est plus observable.

Pour faire la calibration, on ne tient donc pas compte des intensités telles que $\sqrt{I_2} > 1.5 \sqrt{W.cm^{-2}}$. On va aussi mettre une limite inférieure à I_2 , car on a vu dans la partie 5.3.3 que l'écart du doublet 2δ était donné par :

$$\delta = \sqrt{-\gamma_2^2 + 2\sqrt{2\Omega^2(2\Omega^2 + \gamma_1\gamma_2 + \gamma_2^2 + \Gamma\gamma_2)}}, \quad (7.1)$$

ce qui montre qu'il est nécessaire d'avoir $\sqrt{2}\Omega^2 > \gamma_1\gamma_2$ (les autres contributions étant plus petites) pour avoir un écart du doublet égal à 2Ω . En prenant $\gamma_1 = 2.7$ MHz et $\gamma_2 = 0.12$ MHz (d'après nos expériences, comme on le verra), il faut que $\Omega > 0.5$ MHz. L'ajustement linéaire que l'on a fait sur la figure 7.1-b prend en compte ces deux limitations, et nous donne la calibration de Ω en fonction de l'intensité¹ I_2 qui est de $\Omega(I_2) = \sqrt{I_2} \times (6.67 \pm 1.00)$ MHz (avec I_2 en $W.cm^{-2}$). La barre d'erreur de 15 % est donnée par les incertitudes de l'ajustement linéaire.

On a finalement une valeur numérique pour tous les paramètres intervenant dans l'équation (5.1) qui permettra d'ajuster nos spectres afin d'en déduire une valeur de γ_2 et donc de la durée de vie de $v = 14$. Mais on a passé sous silence une difficulté qui fait l'objet de la partie suivante.

7.1.2 Influence du moyennage sur les énergies de collision

La formule (5.1) permet d'ajuster la plupart de nos données. Mais si on veut en déduire une valeur de γ_2 issue de l'ajustement, il faut tenir compte d'un moyennage sur les énergies de collision de l'échantillon qui est d'environ car la température d'environ $T = 4 \mu K$ correspond à un élargissement de $k_B T/h \approx 0.08$ MHz, soit du même ordre de grandeur que la largeur de la résonance noire que l'on mesure, qui est d'environ 0.2 MHz. Il faut donc introduire cet élargissement dans nos ajustements en modifiant l'équation (5.1). Le signal du spectre de photoassociation est proportionnel au taux de PA K_{PA} (voir la partie 4.1) que l'on rappelle ici² :

$$K_{PA}(T, \Gamma, \gamma_1, \gamma_2, \Delta_1, \Delta_2, E_\infty) = \frac{h^2 k_B T}{(2\pi\mu k_B T)^{3/2}} \times \int_0^\infty \left| S_{0,v=0} \left(\Gamma \sqrt{\frac{E}{k_B T}}, \gamma_1, \gamma_2, \Delta_1, \Delta_2, E_\infty + E \right) \right|^2 e^{-E/k_B T} \frac{dE}{k_B T}, \quad (7.2)$$

¹L'intensité des lasers est déduite de la puissance mesurée. D'après la partie 2.3, notre waist est de $221 \mu m$ d'où une calibration de l'intensité laser I en fonction de la puissance mesurée P de

$$I(W.cm^{-2}) = \frac{2P(W)}{\pi(221(\mu m) \times 10^{-4})^2} = 1303 cm^{-2} \times P(W),$$

que l'on peut convertir en MHz pour le second photon avec la calibration faite dans la partie 7.1.1. Il faut noter que dans les légendes des figures sont reportées les puissances correspondant aux intensités des laser et non les intensités, que l'on peut obtenir grâce à la formule précédente.

²Il faut rappeler que, d'après la partie 5.4.4, la contribution de $S_{0,v=0}$ est supérieure à celle de $S_{0,v=14}$, et que, par conséquent, tous les ajustements des spectres sont effectués avec $S_{0,v=0}$.

où μ est la masse réduite et k_B la constante de Boltzmann. On utilise ce nouvel ajustement pour en déduire γ_2 à partir des signaux de résonance noire.

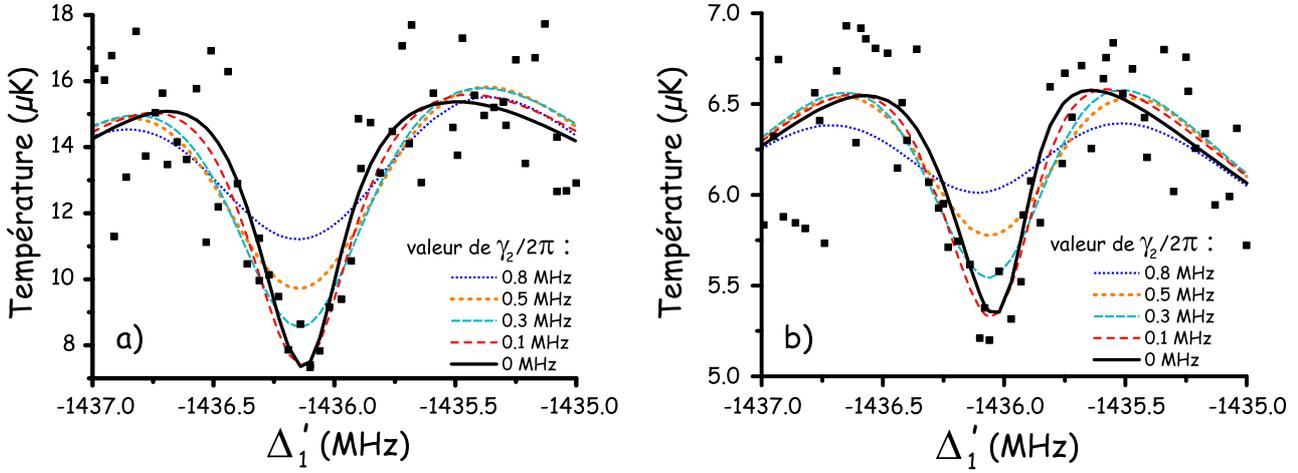


FIGURE 7.2 – Agrandissement d'une résonance noire avec des ajustements obtenus par l'équation (7.2) pour des valeurs différentes de $\gamma_2/2\pi$. La courbe théorique pour $\gamma_2/2\pi = 0.8$ MHz a un minimum bien supérieur à celui des points expérimentaux et est donc à rejeter. De 0.5 à 0.1 MHz, les courbes ajustent correctement les points expérimentaux. Dans le cas de $\gamma_2/2\pi = 0$ MHz, la courbe est presque superposée à celle où $\gamma_2/2\pi = 0.1$ MHz. Il est donc impossible de discriminer entre 0.1 et 0 MHz. Les deux figures sont prises dans des conditions expérimentales différentes (pour I_2 et τ_{PA}), afin de montrer que le moyennage sur les énergies de collision donne le même résultat quelles qu'elles soient.

a - $P_1 = 10 \mu\text{W}$, $P_2 = 5 \mu\text{W}$, $\tau_{PA} = 2000 \mu\text{s}$

b - $P_1 = 10 \mu\text{W}$, $P_2 = 3 \mu\text{W}$, $\tau_{PA} = 200 \mu\text{s}$

On utilise donc des agrandissements des résonances noires que l'on va ajuster grâce à une simulation faite sous *Fortran*. Sur la figure 7.2, deux agrandissements sont présentés, pris dans des conditions expérimentales différentes; les intensités du deuxième photon sont les plus faibles possibles de façon à garder la résonance noire visible (en-dessous de $2 \mu\text{W}$, la résonance noire ne se détache plus du bruit). Des ajustements tenant compte du moyennage sur les énergies de collision sont tracés sur la figure 7.2 pour différentes valeurs de $\gamma_2/2\pi$ entre 0.8 et 0 MHz. Pour une valeur de $\gamma_2/2\pi = 0.8$ MHz, l'ajustement n'est pas correct, les points expérimentaux au minimum de la résonance noire étant bien en-dessous d'ajustement. Pour $\gamma_2/2\pi < 0.5$ MHz, tous les ajustements semblent compatibles avec les points expérimentaux.

Il n'est donc pas possible de rejeter une valeur de $\gamma_2/2\pi$ petite voire extrêmement faible (c'est à dire < 0.1 MHz) qui ne serait alors pas mesurable avec la précision de notre expérience. Nos spectres sont en effet trop bruités et les élargissements dus à la température et aux intensités des lasers sont de l'ordre de 0.1 MHz, ce qui montre la difficulté de mesurer une valeur inférieure à 0.1 MHz. La mesure de γ_2 avec les résonances noires ne nous permet donc de déduire qu'une borne inférieure de $\gamma_2/2\pi < 0.5$ MHz, ce qui nous donne une durée de vie $\tau_{v=14}$ de la molécule dans le dernier état lié du potentiel ${}^5\Sigma_g^+$ de $\tau_{v=14} > 0.3 \mu\text{s}$.

Afin de mettre en évidence l'importance du moyennage sur les énergies de collision, la figure 7.3 montre les mêmes points expérimentaux que la figure 7.2-a, mais ajustés sans le moyennage, avec l'équation (5.1). On obtient un résultat assez différent : si la borne supérieure ne change pas ($\gamma_2/2\pi = 0.5$ MHz), on peut clairement exclure le cas $\gamma_2/2\pi = 0$ MHz, l'ajustement étant trop étroit avec une résonance noire qui tombe plus bas que l'expérience. On a donc une borne inférieure ($\gamma_2/2\pi = 0.2$ MHz), ce qui n'est pas le cas si on tient compte du moyennage. Cette figure illustre le fait que l'on est dans un cas critique, où le moyennage sur les énergies de collision doit être inclu dans l'ajustement de nos

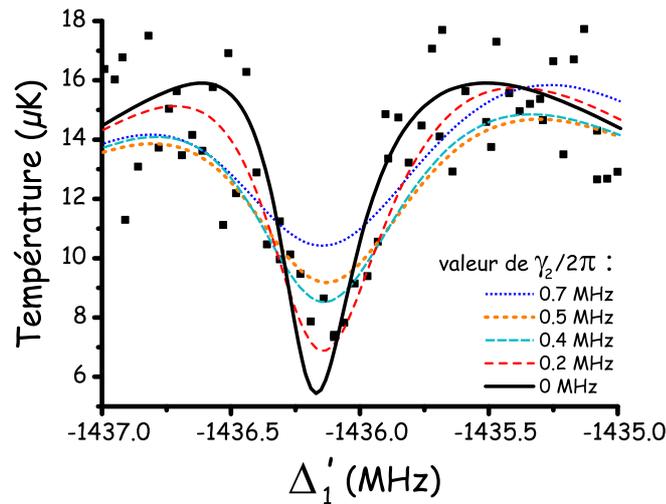


FIGURE 7.3 – Grandissement de la même résonance noire que celle de la figure 7.2-a précédente, avec des ajustements obtenus par l'équation (5.1) pour des valeurs différentes de $\gamma_2/2\pi$ sans le moyennage sur les énergies de collisions. La courbe pour $\gamma_2/2\pi = 0.7$ MHz a un minimum supérieur à celui des points expérimentaux et est donc à rejeter. De 0.5 à 0.2 MHz, les courbes ajustent correctement les points expérimentaux. Dans le cas de $\gamma_2 = 0$ MHz, le minimum de la courbe tombe beaucoup plus bas que les points expérimentaux et est plus étroite, elle ne correspond donc pas à l'expérience. Sans moyennage sur les énergies de collision, on a donc $0.2 < \gamma_2/2\pi < 0.5$ MHz.

($P_1 = 10 \mu\text{W}$, $P_2 = 5 \mu\text{W}$, $\tau_{\text{PA}} = 2000 \mu\text{s}$)

données, sous peine d'exclure des durées de vie plus grandes que $1 \mu\text{s}$.

Comme l'étude de la largeur de la résonance noire ne nous donne qu'une borne inférieure sur la durée de vie de la molécule dans l'état $v = 14$, nous avons repris la même étude, mais cette fois en étudiant les profils Raman.

7.2 Détermination de la durée de vie $\frac{1}{\gamma_2}$

On a vu dans la partie 7.1 que les signaux de résonances noires dans la configuration Autler-Townes ne suffisaient pas à avoir une estimation de la largeur γ_2 du dernier niveau lié $v = 14$ du potentiel $^5\Sigma_g^+$. Nous ne pouvons obtenir au mieux qu'une limite maximum de $\gamma_2/2\pi = 0.5$ MHz. Le but de cette partie est d'utiliser les signaux avec le profil Raman pour essayer d'en déduire une limite inférieure. Nous avons donc mesuré la largeur du pic Raman, qui est liée à la largeur γ_2 du niveau $v = 14$. Il faut aussi rappeler que, comme expliqué au début de la partie 7.1.2, le pic Raman n'est pas ajusté par l'équation (7.2), puisque l'on n'a pas de spectre complet avec le pic Raman et la raie correspondante à $v = 0$ simultanément. On ne peut donc pas déduire γ_2 d'un ajustement, c'est pour cette raison que l'on mesure la largeur à mi-hauteur du pic Raman, notée FWHM dans la suite (Full Width at Half Maximum) que l'on peut relier à γ_2 (voir la partie 7.2.3).

La largeur mesurée γ_2 dépend de plusieurs contributions. Tout d'abord, celle de la durée de vie intrinsèque $\tau_{v=14}^0$ de la molécule en dehors de toute influence extérieure, qui est liée à la largeur naturelle γ_2^0 du pic Raman. Cette durée de vie intrinsèque est due à l'auto-ionisation Penning entre les deux atomes d'hélium métastable formant la molécule. Ensuite, un effet dû aux collisions inélastiques entre la molécule et les atomes environnants peut diminuer la durée de vie $\tau_{v=14}$ de la molécule dans le nuage, augmentant ainsi la largeur mesurée γ_2 en fonction de la densité atomique du nuage. Enfin, des élargissements radiatifs et dus à l'énergie de collision du nuage peuvent encore augmenter cette largeur mesurée. Il faut donc étudier l'influence des différents effets susceptibles d'augmenter la largeur γ_2 du

pic Raman pour en déduire sa largeur naturelle γ_2^0 et donc sa durée de vie intrinsèque $\tau_{v=14}^0$.

7.2.1 Influences des intensités laser et du temps de photoassociation

Une des sources les plus importantes d'élargissement est l'intensité des lasers de PA L_1 et L_2 . Un des moyens de limiter ces élargissements est de jouer sur le temps de photoassociation τ_{PA} . En effet, τ_{PA} est adapté aux intensités afin de conserver approximativement la même amplitude de signal du pic Raman. Aucun élargissement du pic Raman n'est visible lorsque l'on fait varier τ_{PA} de $50 \mu\text{s}$ à 1 ms pour une intensité fixe des deux lasers, comme on peut le voir sur la figure 7.4. Pour un signal d'amplitude donnée, ceci nous permet de réduire les intensités en compensant par un long temps de photoassociation. Bien qu'ayant limité ainsi les élargissements dus aux intensités, nous devons nous assurer qu'ils sont suffisamment faibles pour ne pas fausser les mesures de largeur du pic Raman.

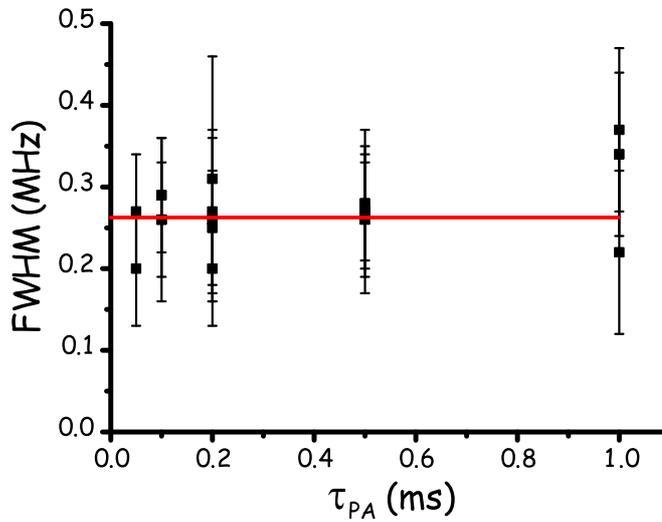


FIGURE 7.4 – Influence du temps de PA τ_{PA} sur la largeur du pic Raman pour une intensité constante des deux lasers. On a fait varier τ_{PA} de $50 \mu\text{s}$ à 1 ms sans observer le moindre changement de la largeur du pic Raman. Un ajustement avec une constante donne une valeur de la largeur de $0.26 \pm 0.11 \text{ MHz}$. ($P_1 = 500 \mu\text{W}$, $P_2 = 50 \mu\text{W}$, $\Delta_1 - \Delta_2 = -20 \text{ MHz}$, $T = 4 \mu\text{K}$)

Vérifier que les intensités des deux lasers de PA n'induisent qu'un élargissement négligeable est d'autant plus important qu'il est nécessaire d'utiliser des intensités relativement fortes pour que le signal Raman soit visible à cause du désaccord employé (-20 MHz), comparées aux intensités 5 à 250 fois plus petites utilisées pour la résonance noire dans la configuration à résonance du doublet Autler-Townes de la figure 5.4-b. En effet, plus le désaccord du deuxième photon avec la transition lié-lié $v = 0 \rightarrow v = 14$ est important, plus il faut utiliser une forte puissance laser. Mais, selon la théorie, l'élargissement pour une intensité donnée est d'autant plus faible que le désaccord est grand, comme on peut le voir sur la figure 7.5 (ce qui est la première conclusion de cette figure). Il y a donc deux effets qui se compensent, l'intensité augmente l'élargissement, le désaccord le diminue. Il faut alors trouver un juste milieu qui permette d'avoir un **désaccord suffisamment important** pour limiter l'influence de l'élargissement produit par les **intensités nécessairement élevées** pour visualiser le pic Raman. C'est pour cette raison que nous avons fait toutes les expériences de profil Raman avec un désaccord de -20 MHz , à partir duquel l'élargissement ne diminue plus, comme on le voit sur la figure 7.5.

Pour ce désaccord de -20 MHz , regardons l'influence de l'intensité I_1 du premier photon sur le pic Raman. Tout d'abord, vérifions ce que donne la théorie. Il nous faut une estimation du taux de transition Γ du premier photon afin de voir si la théorie prévoit ou non une influence de Γ sur la largeur. On a vu

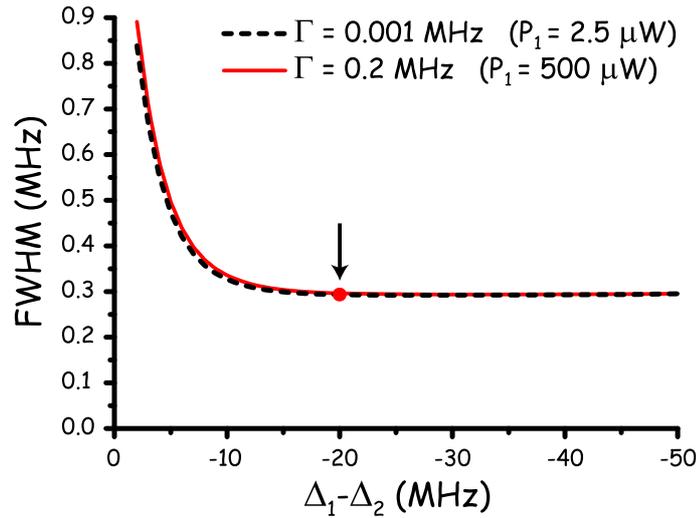


FIGURE 7.5 – Évolution de la largeur du pic Raman en fonction du désaccord Raman $\Delta_1 - \Delta_2$ pour deux intensités différentes du premier photon : $\Gamma = 0.2$ MHz en rouge (soit une puissance de $P_1 = 500 \mu\text{W}$, correspondant à celle utilisée expérimentalement pour un désaccord de $\Delta_1 - \Delta_2 = -20$ MHz) et $\Gamma = 0.001$ MHz en pointillé noir. Ces largeurs sont théoriques et obtenues à partir de l'équation (5.1) pour les paramètres suivants : $E = 0.1$ MHz, $\Gamma = 0.2$ ou 0.001 MHz, $\Omega = 1.71$ MHz (déduit de I_2 d'après la calibration de la partie 7.1.1), $\gamma_1/2\pi = 2.7$ MHz, et $\gamma_2/2\pi = 0.2$ MHz. Deux conclusions peuvent être tirées de cette figure :

Pour le désaccord : L'élargissement de la raie Raman dû à l'intensité I_2 dépend très fortement du désaccord $\Delta_1 - \Delta_2$. Pour limiter cet effet, tous les spectres de PA ont été pris avec un désaccord de -20 MHz, valeur pour laquelle l'élargissement est minimal et vaut, d'après ces courbes théoriques, 0.29 MHz, (repéré par une flèche).

Pour I_1 : On peut voir que deux valeurs différentes de son taux de transition Γ (0.2 et 0.001 MHz) ne modifient pas la largeur du pic Raman. Bien que l'on utilise des intensités jusqu'à 4000 fois supérieures à I_{sat} , intensités nécessaires à l'observation d'un signal Raman avec un désaccord de -20 MHz, I_1 n'élargit pas la raie Raman.

dans la partie 4.1 que pour l'intensité de saturation $I_{sat} = 0.17 \text{ mW.cm}^{-2}$, on avait $\Gamma \approx 53$ Hz. Ce qui correspond, d'après notre calibration de l'intensité, à $\Gamma \approx 0.004$ MHz ($P_1 = 10 \mu\text{W}$) pour les signaux de résonances noires et à $\Gamma \approx 0.2$ MHz ($P_1 = 500 \text{ mW}$) pour les signaux Raman. Le taux de transition Γ a donc le même ordre de grandeur que la largeur que l'on mesure. Mais il n'y a tout de même aucune influence de Γ sur la largeur comme le montre la figure 7.5 où deux courbes correspondant à $\Gamma = 0.2$ et 0.001 MHz sont presque superposées et donnent la même largeur à un désaccord de $\Delta_1 - \Delta_2 = -20$ MHz (ce qui est la seconde conclusion de cette figure). L'intensité I_1 n'élargit donc pas le profil Raman d'après la théorie.

Mais il faut en avoir la confirmation expérimentale. Nous avons pris (figure 7.6) deux spectres du pic Raman à un désaccord de $\Delta_1 - \Delta_2 = +10$ MHz, pour des intensités I_1 différentes ($P_1 = 200$ et $500 \mu\text{W}$, figure 7.6-a et -b respectivement). Les ajustements³ de ces deux figures utilisent les mêmes paramètres de l'équation (5.1) (à une amplitude et un décalage sur l'axe des ordonnées près), ce qui montre que le pic Raman a la même largeur dans les deux cas, les ajustements reproduisant de façon satisfaisante le profil des pics. Afin de mieux s'en persuader, les deux précédentes figures sont représentées sur la figure 7.6-c avec les mêmes amplitude et décalage. Les ajustements sont alors superposés. On peut constater que les points expérimentaux reproduisent un seul et même pic, et qu'aucune différence de largeur n'est visible. Or, le rapport des intensités I_1 des figures 7.6-a et -b étant de 2.5 , le rapport des taux de transition Γ est lui aussi de 2.5 entre ces deux figures. Comme rien n'est visible sur la figure 7.6-c, on peut conclure que

³Ici, on ajuste les pics Raman dans le seul but de guider l'oeil. Plusieurs paramètres sont laissés libres (γ_1 , γ_2 , Δ_1 , Δ_2) car il manque la raie $\nu = 0$ sur les spectres qui permettrait d'avoir γ_2 , Δ_1 et Δ_2 . Aucune valeur de γ_2 n'est donc déduite de ces ajustements.

l'intensité I_1 ne produit aucun élargissement mesurable. Et ceci est d'autant plus vrai que la figure 7.6 a été faite pour un désaccord de seulement $+10$ MHz, alors que toutes nos mesures de γ_2 sont réalisées pour -20 MHz : en effet, d'après la figure 7.5, la largeur pour un désaccord de -20 MHz est plus petite que celle pour un désaccord de $+10$ MHz (ou de -10 MHz sur la figure 7.5), ce qui signifie qu'avec un désaccord de -20 MHz l'élargissement radiatif dû à I_1 est encore plus faible qu'à $+10$ MHz où il est négligeable.

On peut donc conclure que, malgré la forte intensité I_1 du premier photon, aucun élargissement de la largeur du pic Raman n'a été observé expérimentalement ou n'est pas négligeable d'après la théorie. Regardons maintenant l'influence de l'intensité I_2 du second photon sur le pic Raman.

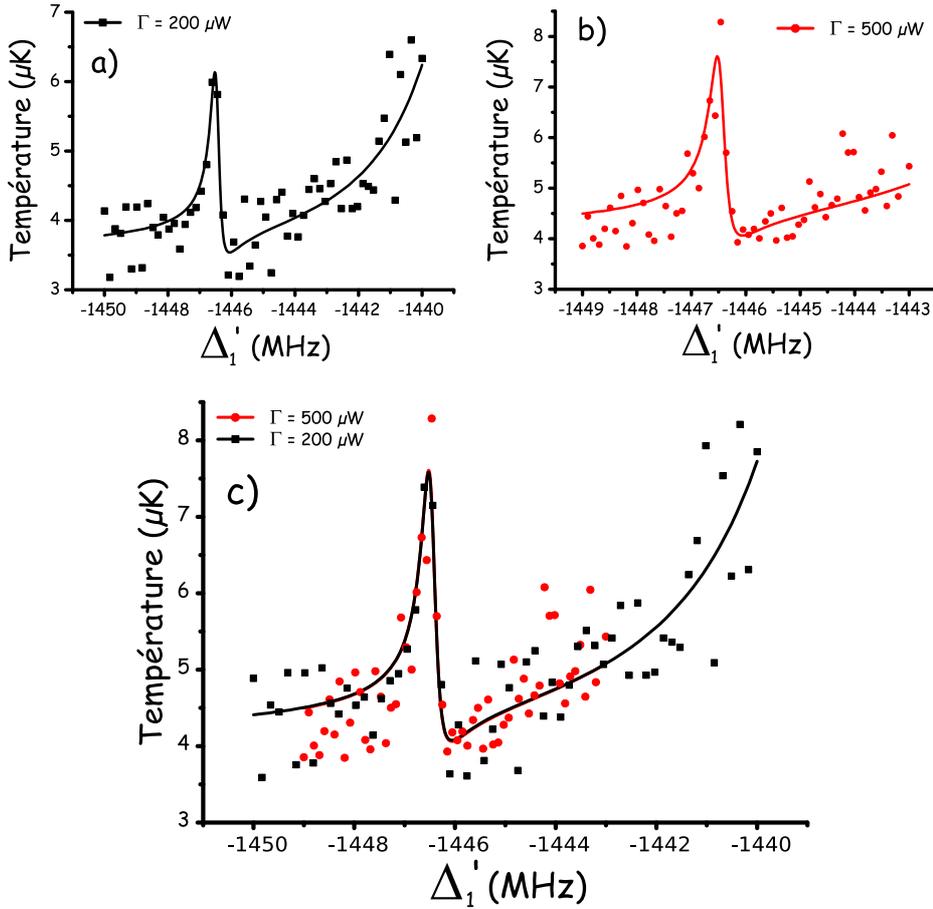


FIGURE 7.6 – Influence de l'intensité I_1 du premier photon (avec un taux de transition Γ) sur deux spectres du pic Raman pour un désaccord de $\Delta_1 - \Delta_2 = +10$ MHz.

a - Signal Raman pour $P_1 = 200 \mu\text{W}$ avec son ajustement (en trait plein) obtenu à partir de l'équation (5.1).

($P_1 = 200 \mu\text{W}$, $P_2 = 50 \mu\text{W}$, $\tau_{\text{PA}} = 100 \mu\text{s}$, $\Delta_1 - \Delta_2 = +10$ MHz)

b - Signal Raman pour $P_1 = 500 \mu\text{W}$ avec son ajustement en trait plein. Cet ajustement est le même que la figure-a, c'est à dire que les paramètres introduits dans l'équation (5.1) sont les mêmes, seuls une amplitude et un décalage sur l'axe des températures sont différents entre les deux ajustements.

($P_1 = 500 \mu\text{W}$, $P_2 = 50 \mu\text{W}$, $\tau_{\text{PA}} = 100 \mu\text{s}$, $\Delta_1 - \Delta_2 = +10$ MHz)

c - Les figures-a et -b sont représentées en même temps, en modifiant la figure-a de la manière suivante : l'ajustement et les points expérimentaux sont déplacés en utilisant l'amplitude et le décalage de l'ajustement de la figure-b. Ainsi, les ajustements se recouvrent exactement. Le but de cette figure est de montrer que les pics Raman des figures-a et -b ont la même largeur, et ce indépendamment de l'intensité I_1 .

Si I_1 n'induit aucun élargissement mesurable, ce n'est pas le cas de I_2 , comme on peut le voir sur la figure 7.7 où des puissances entre $P_2 = 50 \mu\text{W}$ et 1 mW ont été utilisées. Pour ces puissances,

l'élargissement est linéaire en intensité et donne, à l'aide d'un ajustement linéaire, une extrapolation à intensité I_2 nulle de 0.28 ± 0.05 MHz. Mais cette largeur pour une intensité nulle reflète d'autres sources d'élargissement, en particulier par la température et éventuellement par les collisions inélastiques atome-molécules. Nous allons donc faire la même étude des largeurs en fonction de la température et de la densité et se placer à la plus petite intensité I_2 ($P_2 = 50 \mu\text{W}$) compatible avec l'observation des signaux, afin de minimiser l'élargissement dû à l'intensité I_2 du deuxième photon.

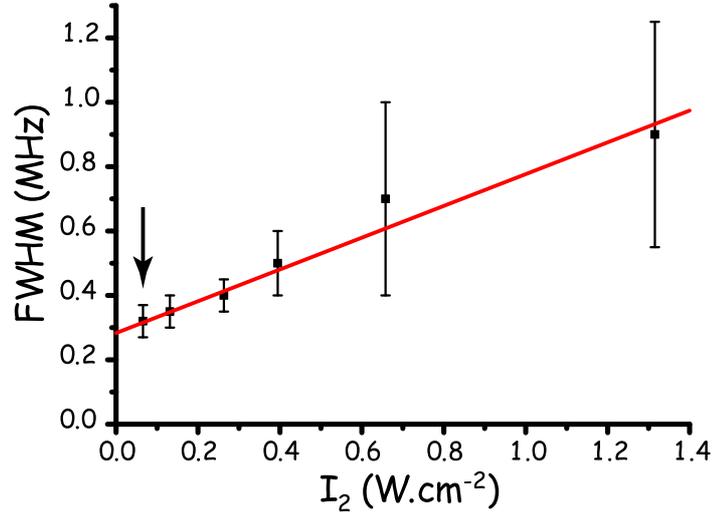


FIGURE 7.7 – Influence de l'intensité du second photon (de pulsation de Rabi Ω) sur la largeur du pic Raman. En fonction de I_2 , le temps de photoassociation τ_{PA} est modifié entre 10 et 200 μs afin de conserver une amplitude du pic Raman constante pour chaque spectre. La flèche indique le point correspondant à l'intensité I_2 utilisée pour toutes les autres figures ($P_2 = 50 \mu\text{W}$).

($P_1 = 500 \mu\text{W}$, $\Delta_1 - \Delta_2 = -20$ MHz, $n(\vec{0}) = 1.4 \times 10^{13}$ at. $\cdot\text{cm}^{-3}$, $T = 4 \mu\text{K}$)

7.2.2 Influence de la température

La plus importante contribution à l'élargissement du pic Raman vient de la température. On a vu dans le cas de la résonance noire avec le doublet Autler-Townes que la température modifiait la largeur du pic de résonance noire. Il est donc nécessaire de vérifier son influence sur les pics Raman. Pour cela, on fait varier la température T entre 2 et 14 μK et on mesure la largeur du pic Raman associé pour l'intensité du deuxième photon la plus petite possible ($P_2 = 50 \mu\text{W}$), et une densité maximale de $n(\vec{0}) = 1.4 \times 10^{13}$ at. $\cdot\text{cm}^{-3}$. On modifie T de la même manière que dans la partie 6.1, où l'on changeait la fréquence de fin de rampe d'évaporation en se servant de la calibration présentée dans la partie 1.3.3. Les résultats sont représentés sur la figure 7.8 pour une puissance minimale de $P_2 = 50 \mu\text{W}$. Un ajustement linéaire donne une largeur de 0.2 ± 0.1 MHz extrapolée à $T = 0 \mu\text{K}$, la barre d'erreur étant déduite graphiquement comme expliqué dans la légende de la figure 7.8. Afin de vérifier la compatibilité de cette extrapolation à température nulle avec celle sur l'intensité I_2 , il faut remarquer que, pour une température de $T = 4 \mu\text{K}$, nous avons sur la figure 7.8 une largeur de 0.28 ± 0.08 MHz (voir le point repéré par la flèche sur la figure 7.8), ce qui est bien compatible avec la valeur de 0.32 ± 0.05 MHz obtenue pour une puissance de $P_2 = 50 \mu\text{W}$ sur la figure 7.7. On peut aussi évaluer l'élargissement dû à la température moyenne du nuage pour la température habituellement utilisée ($T = 4 \mu\text{K}$), soit un élargissement de 0.08 MHz, comme attendu (car $k_B T = 0.08$ MHz).

On peut donc conclure de cette partie que l'élargissement dû à la température T du nuage atomique doit être inclus dans notre étude. On obtient finalement une valeur de la largeur du pic Raman de

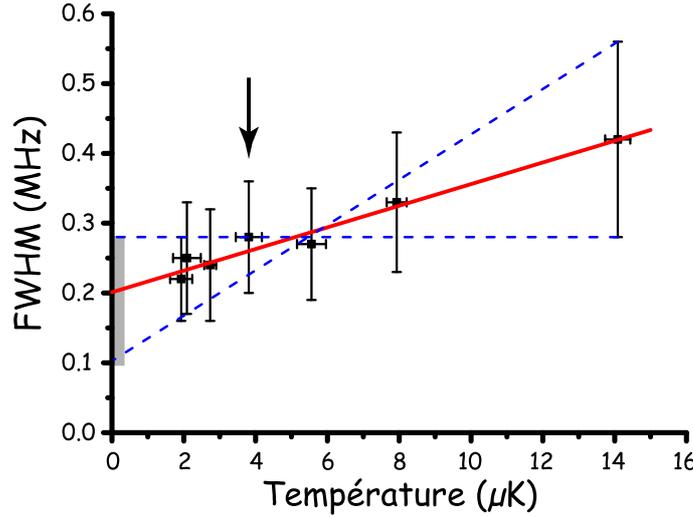


FIGURE 7.8 – Influence de la température sur la largeur du pic Raman. La variation de la largeur est linéaire et un ajustement donne à température nulle une largeur du pic Raman de 0.2 ± 0.05 MHz. Les deux lignes en pointillé sont les deux droites de pentes la plus faible et la plus forte passant par toutes les barres d'erreur des points expérimentaux. Elles donnent, à température nulle, une largeur du pic Raman minimale (0.1 MHz) et maximale (2.8 MHz). La valeur finalement choisie pour la largeur du pic Raman est de 0.2 ± 0.1 MHz, dont la barre d'erreur prend en compte les extremas donnés par les deux droites en pointillé. La flèche indique le point correspondant à la température utilisée pour toutes les autres figures ($T = 4 \mu\text{K}$).

($P_1 = 500 \mu\text{W}$, $P_2 = 50 \mu\text{W}$, $\tau_{\text{PA}} = 500 \mu\text{s}$, $\Delta_1 - \Delta_2 = -20$ MHz, $n(\vec{0}) = 1.4 \times 10^{13} \text{ at.cm}^{-3}$)

0.2 ± 0.1 MHz. La partie suivante permet de relier cette largeur du pic Raman à la durée de vie de la molécule dans le nuage.

7.2.3 Lien entre la largeur du pic Raman et la durée de vie dans le nuage

Jusqu'ici, nous n'avons mesuré que les largeurs à mi-hauteur (FWHM) du pic Raman. Il nous faut maintenant relier théoriquement la mesure de cette largeur à la durée de vie dans le nuage, c'est à dire à $\frac{1}{\gamma_2}$. Pour cela, on utilise le profil théorique du pic Raman obtenu par l'équation (5.1) avec les paramètres expérimentaux habituels et on calcule la largeur du pic pour différentes valeurs de γ_2 . On obtient la figure 7.9. Ainsi, une largeur à mi-hauteur de 0.2 ± 0.1 MHz à température nulle donne $0.065 < \gamma_2/2\pi < 0.163$ MHz. On en déduit alors la durée de vie des molécules dans le nuage $\tau_{v=14} = \frac{1}{\gamma_2}$, qui est de $1.0 < \tau_{v=14} < 2.5 \mu\text{s}$.

Cette estimation ne donne pas encore la durée de vie intrinsèque $\tau_{v=14}^0$ de la molécule. Il faut d'abord tenir compte d'un effet éventuel des collisions inélastiques atomes-molécules, qui fait l'objet de la partie suivante.

7.2.4 Influence de la densité atomique sur la durée de vie de la molécule dans le nuage

Un effet de la densité atomique dû aux collisions inélastiques entre une molécule et les atomes du nuage peut limiter la durée de vie intrinsèque de la molécule, si elle est suffisamment longue, induisant un élargissement du pic Raman. Il faut donc déterminer l'importance d'un tel effet de densité.

Une précédente publication [WYNAR *et al.*, 2000] a étudié la spectroscopie Raman moléculaire dans un condensat de Rubidium. Les auteurs ont vu une dépendance de la forme de la raie Raman en fonction de la densité du condensat due à l'influence des interactions élastiques (effet de champ moyen) et inélastiques de la molécule avec les atomes ou les autres molécules environnant. Nous avons donc

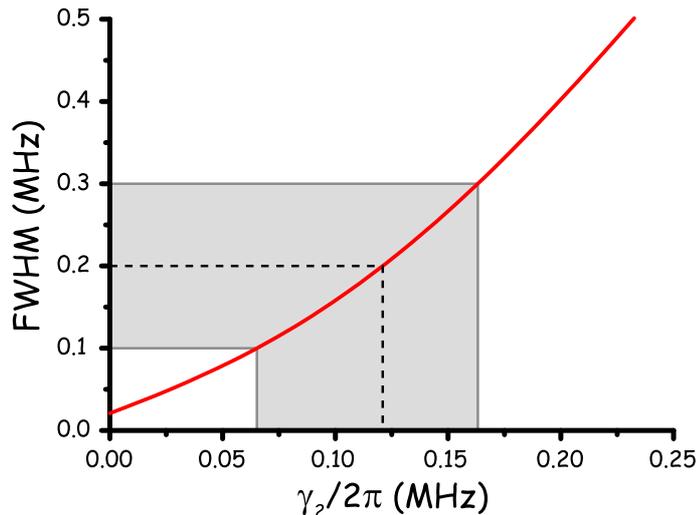


FIGURE 7.9 – Courbe théorique de la largeur à mi-hauteur (FWHM) du pic Raman en fonction de la largeur γ_2 du dernier état lié $v = 14$ du potentiel ${}^5\Sigma_g^+$. Cette courbe est obtenue à l’aide de l’équation (5.1) qui, en fonction de γ_2 , nous permet d’obtenir le profil Raman, et donc sa largeur à mi-hauteur. Celle-ci est de 0.2 ± 0.1 MHz à température nulle d’après la partie 7.2.2, ce qui donne $0.065 < \gamma_2/2\pi < 0.163$ MHz (zone grisée), soit une durée de vie dans le nuage de $\tau_{v=14}$ de $1.0 < \tau_{v=14} < 2.5$ μ s.

voulu vérifier si un effet dû à l’interaction inélastique atomes-molécules est présent dans nos expériences (l’énergie de champ moyen est négligeable devant les largeurs observées dans notre expérience et vaut 4.6 kHz pour notre densité). Pour cela, nous avons fait varier la densité au centre du nuage entre 0.55 et 1.45×10^{13} atomes/cm³ pour une intensité du deuxième photon la plus petite possible ($P_2 = 50$ μ W) et une température de $T = 4$ μ K. La plage de densité explorée n’est pas très importante car nous avons voulu conserver la même température du nuage pour toutes les densités afin de ne pas mélanger les différentes sources d’élargissement. On obtient alors les résultats présentés sur la figure 7.10. Cette figure est trop bruitée pour pouvoir conclure qu’il y a ou non une dépendance de la largeur en fonction de la densité d’atomes. On peut en effet ajuster par une droite horizontale les points de la figure 7.10, dans ce cas, il n’y aurait pas d’effet de densité, ou par une droite avec une pente positive de valeur $K_{inél}^{max}$ (trait en pointillé) dans le cas où l’effet de densité est maximal. La conséquence sur l’estimation de la durée de vie intrinsèque de la molécule est donc différente dans les deux cas :

Dans l’hypothèse où l’effet de densité est négligeable, ce qui est compatible avec la figure 7.10, une droite horizontale passant par tous les points, on peut en déduire la largeur naturelle, qui est alors celle mesurée en extrapolant la largeur du pic Raman à température nulle, soit 0.2 ± 0.1 MHz. La durée de vie intrinsèque est donc de $1.0 < \tau_{v=14}^0 < 2.5$ μ s, d’après la partie 7.2.3.

Dans l’hypothèse où il y a un effet de densité dû aux collisions inélastiques atomes-molécules, on peut obtenir à partir de la figure 7.10 une estimation maximale du taux correspondant $K_{inél}$: en supposant que les collisions inélastiques élargissent le pic Raman, la durée de vie dépend de $K_{inél}$ et la largeur de raie γ_2 mesurée peut s’écrire $\gamma_2 = \gamma_2^0 + K_{inél} n(\vec{0})$ où γ_2^0 est la largeur naturelle et $n(\vec{0})$ la densité d’atomes au centre du nuage. On a donc tracé sur la figure 7.10 la droite (en pointillé) de plus forte pente passant par toutes les barres d’erreur des points expérimentaux. La pente donne une valeur maximale du taux de collisions inélastiques de $K_{inél}^{max} = 1.2 \times 10^{-8}$ cm³/s comparable au taux à la limite unitaire⁴ qui est de $K_{inél}^u = 1.27 \times 10^{-8}$ cm³/s. Ainsi, en considérant

⁴Le taux de collisions inélastiques atomes-molécules à la limite unitaire $K_{inél}^u$ est obtenu en supposant que, s’il y a une collision entre une molécule et un atome du nuage environnant, elle a une probabilité de 1 de se faire de manière inélastique.

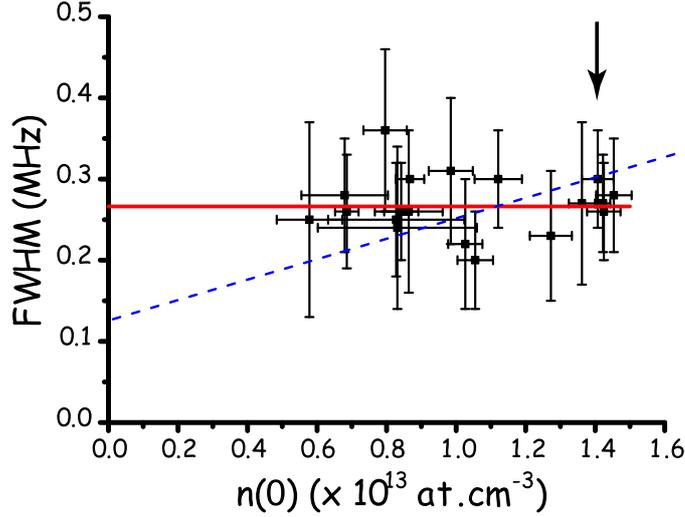


FIGURE 7.10 – Largeur du pic Raman en fonction de la densité au centre $n(\vec{0})$ du nuage pour une température constante ($T = 4 \mu\text{K}$). Un ajustement par une constante donne une largeur de 0.27 ± 0.12 MHz, compatible avec toutes les précédentes mesures. La droite en pointillé est la droite de plus grande pente passant par toutes les barres d'erreur. La densité maximale est de $n(\vec{0}) = 1.4 \times 10^{13}$ at.cm $^{-3}$ et est celle utilisée pour toutes les autres figures. La flèche indique le point correspondant à la densité utilisée pour toutes les autres figures ($n(\vec{0}) = 1.4 \times 10^{13}$ at.cm $^{-3}$). ($P_1 = 500 \mu\text{W}$, $P_2 = 50 \mu\text{W}$, $\tau_{\text{PA}} = 500 \mu\text{s}$, $\Delta_1 - \Delta_2 = -20$ MHz, $T = 4 \mu\text{K}$)

comme maximal l'effet de densité, on a un résultat compatible avec celui que l'on aurait eu en prenant le taux de collision à la limite unitaire $K_{inél}^u$. On trouve une largeur de raie de 0.13 MHz en extrapolant la droite en pointillé à densité nulle. Il faut préciser que cette largeur ne correspond pas à la durée de vie intrinsèque $\tau_{v=14}^0$, car il y a un élargissement d'environ 0.08 MHz dû à la température utilisée ($T = 4 \mu\text{K}$) pour la figure 7.10, d'après la partie 7.2.2. Par conséquent, la mesure de la largeur à densité nulle (0.13 MHz) peut être due exclusivement à un élargissement en température. Il est donc impossible de donner une borne inférieure sur la largeur naturelle du pic Raman, qui peut être nulle, si l'on suppose que l'effet des collisions inélastiques atomes-molécules est maximal.

7.2.5 Conclusion sur la durée de vie intrinsèque $\tau_{v=14}$ d'une molécule dans l'état $v = 14$

Nous avons vu dans la partie 7.1 que le signal de résonance noire atomes-molécules dans la configuration de doublet Autler-Townes à très faible intensité (voir figure 5.4-b) ne nous permet d'obtenir qu'une borne inférieure sur la durée de vie de molécules dans le dernier état $v = 14$ du potentiel ${}^5\Sigma_g^+$. On est en effet limité par le moyennage sur les énergies de collision du nuage atomique. On ne peut avoir dans ce cas qu'une borne inférieure sur la durée de vie, qui est de $\tau_{v=14} > 0.3 \mu\text{s}$.

Nous nous sommes alors tournés vers la mesure de la largeur du pic Raman dans la partie 7.2. Les difficultés sont nombreuses, car nous avons toujours l'influence de la température, mais aussi celle

On a dans ce cas :

$$K_{inél}^u = \frac{k_B T}{h \left(\frac{2\pi \mu' k_B T}{h^2} \right)^{3/2}}, \quad (7.3)$$

avec $\mu' = 2m/3$ la masse réduite de la molécule et d'un atome. Pour une température de $T = 4 \mu\text{K}$, le taux de collisions inélastique unitaire vaut $K_{inél}^u = 1.27 \times 10^{-8}$ cm 3 /s. On obtient l'équation (7.3) à partir de la partie 4.1. En effet, le taux de PA unitaire K_u de la formule (4.6) s'écrit de la même manière (seule la masse réduite $\mu = m/2$ est différente) car on considèrerait que deux atomes ont une probabilité de 1 de photoassocier s'ils collisionnent. Ici, on fait le même raisonnement pour obtenir $K_{inél}^u$, mais avec une molécule et un atome dans le cadre d'une collision inélastique qui détruit la molécule.

des intensités des deux lasers, du désaccord Raman et de la densité. L'étude de la largeur en fonction de l'intensité (partie 7.2.1) montre que, pour les intensités auxquelles sont observés les spectres ($P_2 = 50 \mu\text{W}$), l'élargissement radiatif est négligeable pour un désaccord Raman de -20 MHz . De l'étude de la largeur en fonction de la température T (partie 7.2.2) on déduit une largeur à température nulle de $0.2 \pm 0.1 \text{ MHz}$ (voir la figure 7.8). Néanmoins, un effet de densité dû aux collisions inélastiques atomes-molécules peut influencer cette largeur, mais nos mesures de la figure 7.10 ne permettent pas de déterminer clairement si il y a ou non un tel effet. On peut donc avoir une estimation de la durée de vie dans les deux cas suivants :

Si l'on considère que l'effet de densité est négligeable, on déduit de la largeur du pic Raman de $0.2 \pm 0.1 \text{ MHz}$ obtenue en extrapolant à température nulle (voir figure 7.8) une durée de vie intrinsèque de $1.0 < \tau_{v=14}^0 < 2.5 \mu\text{s}$.

Si l'on considère que l'effet de densité est maximal, l'extrapolation à densité nulle permet de déduire une largeur du pic Raman de 0.13 MHz pour une température de $T = 4 \mu\text{K}$. Pour une telle température, l'élargissement en température est de 0.08 MHz . La largeur de 0.13 MHz peut donc être due exclusivement à l'élargissement en température, et non uniquement à la durée de vie intrinsèque γ_2^0 de la molécule dans l'état $v = 14$. Dans ce cas, on ne peut pas avoir une borne inférieure sur la largeur naturelle du pic Raman. On peut seulement conclure que la durée de vie intrinsèque est de $\tau_{v=14}^0 > 1.0 \mu\text{s}$.

Finalement, comme il est impossible de déterminer s'il y a un effet de densité dû aux collisions inélastiques atomes-molécules, il est plus prudent de ne proposer qu'une limite inférieure à la durée de vie intrinsèque des molécules $2^3S_1 - 2^3S_1$, qui est de $\tau_{v=14}^0 > 1.0 \mu\text{s}$.

Il faut ajouter que cette étude donne aussi une valeur maximale sur le taux de collisions inélastiques atomes-molécules de $K_{inél}^{max} = 1.2 \times 10^{-8} \text{ cm}^3/\text{s}$.

7.3 Comparaison avec différentes estimations de la durée de vie intrinsèque $\tau_{v=14}$ d'une molécule dans l'état $v = 14$

Dans cette partie, on compare les résultats expérimentaux avec deux estimations de la durée de vie intrinsèque d'une molécule dans l'état $v = 14$ due aux collisions inélastiques de type Penning entre les deux atomes composant la molécule. L'interaction spin-dipôle entre des atomes dans l'état 2^3S_1 couple l'état électronique correspondant de spin polarisé $|S, M_S\rangle = |2, 2\rangle$ aux états $|2, 1\rangle$, $|2, 0\rangle$, et $|0, 0\rangle$: les spins des deux atomes de la molécule se renversent sous l'effet de ce couplage. Comme les ionisations Penning et associative dans l'état singulet $^1\Sigma_g^+$ sont hautement probables, les deux atomes s'ionisent. Le couplage spin-dipôle induit donc une durée de vie finie de l'état $|2, 2\rangle$.

Une première estimation peut être obtenue à partir du taux de collisions inélastiques entre deux atomes d'hélium polarisés de spin donnée dans [FEDICHEV *et al.*, 1996] et qui est de $K_{inél}^{\text{He}^*} \approx 2.3 \times 10^{-14} \text{ cm}^3/\text{s}$ d'après la figure 2 de [FEDICHEV *et al.*, 1996]. On peut calculer la distance interatomique moyenne r_0 dans la molécule à partir de la fonction d'onde de $v = 14$ qui est alors d'environ $r_0 = 4 \text{ nm}$. On peut alors considérer que la paire d'atomes occupent un volume r_0^3 , et se désexcite avec un taux de $K_{inél}^{\text{He}^*}/r_0^3 \approx 0.36 \times 10^6 \text{ s}^{-1}$. On en déduit une durée de vie de la molécule dans $v = 14$ de $\tau_{v=14}^0 \approx 2.8 \mu\text{s}$. Un autre article [VENTURI *et al.*, 1999] donne un taux de collisions inélastiques légèrement différent ($K_{inél}^{\text{He}^*} \approx 1.5 \times 10^{-14} \text{ cm}^3/\text{s}$ d'après la figure 2), ce qui donne $\tau_{v=14}^0 \approx 4.3 \mu\text{s}$. Dans les deux cas, on a une estimation de la durée de vie du même ordre de grandeur.

Une deuxième estimation a été publiée récemment dans [BEAMS *et al.*, 2006]. L'interaction spin-dipôle est traitée comme une perturbation et la méthode utilisée est similaire à celle de [BEAMS *et al.*, 2004]. Pour le potentiel quintuplet $^5\Sigma_g^+$, les auteurs utilisent le potentiel de [PRZYBYTEK and JEZIORSKI, 2005] et, dans le but de modéliser l'ionisation Penning du potentiel singulet $^1\Sigma_g^+$, ils prennent un potentiel optique complexe ([GARRISON *et al.*, 1973] et [MÜLLER *et al.*, 1991]). Le couplage entre les potentiels singulet et quintuplet produit un déplacement lumineux complexe, dont la partie imaginaire donne la durée de vie de l'état $v = 14$. Ils trouvent alors une durée de vie intrinsèque de $\tau_{v=14}^0 \approx 150 \mu\text{s}$.

Les deux estimations de la durée de vie intrinsèque de $v = 14$ donnent des valeurs différentes d'un facteur d'environ 50, toutes deux compatibles avec notre expérience ($\tau_{v=14}^0 > 1.0 \mu\text{s}$), bien qu'elles se basent sur le même processus de désexcitation de la molécule, une ionisation Penning entre les deux atomes composant la molécule. Elles impliquent des conséquences différentes pour notre expérience :

- La première estimation donne une valeur de $\tau_{v=14}^0 \approx 3 \mu\text{s}$, proche de notre borne inférieure sur $\tau_{v=14}^0$. Ceci suggère que les collisions inélastiques atomes-molécules sont négligeables dans notre expérience.
- La deuxième estimation de [BEAMS *et al.*, 2006] donne une durée de vie plus longue (150 μs). La largeur du pic Raman correspondant est de 1 kHz, ce qui ne serait alors pas mesurable avec notre expérience. Ceci impliquerait que l'effet de densité est notable dans nos mesures, et que la largeur du pic Raman mesurée est entièrement due à un élargissement, ne permettant pas d'estimer la durée de vie intrinsèque de la molécule.

7.4 Conclusion

Dans ce chapitre, la durée de vie intrinsèque $\tau_{v=14}^0$ de l'état moléculaire $v = 14$, dernier niveau lié du potentiel $^5\Sigma_g^+$, a été mesurée par deux méthodes. La première consiste à ajuster les spectres de résonance noire afin d'en déduire la largeur $\gamma_2/2\pi$ du niveau $v = 14$. Il apparaît que le moyennage sur l'énergie de collision des atomes est responsable d'un élargissement de cette résonance, ce qui ne permet d'avoir qu'une borne supérieure sur la durée de vie de $\tau_{v=14}^0 > 0.3 \mu\text{s}$. La deuxième méthode est de mesurer la largeur à mi-hauteur des profils Raman, ces derniers ne pouvant être ajustés afin d'en déduire une mesure quantitative des paramètres d'ajustement. Mais l'observation de profils Raman nécessite d'utiliser de fortes intensités des lasers de PA, sources d'élargissements qui viennent se rajouter à celui dû au moyennage sur les énergies de collision. En reliant la largeur du profil Raman à la largeur γ_2 du niveau $v = 14$, on déduit une durée de vie de $1.0 < \tau_{v=14}^0 < 2.5 \mu\text{s}$. Cette valeur doit être considérée avec précaution, à cause des nombreuses difficultés intervenant dans sa détermination, en particulier celles dues à un effet de densité qui n'est pas facile à estimer : si l'on maximise l'élargissement dû à un tel effet, il n'est possible d'avoir qu'une borne inférieure pour la durée de vie intrinsèque, qui est alors de $\tau_{v=14}^0 > 1.0 \mu\text{s}$. La durée de vie ainsi obtenue peut être comparée aux différentes estimations théoriques qui sont compatibles avec notre expérience : une d'entre elles est un simple ordre de grandeur et donne une valeur d'environ 3 μs compatible avec un effet de densité négligeable ; une deuxième, qui a fait l'objet d'une publication [BEAMS *et al.*, 2006], donne une durée de vie de 150 μs qui impliquerait que les effets de densité sont prépondérants dans notre expérience.

Afin de mesurer plus précisément la durée de vie intrinsèque d'une molécule dans l'état $v = 14$, il faudrait reprendre nos expériences dans un condensat de Bose-Einstein. En particulier, utiliser un condensat réduira l'élargissement en température (comme c'est le cas de l'expérience menée dans [WYNAR *et al.*, 2000]). En effet, l'énergie cinétique moyenne dans un condensat sans interaction est de $(\hbar\omega_{\parallel} + 2\hbar\omega_{\perp})/4 \approx 0.4 \text{ kHz}$ (d'après [COHEN-TANNOUJDI, 1999], chap. 1) avec les caractéristiques de

notre piège magnétique (voir le tableau 1.1). Pour un condensat avec interaction, le terme d'énergie cinétique est encore plus faible (d'après [COHEN-TANNOUJDI, 1999], chap. 6). L'élargissement attendu est donc plus faible par trois ordres de grandeur que dans un nuage thermique à $T = 4 \mu\text{K}$, ce qui améliorera la future mesure de la durée de vie de la molécule et ce qui permettra de déterminer l'influence d'un effet de densité dû aux collisions inélastiques atomes-molécules.

Conclusion

L'étude quantitative des propriétés du gaz ultra-froid au voisinage de la condensation nécessite une connaissance des interactions de paires au sein du gaz ultra-froid, gouvernées par la longueur de diffusion en onde s , noté a . L'insuffisance de cette connaissance dans le cas de l'hélium métastable a engagé l'équipe sur la voie de la photoassociation qui donne accès à une spectroscopie des états moléculaires, la méthode *a priori* la mieux adaptée à l'étude précise de ces interactions. Après l'observation de dimères géants par Jérémie Léonard [LÉONARD, 2003], cette thèse a développé la méthode de PA en utilisant deux photons sur une transition en configuration Λ entre un état libre à deux atomes et deux états moléculaires. De plus, dans le cas de l'hélium métastable, l'ionisation Penning joue un rôle primordial, puisque l'observation de la condensation est conditionnée à leur inhibition par la polarisation des spins électroniques des atomes. Leur étude est nécessaire si on veut progresser dans les possibilités de contrôler les interactions, et la photoassociation est une méthode adaptée à cette étude.

Ce mémoire de thèse présente plusieurs résultats qui contribuent à la compréhension des interactions :

1. une nouvelle mesure de la longueur de diffusion de $a = 7.5105 \pm 0.0025$ nm, très précise au regard de toutes les valeurs obtenues antérieurement par différents groupes. Cette expérience a l'avantage d'utiliser la photoassociation à deux photons, qui est une méthode spectroscopique directe et 700 fois plus précise que les précédentes, voire en contradiction avec certaines. Cette expérience a aussi mise en évidence le phénomène de résonance noire atomes-molécules.
2. la production de molécules doublement métastables He_2 ($2^3S_1 + 2^3S_1$) dont la durée de vie dépend fortement de l'ionisation Penning résultant de la relaxation des spins. L'expérience montre qu'elle est supérieure à $0.3 \mu\text{s}$.

La mesure précise de a permet maintenant une confrontation précieuse de l'expérience avec les calculs des potentiels d'interaction entre deux atomes métastables. Elle est en excellent accord avec la détermination récente de [PRZYBYTEK and JEZIORSKI, 2005] qui est de $a = 7.64 \pm 0.20$ nm. Elle permet de mieux interpréter les résultats antérieurs de l'équipe sur l'obtention du mode hydrodynamique [LEDUC *et al.*, 2002], en particulier sur le taux de collisions Γ_{coll} à la température critique T_C , puisque une longueur de diffusion de $a \simeq 7.5$ nm donne $\Gamma_{coll} = 4.4 \times 10^3 \text{ s}^{-1}$ qui est très proche de la valeur mesurée de $\Gamma_{coll} = 3.5 \times 10^3 \text{ s}^{-1}$, soit 20 % de différence entre l'expérience et la théorie au lieu d'un facteur 10 si on prend $a = 16$ nm comme dans [LEDUC *et al.*, 2002]. La détermination des interactions entre atomes He^* sera utile pour interpréter les études impliquant le condensat de l'hélium, en particulier celle sur la transition superfluide-isolant de Mott entreprise par l'équipe actuelle au LKB. Elle est également importante pour prédire les propriétés des mélanges, en particulier la démixion des phases ^3He - ^4He qui suppose une valeur de a inférieure à 10 nm.

Pour ce qui est de la mesure de la durée de vie de la molécule doublement excitée, notre première estimation devra être précisée par des mesures supplémentaires faisant appel à la détection des ions résultant des collisions inélastiques. Elles seront reprises à plus basse température dans le condensat pour supprimer les élargissement de température. La valeur ainsi trouvée pour la durée de vie τ pourra

être confrontée à celle de [BEAMS *et al.*, 2006] ($\tau \approx 150 \mu\text{s}$) relative à l'auto-ionisation due au couplage spin-dipôle entre les potentiels d'interaction $^5\Sigma_g^+$ et $^1\Sigma_g^+$ responsable de la forte probabilité d'avoir les processus Penning et d'ionisation associative.

Les différents articles écrit au cours de cette thèse sont, par ordre d'écriture (et de publication) :

1. "Photoassociation experiments with ultracold metastable helium",
J. Kim, U. D. Rapol, S. Moal, J. Léonard, M. Walhout, et M. Leduc,
Eur. Phys. J. D **31**, 227 (2004).
2. "Observation of the photoassociation resonance of ultracold metastable He dimers by mechanical Effects",
J. Kim, S. Moal, M. Portier, et M. Leduc,
Las. Phys. **15**, 1075 (2005).
3. "Frequency shifts of photoassociative spectra of ultracold metastable helium atoms : A new measurement of the s -wave scattering length",
J. Kim, S. Moal, M. Portier, J. Dugué, M. Leduc, et C. Cohen-Tannoudji,
Europhys. Lett. **72**, 548 (2005).
4. "Accurate determination of the scattering length of metastable helium atoms using dark resonances between atoms and exotic molecules",
S. Moal, M. Portier, J. Kim, J. Dugué, U. D. Rapol, M. Leduc, et C. Cohen-Tannoudji,
Phys. Rev. Lett. **96**, 023203 (2006).
5. "Analysis of light-induced frequency shifts in the photoassociation of ultracold metastable helium atoms",
M. Portier, S. Moal, J. Kim, M. Leduc, C. Cohen-Tannoudji, et O. Dulieu,
accepté pour *the special issue on Cold Molecules of J. Phys. B* (2006).
6. "Exotic molecules of two metastable helium atoms produced by 2-photon photoassociation",
S. Moal, M. Portier, N. Zahzam, M. Leduc et C. Cohen-Tannoudji,
en préparation pour *Eur. Phys. J. D*.
7. "Photo-mechanical effect in ultracold metastable helium : a new measurement of the s -wave scattering length",
S. Moal, M. Portier, J. Kim, et M. Leduc,
en préparation pour *Phys. Rev. A, rapid communication*.

Annexe A

Un effet Raman atomique

Nous allons aborder un autre effet observé avec la photoassociation à deux photons et qui a été découvert lorsque l'on cherchait la position du dernier état lié du potentiel ${}^5\Sigma_g^+$ par effet Raman.

A.1 Principe de l'effet Raman atomique

Nous avons effectivement observé un effet Raman, mais entre atomes. Le principe est le suivant (voir la partie droite de la figure A.1) : les atomes piégés sont dans l'état 2^3S_1 et comme ils sont polarisés de spin, ils n'occupent que le sous-état Zeeman $m = +1$. Par la présence du champ magnétique B_0 , les différents sous-états Zeeman ($m = +1, 0, \text{ et } -1$) sont séparés de $\mu_B B_0$. Un premier photon de fréquence ν_1 est désaccordé de Δ'_1 par rapport à la transition atomique $2^3S_1(m = 1) \rightarrow 2^3P_0$. Comme l'état excité 2^3P_0 n'a qu'un seul sous-état Zeeman $m = 0$, la polarisation du premier photon doit être circulaire σ^- si on veut exciter les atomes du niveau ($2^3S_1, m = +1$). Un deuxième photon de fréquence ν_2 est lui désaccordé de Δ'_2 par rapport à la transition atomique $2^3P_0 \rightarrow 2^3S_1(m = +1)$. Avec une polarisation circulaire σ^+ , il peut induire la désexcitation des atomes de l'état ($2^3P_0, m = 0$) vers l'état ($2^3S_1, m = -1$). Lorsque la condition $\Delta'_1 = \Delta'_2 + 2\mu_B B_0$ est satisfaite, on transfère les atomes du sous-niveau $m = +1$ vers $m = -1$. On peut alors observer une raie Raman quand on balaie la fréquence ν_1 (figure A.2-a). On voit aussi sur cette figure, la présence de la raie moléculaire $v = 0$, que l'on peut expliquer de la façon suivante (voir la partie gauche de la figure A.1) : on a, simultanément à l'effet Raman précédent, la photoassociation de deux atomes dans l'état 2^3S_1 par l'absorption du premier photon lorsque le désaccord Δ'_1 coïncide avec la position du niveau $v = 0$. Sur un même spectre apparaît donc une résonance moléculaire ainsi qu'une raie Raman atomique, bien que ces deux effets soient distincts. Ce phénomène est mis en évidence également sur la figure B.1-a.

A.2 Un effet atomique et non moléculaire

Le but de cette partie est de montrer que l'on observe bien un effet Raman atomique, et non moléculaire comme celui de la partie 5.3.3.

Un premier indice indiquant que l'on a un effet atomique, est le fait que le pic Raman apparaisse pour des valeurs spécifiques des désaccords. En effet, sur la figure A.2-a, le pic correspond à une valeur de $\Delta'_1 = -1437.10$ MHz pour un désaccord du deuxième photon de $\Delta'_2 = -1420$ MHz, ce qui nous donne $\Delta'_2 - \Delta'_1 = 17.10$ MHz. Cette différence entre les désaccords correspond exactement à $2\mu_B B_0 = 17.1 \pm 0.1$ MHz, ce qui est attendu pour un effet atomique, comme l'illustre la figure A.1. Mais il est tout à fait possible que ce soit un effet moléculaire comme dans la partie 5.3.3, avec une énergie de liaison

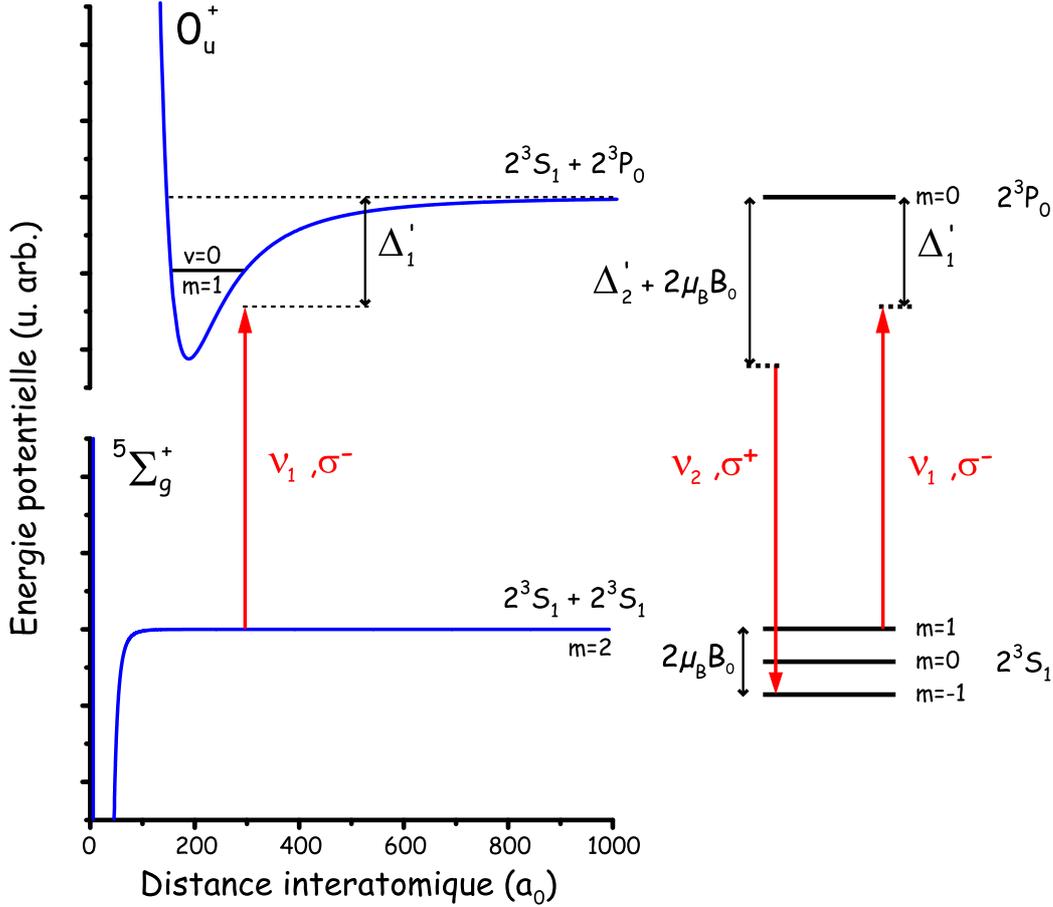


FIGURE A.1 – Schéma de principe de l'effet Raman atomique (partie gauche de la figure) : pour transférer les atomes dans l'état 2^3S_1 du sous-niveau $m = +1$ au sous-niveau $m = -1$, séparé de $2\mu_B B_0$ par le champ magnétique, il faut qu'un premier photon ait une polarisation σ^- et un deuxième une polarisation σ^+ et que leur désaccord par rapport à la transition atomique $2^3S_1 \rightarrow 2^3P_0$ soient égaux $h\Delta'_1 = h\Delta'_2 - 2\mu_B B_0$. Si $h\Delta'_1$ est égal à l'énergie de liaison E_v d'un état moléculaire du potentiel 0_u^+ (par exemple $v = 0$ sur le schéma), on peut avoir simultanément la photoassociation des atomes de l'état 2^3S_1 (partie droite de la figure). Ces deux effets sont dissociés mais peuvent intervenir en même temps sur un spectre si les conditions sont réunies $E_v \approx h\Delta'_1 \approx h\Delta'_2 - 2\mu_B B_0$.

du dernier état lié du potentiel $5\Sigma_g^+$ de $E_{v=14} = -17.1$ MHz. Il faut donc trouver une autre expérience qui nous permette d'écarter une telle coïncidence.

Cette expérience consiste à mesurer la hauteur du pic Raman pour différentes valeurs du désaccord Δ'_2 , la hauteur variant approximativement comme $1/\Delta'_2{}^2$. C'est ce que nous avons fait sur la figure A.2-b, en choisissant si possible des valeurs de Δ'_2 différentes des désaccords correspondant aux raies moléculaires afin d'exclure toutes influences de ces raies sur la hauteur. Le comportement est bien celui attendu, une décroissance de la hauteur du pic Raman quand le désaccord augmente. Le signal Raman observé est bien d'origine atomique et non moléculaire.

L'augmentation de température correspondant à l'effet Raman atomique vient du processus suivant : le spin électronique des atomes se renverse, et les atomes sont transféré dans un état anti-piégeant ("high field seeker"). Ils sont donc accélérés et communiquent par collisions une partie de leur énergie ainsi gagnée.

La largeur du pic Raman observé est de l'ordre de 0.25 MHz. On peut supposer qu'elle est due à l'ionisation Penning entre les atomes piégés et ceux qui ont subi un retournement de spin sous l'effet de la transition Raman. Pour une température de $4 \mu\text{K}$, le taux de collisions inélastiques maximal $K_{in\acute{e}l}^{max\uparrow\downarrow}$ associé est de $1.25 \times 10^{-9} \text{ cm}^3/\text{s}$ d'après l'équation (48) de [JULIENNE and MIES, 1989] et le taux minimal

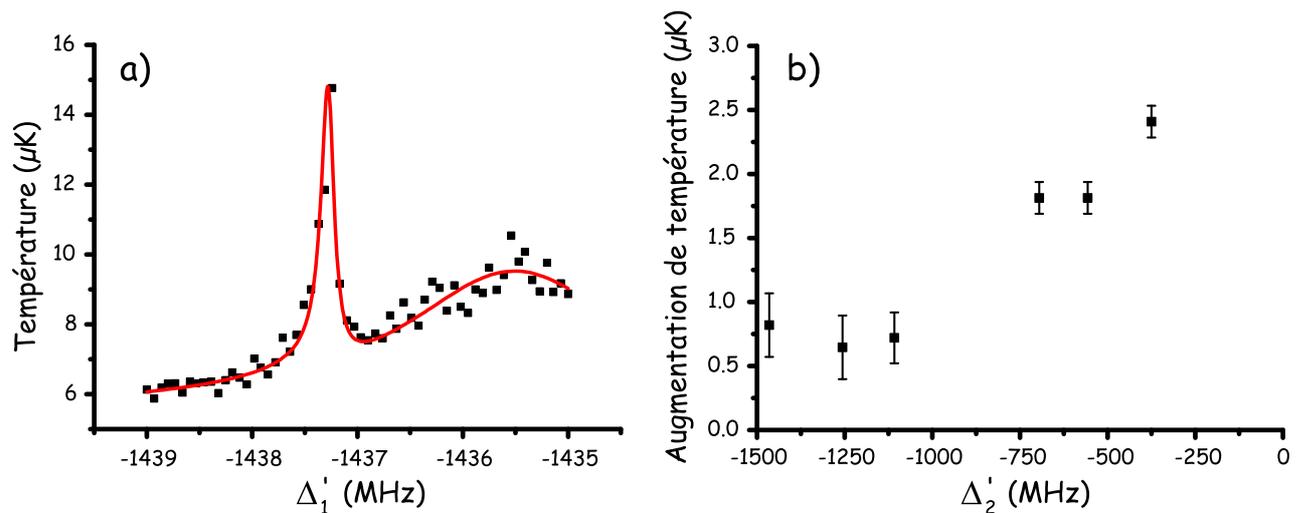


FIGURE A.2 –

a - Pic Raman apparaissant quand les deux lasers de PA sont à résonance, c'est à dire lorsque $\Delta_1' = \Delta_2' - 2\mu_B B_0$. Sur cette figure, on peut deviner la présence de la raie moléculaire $v = 0$ à proximité du pic Raman. Cette présence est tout à fait fortuite, l'effet Raman atomique et la photoassociation étant deux effets distincts.

($P_1 = 100 \mu\text{W}$, $P_2 = 1 \text{ mW}$, $\tau_{\text{PA}} = 2 \text{ ms}$, $\Delta_2' = -1420 \text{ MHz}$, $B_0 = 8.55 \text{ MHz}$)

b - Afin de confirmer que le pic Raman de la figure-a résulte d'un effet Raman atomique, la hauteur de ce pic a été mesurée pour différents désaccords Δ_2' . Cette hauteur décroît à mesure que l'on s'éloigne de la raie atomique, ce qui montre que l'on a bien un effet atomique.

($P_1 = 10 \mu\text{W}$, $P_2 = 100 \mu\text{W}$, $\tau_{\text{PA}} = 500 \mu\text{s}$)

$K_{inél}^{min\uparrow\downarrow}$ est de $4.33 \times 10^{-11} \text{ cm}^3/\text{s}$ d'après l'équation (56) de [JULIENNE and MIES, 1989] (on obtient ce dernier résultat en prenant une longueur de diffusion de $a_{inél}^{\uparrow\downarrow} \approx 26 a_0$ d'après la figure 4 de [LEO *et al.*, 2001], qui correspond à la collision inélastique entre un atome dans l'état $m = +1$ et deuxième atome dans l'état $m = -1$). Avec une densité atomique de $n(\vec{0}) = 1.4 \times 10^{13} \text{ at}/\text{cm}^3$, on obtient donc une largeur comprise entre 100 Hz et 2.8 kHz, soit au moins deux ordres de grandeur plus petit que la valeur expérimentale. La largeur de pic Raman n'est donc pas due exclusivement à l'ionisation Penning. Des élargissements dus à la température et à la densité peuvent expliquer la largeur du pic Raman atomique observée, comme ils expliquent la largeur du pic Raman moléculaire (partie 7).

On peut ajouter que cette expérience nous a permis de tester notre montage de PA à deux photons dans le but mesurer la longueur de diffusion a par la méthode Raman (cette mesure est traitée en détail dans la partie 5.1 et le chapitre 6).

Annexe B

Observation d'un effet photo-mécanique avec deux photons

On observe aussi des déplacements du nuage, non plus avec un seul photon comme dans le chapitre 4, mais avec deux photons. Les effets mis en jeu lors de cette expérience nécessitent la lecture du chapitre 5 et de l'annexe A.

On obtient la figure B.1-a lors des expériences sur l'effet Raman atomique (voir l'annexe A). On peut voir en effet la raie moléculaire $v = 0$ à un désaccord de $\Delta'_1 \approx -1459$ MHz avec un pic Raman vers $\Delta'_1 \simeq -1446$ MHz. Ce pic a un profil de Fano typique d'un effet Raman. Mais il s'agit d'un effet atomique et non moléculaire, comme le montre la direction de l'asymétrie du pic, c'est à dire vers la transition atomique située à $\Delta'_1 = 0$ MHz (voir l'annexe A). Une deuxième confirmation est donnée par le fait que la différence de fréquence correspondant à la position du pic ($\nu_2 - \nu_1 = 17.3$ MHz) est égale à $2\mu_B B_0 = 17.4 \pm 0.1$ MHz.

Les figures B.1-b, -c et -d ont été réalisées dans le cadre de la spectroscopie à deux photons afin de trouver l'énergie de liaison $E_{v=14}$ (voir le chapitre 5). On est en présence d'un dédoublement de la raie moléculaire $v = 0$ obtenu par effet Raman. On a donc ici un déplacement à deux photons d'origine moléculaire, alors que celui de la figure B.1-a est d'origine atomique. Le phénomène de résonance noire induit aussi un déplacement comme on le voit sur la figure B.1-d. On peut finalement obtenir un déplacement du nuage atomique à un ou deux photons, avec des effets atomiques ou moléculaires.

Mais si l'interprétation de ce déplacement était claire avec un seul photon, il ne l'est plus avec deux. En effet, les deux faisceaux proviennent de la même fibre et ont donc la même direction. Or le premier photon donne, lors de son absorption, une impulsion dans la même direction que le faisceau, et le deuxième photon, émis de manière stimulée, donne une impulsion dans la direction opposée. Les deux impulsions s'annulent, à la différence de fréquence près entre les deux photons, qui est négligeable. Nous n'avons trouvé aucune explication pour interpréter ce déplacement à deux photons.

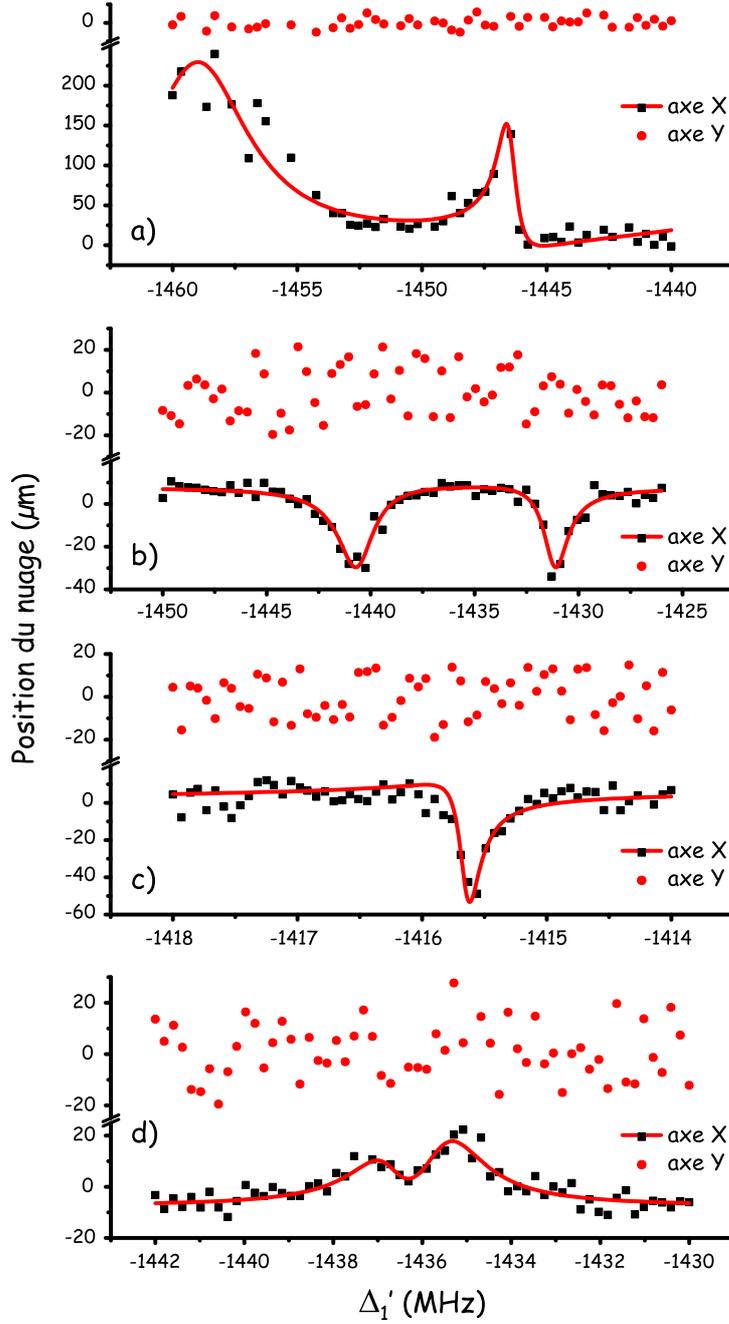


FIGURE B.1 – Déplacement du nuage avec deux photons pour différents effets induits par la lumière. Les courbes en rouge sont des ajustements.

a - Déplacement du nuage dans le cadre de l'effet Raman atomique. Le pic Raman est tourné vers la transition atomique. La différence de fréquences correspondant à sa position est de $\nu_2 - \nu_1 = 17.3$ MHz.

($P_1 = 6$ mW, $P_2 = 75$ μ W, $\tau_{PA} = 12.5$ μ s, $B_0 = 8.70$ MHz, polarisation : σ^- pour le premier photon, σ^+ pour le deuxième photon)

b - Déplacement du nuage dans le cadre de l'effet Autler-Townes où l'on a un dédoublement de la raie moléculaire $v = 0$. Cette figure a été réalisée pour une différence de fréquence entre les deux photons de $(\nu_2 - \nu_1) - \Delta_1 = 90.8$ MHz, pour laquelle le dédoublement n'est pas exactement symétrique.

($P_1 = 10$ μ W, $P_2 = 1$ mW, $\tau_{PA} = 500$ μ s, polarisation : σ^- pour les deux photons)

c - Déplacement du nuage dans le cadre de l'effet Raman. Cette figure est un agrandissement du pic Raman et a été réalisée pour un désaccord Raman de $\Delta_1 - \Delta_2 = -20$ MHz.

($P_1 = 500$ μ W, $P_2 = 50$ μ W, $\tau_{PA} = 500$ μ s, polarisation : σ^- pour les deux photons)

d - Déplacement du nuage dans le cadre de la résonance noire. Le deuxième photon n'étant pas exactement à résonance avec la transition lié-lié $v = 0 \rightarrow v = 14$, la résonance noire n'est pas positionnée au centre de la raie à un photon.

($P_1 = 10$ μ W, $P_2 = 5$ μ W, $\tau_{PA} = 1$ ms, polarisation : σ^- pour les deux photons)

Annexe C

Déplacements lumineux du pic Raman

Dans la partie 5.3.3.2, il a été fait mention de déplacements lumineux de la raie $\nu = 0$. La raie Raman peut elle aussi se déplacer sous l'effet de l'intensité des lasers de PA. De tels déplacements, appelés "AC Stark shift", ont été étudiés dans [WYNAR *et al.*, 2000] lors d'expériences de spectroscopie à deux photons dans un condensat de Rb. Les auteurs obtiennent un déplacement allant jusqu'à 0.1 MHz pour une intensité laser totale (somme de I_1 et I_2) de $I = 8 \text{ W/cm}^2$. Nous avons aussi fait l'expérience pour différentes intensités du laser L_2 comprises entre 50 mW/cm^2 et 1.7 W/cm^2 . On a observé un déplacement lumineux du pic Raman linéaire en fonction de I_2 comme on peut le voir sur la figure C.1. Le déplacement lumineux calculé avec l'équation (7.2) est représenté sur la figure C.1) en pointillés bleus. L'expérience comme la théorie montre un déplacement linéaire en intensité. Mais la pente théorique est plus faible que celle observée, avec une erreur de 40 %. Cette erreur est très certainement due à celle sur la mesure absolue de l'intensité I_2 , lié à l'incertitude sur l'estimation du waist du faisceau de PA (qui serait alors surévalué de 20 %).

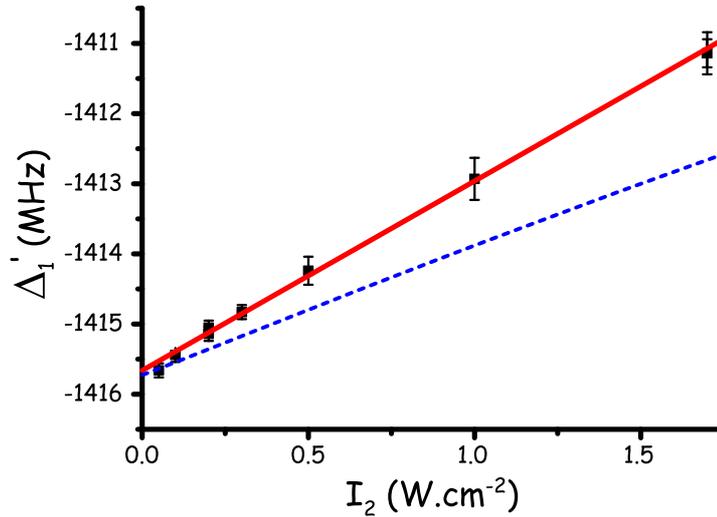


FIGURE C.1 – Influence de l'intensité I_2 du second photon : le pic Raman, obtenu avec un désaccord de -20 MHz par rapport à $\nu = 0$, subit un déplacement lumineux, linéaire en I_2 . En ordonnée est représentée la position Δ'_1 du pic Raman. Afin qu'il conserve la même amplitude pour chaque intensité I_2 , on adapte le temps de photoassociation τ_{PA} de 10 à $200 \mu\text{s}$. Un ajustement linéaire (représenté en rouge) donne une pente de $2.70 \pm 0.11 \text{ MHz}/(\text{W}\cdot\text{cm}^{-2})$. La courbe théorique (en pointillés bleus) est obtenue à partir de l'équation (7.2) avec un désaccord de -20 MHz . Elle ne donne pas la même pente, qui est de $1.75 \text{ MHz}/(\text{W}\cdot\text{cm}^{-2})$, soit une erreur d'environ 40 % par rapport aux points expérimentaux. ($P_1 = 500 \mu\text{W}$, $\Delta_1 - \Delta_2 = -20 \text{ MHz}$)

Nous n'avons pas cherché à étudier plus en détail les déplacements lumineux du pic Raman, car

on ne peut pas en tirer de résultats particuliers, que ce soit pour la mesure de γ_2 ou pour un autre paramètre important. Mais c'est tout de même un phénomène intéressant à mentionner.

Annexe D

Essai de la caméra infrarouge à semi-conducteur de Xenics

Contrairement aux expériences d'atomes froids réalisées avec des alcalins, l'imagerie optique est une des difficultés technologiques majeures de notre expérience. En effet, la longueur d'onde utilisée de 1083 nm, est nettement en dehors du domaine visible, et donc de la gamme de sensibilité des caméras CCD usuelles. Fabriqués à base de silicium, ces détecteurs ont une efficacité quantique de conversion d'un photon en un électron qui diminue fortement au delà de 1 μm , jusqu'à valoir environ 1.5 % à 1.083 μm , dans le cas de la caméra Hamamatsu C4880 que nous utilisons. Nous avons donc recherché des caméras avec un meilleur rendement quantique. Lot-Oriel propose une caméra à semi-conducteur fabriquée par Xenics qui a une efficacité quantique supposée de 85 % jusqu'à 1600 nm. Cette annexe présente les caractéristiques techniques de cette caméra dans la première partie. La deuxième donne le résultat des tests que l'on a réalisés sur une caméra de démonstration pendant une période d'essai d'une semaine.

D.1 Présentation de la caméra

La camera NIR 2D (appelé aussi "Xeva" par le revendeur Lot-Oriel) de Xenics utilise un détecteur plan focal en InGaAs de 320×256 pixels pour des pixels de 30 μm de côté ou 640×512 pixels pour des pixels de 20 μm . Pour comparaison, notre caméra actuelle a un détecteur de 512×512 pixels de 24 μm de côté. Ce type de matériau (InGaAs) est adapté à l'imagerie dans le domaine du proche infrarouge compris entre 0.9 μm et 1.7 μm . On peut demander une extension du domaine infrarouge de 1.3 μm à 2.5 μm . L'InGaAs permet un rendement quantique de 85 % à 1600 nm. Les temps d'exposition peuvent varier de 1 μs à 5 min. Cette caméra est compacte (c'est un cube de 10 cm de côté sans l'objectif) et plutôt léger (1.5 kg seulement) en comparaison de notre caméra Hamamatsu.

Afin de limiter le bruit de photon dû aux influences extérieures, la caméra est équipée d'un refroidisseur thermoélectrique (de 30 W) permettant de fonctionner jusqu'à -10°C (263 K). Cependant, le constructeur a prévu une version refroidie à -50°C (223 K) avec 3 refroidisseurs pour certaines applications spéciales comme c'est le cas pour nous.

La caméra dispose de deux signaux de sortie :

1. un signal vidéo analogique VGA (30 Hz) compatible avec un moniteur d'ordinateur standard.
2. un signal numérique de type USB2 (12 bits), très adapté pour des débits importants de données lors de prise d'images en série sur un temps limité, mais ceci demande un ordinateur suffisamment récent pour avoir ce type de connection.

La caméra est livrée avec une interface graphique compatible C++ et Labview.

Lot-Oriel propose cette caméra, avec un détecteur de 320×256 pixels et 3 refroidisseurs thermoélectriques, pour le prix de 20 000 €. Si la caméra semble idéale sur le papier pour notre type d'expérience, il s'agit de le vérifier. Lot-Oriel nous a donc proposé une caméra de démonstration que l'on a pu tester durant une semaine, fin octobre 2005.

D.2 Performances de la caméra lors des prises de données

Tout d'abord, nous avons été quelque peu surpris du contenu du manuel de l'utilisateur fourni avec la caméra (il est vrai qu'il n'est qu'à sa version 0.1). Bien qu'il fasse tout de même 42 pages, rien d'utile n'y est décrit, mise à part l'installation du logiciel, qui fait 10 pages à elle seule. Le reste n'est là que pour détailler la fonction de chaque icône (le symbole de la disquette sert à enregistrer, celui de la loupe à agrandir, *etc*), mais rien n'est indiqué sur la programmation pour piloter la caméra ou pour faire du traitement d'image, ce qui est regrettable. Ce manuel n'est sans doute pas celui vendu avec la caméra, mais c'est du plus mauvais effet.

Ensuite, nous avons pu constater que cette caméra souffrait d'un inconvénient qui apparaît pour la plupart des caméras, et qui est la présence de pixel "morts" sur le détecteur. Bien que le terme de "mort" soit abusif (un pixel ayant un gain très différent des autres pixels pour une longueur d'onde donnée, peut ne plus être mort pour une autre longueur d'onde), nous utilisons toujours la même longueur d'onde, ce qui fait qu'un pixel mort le restera. Le logiciel permet de calibrer les pixels morts pour qu'ils aient un gain et un offset plus proche des autres pixels, on peut donc corriger cet inconvénient. Mais nous avons observé une augmentation inquiétante du nombre de pixels morts avec le temps, ce qui oblige à refaire souvent cette calibration.

Lorsque nous avons voulu faire des images de notre nuage, nous avons été fortement déçu par la procédure à suivre. Comme aucune information sur la programmation de la prise d'image n'était disponible, il nous a fallu les enregistrer à la main, image par image. Habituellement, il est nécessaire de faire trois images d'absorption pour chaque séquence expérimentale (du chargement du MOT jusqu'à la détection) afin obtenir une image du nuage :

1. une image d'absorption du nuage par le faisceau sonde,
2. une image d'absorption du faisceau sonde seul (sans le nuage),
3. et une image d'absorption du bruit (sans le nuage, ni la sonde).

Ces trois images sont prises à environ 1 s d'intervalle. Mais lorsque la caméra est "triggée", le logiciel n'accepte qu'une seule action manuelle par trig, or il faut ouvrir le fichier où l'on veut sauvegarder, écrire le nom de l'image, puis l'enregistrer, ce qui exige trois actions manuelles. On ne peut alors prendre qu'une seule image d'absorption par séquence expérimentale au lieu de trois. Le résultat est que les trois images d'absorption nécessaires sont prises lors de trois séquences différentes, au lieu d'une seule, ce qui augmente le bruit de l'image du nuage.

En plus de ces difficultés matérielles, les images sont sauvegardées sous le format ".csv". Ceci ne poserait pas de problème s'il s'agissait réellement du format ".csv". Et ce n'est pas le cas, le format utilisé a des ressemblance avec le ".csv" mais ne l'est pas exactement, il n'est donc pas possible d'ouvrir les images enregistrées avec les logiciels de traitement d'images les plus répandus.

Il faut préciser que le logiciel n'est pas stable car si on se trompe de bouton dans la procédure d'enregistrement de l'image, le logiciel s'arrête. Il faut donc le fermer et le relancer et faire de même avec la caméra. Et ceci ne marche pas à tout les coups, il faut donc s'y reprendre pas moins de trois

fois en moyenne pour que le logiciel daigne s'ouvrir à nouveau (et il faut parfois même redémarrer aussi l'ordinateur).

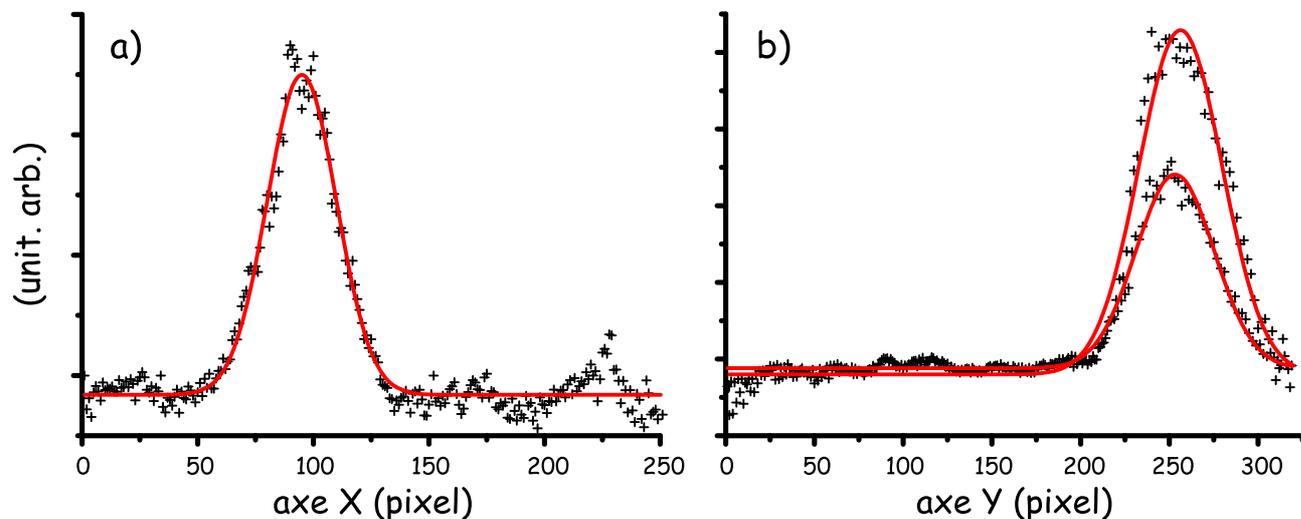


FIGURE D.1 – Profils du nuage selon deux axes perpendiculaires obtenus avec les images d'absorption faites avec la caméra infrarouge de Xenics. Le nuage utilisé n'est refroidie par évaporation que partiellement, pour qu'il soit plus gros, afin de le détecter facilement.

a - Profil du nuage selon un axe. On a un profil gaussien typique d'un nuage thermique.

b - Profil du nuage selon un axe perpendiculaire à celui de la figure-a. On obtient deux profils gaussiens, un pour les pixels pairs, l'autre pour les pixels impairs, ce qui est typique d'une électronique défailante du traitement de l'image du détecteur.

Malgré ces divers problèmes, nous avons pu prendre quelques images du nuage atomique. Nous n'avons refroidie partiellement le nuage par évaporation, pour qu'il soit plus gros, afin de le détecter plus facilement. Nous avons voulu regarder le profil du nuage afin de le comparer avec ceux obtenus avec notre caméra Hamamatsu. Nous obtenons les profils de la figure D.1 selon deux axes perpendiculaires. Si on a bien le profil gaussien d'un nuage thermique sur la figure D.1-a, celui de la figure D.1-b est dédoublé selon les colonnes paires ou impaires du détecteur. C'est un problème typique des caméras qui vient de la conception de l'électronique du traitement de l'image : les colonnes paires et impaires ne sont pas reliées au même registre de traitement de l'image, leur gain n'est donc pas le même. On a ainsi une image du nuage telle que celle de la figure D.2-a où l'on peut voir cette différence de contraste.

Finalement, nous avons voulu comparer la qualité des images obtenues avec cette caméra et notre caméra de Hamamatsu. La figure D.2-b montre une image complète, sur toute la surface du détecteur, réalisée avec la caméra de Xenics. Elle n'est pas moins bruitée, ni mieux contrastée. Par contre, elle est moins bien définie, puisque le détecteur contient presque quatre fois moins de pixels. Cet inconvénient est important car nous utilisons habituellement toute la surface du détecteur pour imager le MOT, un nuage ultra-froid ne couvre donc qu'une très faible surface du détecteur, d'où le défaut majeur de la perte de définition avec cette nouvelle caméra. Seul le modèle de Xenics avec un détecteur de 640×512 pixels aurait des images comparables aux nosres, mais il est aussi d'autant plus cher.

D.3 Conclusions

En conclusion, les problèmes rencontrés montrent que l'interface avec la caméra présente de graves défauts, tant sur la stabilité que sur la fonctionnalité. L'électronique du traitement d'image n'est pas optimisée, d'où des différences de contrastes sur colonnes les images. Ces divers inconvénients peuvent

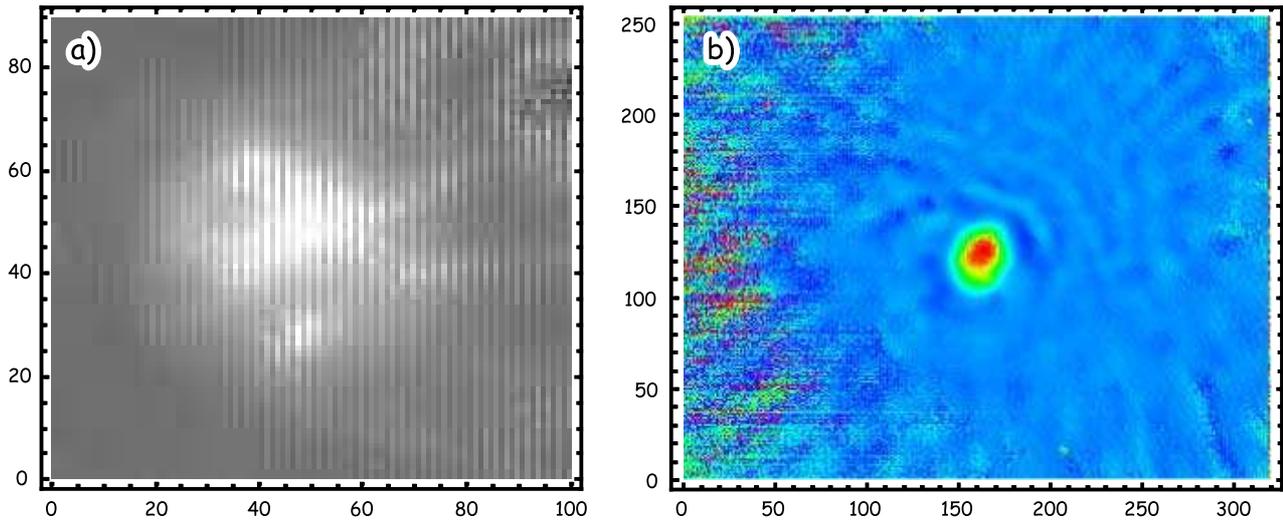


FIGURE D.2 – Images du nuage obtenues par la caméra infrarouge de Xenics. On voit nettement des franges verticales dues à la différence de contraste entre les colonnes paires et impaires.

a - Agrandissement d'une image en niveaux de gris d'un nuage. La différence de contraste des colonnes est très net. Le nuage est ici déformé à cause de poussières sur les éléments d'optique.

b - Image complète (de 256×320 pixels) et en couleurs d'un autre nuage. La partie gauche de l'image est mouchetée car, l'image du faisceau sonde étant plus petite que la surface du détecteur, seul le bruit électronique apparaît.

être résolus par l'utilisateur, mais avec beaucoup de temps, sachant que sur des expériences telles que les nôtres, les problèmes étant déjà nombreux, en rajouter volontairement d'autres est à éviter. Enfin, la caméra est chère pour une surface de détecteur plus petite que pour d'autres caméras du même prix. Il apparaît donc que cette caméra n'est encore qu'au stade de l'expérimentation et ses défauts devraient être corrigés dans les années à venir. Quelques années sont nécessaires avant qu'elle soit plus adaptée à nos besoins et vendue "clé en mains" à un prix raisonnable.

Annexe E

Les déplacements lumineux des raies moléculaires : une autre mesure de la longueur de diffusion a

Cette annexe présente la publication de *Europhysics letters* parue en 2005 (vol. **78**, p. 548) sur la mesure des déplacements lumineux des raies moléculaires sous l'effet de l'intensité du laser de PA. Leur observation a été un préalable indispensable à la spectroscopie à deux photons et à la mesure précise de a , présentées dans cette thèse. Cette étude a fait l'objet d'un deuxième article qui développe la théorie des déplacements lumineux dans le cas de l'hélium, et qui a été publié dans *the special issue on Cold Molecules of Journal of Physics B* en 2006. Seul l'article expérimental est inclus dans cette annexe, l'étude complète faisant l'objet de la thèse de Maximilien Portier qui sera soutenue d'ici 1 an.

EUROPHYSICS LETTERS

15 November 2005

Europhys. Lett., **72** (4), pp. 548–554 (2005)

DOI: 10.1209/epl/i2005-10275-y

Frequency shifts of photoassociative spectra of ultracold metastable helium atoms: A new measurement of the s -wave scattering length

J. KIM, S. MOAL, M. PORTIER, J. DUGUÉ, M. LEDUC and C. COHEN-TANNOUJJI
Ecole Normale Supérieure and Collège de France, Laboratoire Kastler Brossel
24 rue Lhomond, 75231 Paris Cedex 05, France

received 26 July 2005; accepted in final form 20 September 2005

published online 14 October 2005

PACS. 32.80.Pj – Optical cooling of atoms; trapping.

PACS. 33.20.Ea – Infrared spectra.

PACS. 34.20.Cf – Interatomic potentials and forces.

Abstract. – We observe light-induced frequency shifts in one-color photoassociative spectra of magnetically trapped $^4\text{He}^*$ atoms in the metastable 2^3S_1 state. A pair of ultracold spin-polarized 2^3S_1 helium atoms is excited into a molecular bound state in the purely long-range 0_u^+ potential connected to the 2^3S_1 - 2^3P_0 asymptote. The shift arises from the optical coupling of the molecular excited bound state with the scattering states and the bound states of two colliding 2^3S_1 atoms. We measure the frequency-shifts for several ro-vibrational levels in the 0_u^+ potential and find a linear dependence on the photoassociation laser intensity. Comparison with a theoretical analysis provides a good indication for the s -wave scattering length a of the quintet ($^5\Sigma_g^+$) potential, $a = 7.2 \pm 0.6$ nm, which is significantly lower than most previous results obtained by non-spectroscopic methods.

Introduction. – The present article describes a photoassociation (PA) experiment with ultracold helium atoms in the metastable ($\tau \sim 8000$ s) 2^3S_1 state. Since the development of laser cooling techniques which provide sub-millikelvin ultracold atomic samples, the photoassociation of such atoms has been of much interest and provides detailed information on the inter-atomic interaction and collisional properties [1]. The measurement of the PA spectra allows very precise measurement of the s -wave scattering length [2–5], a crucial parameter for understanding the collisional properties of the ultracold atoms or molecules and the dynamic behavior of the condensate.

One of the interesting phenomena in PA is the light-induced frequency shift of the PA spectra. As demonstrated in refs. [6, 7] for Na and refs. [8, 9] for Li, the light shift of the PA spectra is clearly visible at moderate laser intensity for the ultracold samples. The observed shifts are described by a theoretical calculation based on the theory developed by Bohn and Julienne [10] or Simoni *et al.* [11]. The laser light couples the excited molecular bound state with the continuum of scattering states and the ground molecular bound states, which results in the shift of the PA resonance curve when the laser frequency is swept over the resonance. The dependence of the shift on a has two origins. First, in the limit of large and positive

© EDP Sciences

Article published by EDP Sciences and available at <http://www.edpsciences.org/epl> or <http://dx.doi.org/10.1209/epl/i2005-10275-y>

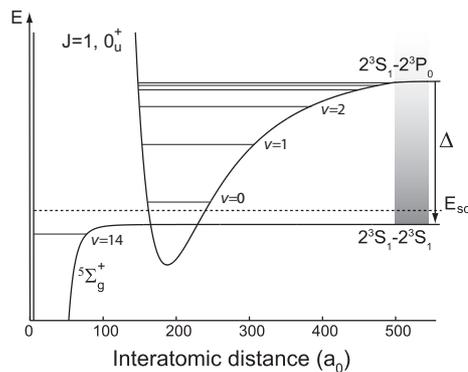


Fig. 1 – Interaction potential ${}^5\Sigma_g^+$ between spin-polarized metastable helium atoms and purely long-range 0_u^+ potential in the light-dressed interaction picture. Δ is the detuning to the atomic D_0 line. Here, the colliding atoms at energy $E_{sc} \approx k_B T$ are driven close to resonance with the deepest bound state $v = 0$ of 0_u^+ . This bound state is embedded in the continuum of scattering states, represented in grey, which leads to an energy shift. The least-bound state $v = 14$ of the ${}^5\Sigma_g^+$ potential, close to the resonance, also contributes to the shift.

scattering length a , the energy of the least bound-state E_{LBS} in the ground-state potential vanishes, and varies as $-\hbar^2/2\mu a^2$. At ultracold temperature, the atoms collide with a near zero relative kinetic energy E_{sc} , which is therefore very close to E_{LBS} . When the laser is tuned in the vicinity of the free-bound transition, the excited state is therefore close to resonance with the least-bound state. As a consequence, a shift of the excited state is produced, which is dependent on E_{LBS} and so on a . Second, the couplings of the excited state with the bound and scattering ground states involve Franck-Condon overlaps which depend critically on a .

In this letter, we report the first observation of the light shift of the $J = 1$ ro-vibrational states recently found by our group [12, 13] in the purely long-range 0_u^+ interaction potential for ${}^4\text{He}$ atoms. The $v = 0, 1, 2$ levels (see fig. 1) can be populated from two ultracold colliding atoms excited by absorption of laser light red-detuned from the 2^3S_1 - 2^3P_0 transition. From the measurement of the light shifts for several vibrational levels, we deduce an estimation of the value of the s -wave scattering length a of the spin-polarized ${}^4\text{He}^*$ atoms in ${}^5\Sigma_g^+$ quintet potential. This is the first spectroscopic measurement of a , which provides a significantly lower value than most previous experimental results [14–17].

Experimental procedure. – The spin-polarized ultracold atomic ${}^4\text{He}^*$ samples are confined in a three-coil magnetic trap of Ioffe-Pritchard type and cooled down to μK range by radio-frequency-induced evaporation. The bias field is typically 3 G and the density is of the order of 10^{13} atoms/cm³. The PA experiment is performed at a temperature of around $4\ \mu\text{K}$, just above the critical temperature of Bose-Einstein condensation [14, 15] to avoid mean-field shifts.

The PA light is provided by a DBR diode laser with an external cavity operating at 1083 nm and a 1 W Yb-doped fiber amplifier. The PA pulse is focused with a waist of $640\ \mu\text{m}$ on the atomic sample of approximately $30\ \mu\text{m}$ diameter (in radial direction) and switched on for durations from tens of μs to a few ms depending on the laser intensity. The light propagates parallel to the trap bias magnetic field in σ^- polarization to produce selectively the desired bound states from $v = 0$ to $v = 4$ in the purely long-range 0_u^+ , $J = 1$ potential by setting its detuning in the range from $-20\ \text{MHz}$ to $-1.4\ \text{GHz}$ [12, 13]. In order to allow large detunings, we use a heterodyne frequency locking technique: the beat signal between

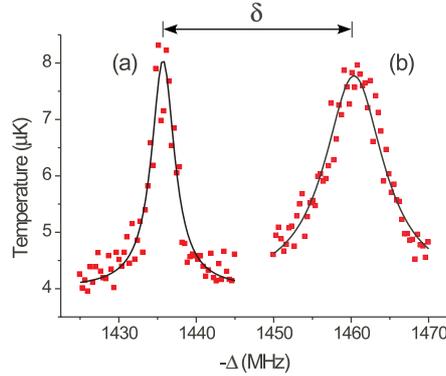


Fig. 2 – Two PA resonance curves of the lowest ($v = 0$) vibrational level of the 0_u^+ potential with PA laser intensity of (a) 9 mW/cm^2 and (b) 5 W/cm^2 and pulse duration of 1 ms and $10 \mu\text{s}$, respectively. The heating of the cloud due to the PA process is plotted as a function of the opposite of the laser detuning Δ from the 2^3S_1 - 2^3P_0 transition. The two sets of data are fitted with Lorentzian curves represented in solid lines, and the center frequencies are found to be (a) $-1435.0 \pm 0.6 \text{ MHz}$ and (b) $-1460 \pm 1 \text{ MHz}$. The resonance peak (b) is clearly shifted by a quantity δ larger than 20 MHz at strong PA laser intensity.

the PA laser and a master laser is monitored by a fast photodiode, mixed down with a local oscillator and converted to DC voltage which is then fed back to the current supply of the PA laser. The master laser is locked to the atomic D_0 transition. The linewidth of the PA laser is measured to 0.6 MHz . Our polarization purity is limited to approximately 98% in the electric field because of imperfections in the optical elements.

The PA resonance curves are obtained by the calorimetric method described in ref. [12]. Even for intensities several order of magnitudes higher in the present work, the rise in temperature, the optical density and the atom loss signals (which are simultaneously registered) still give the same central position of the resonance line. This validates our detection method. We deduce the temperature by ballistic expansion. For each PA line, the PA laser frequency is scanned over 20 MHz in steps of 0.3 MHz by changing the RF-frequency of an acousto-optic modulator in the PA beam line.

Figure 2(a) shows a PA resonance line obtained at low PA laser intensity. The width is typically 3 MHz . When the PA laser intensity is increased, the line is red-shifted and broadened as shown in fig. 2(b). We decrease the pulse duration as we raise the laser intensity in order to keep enough atoms trapped after photoassociation, so that the heating by the PA process is still measurable. We checked that the resonance position is independent of the pulse duration by varying it by more than an order of magnitude. The amplitude of the temperature raise signal is not proportional to the laser energy: when the laser energy focused on the cloud is large, the atom loss is not negligible compared to the initial number of atoms, and the thermalization properties of the cloud are changed. With the temperature and laser intensity we use, the broadening of the signal is too large to be explained by refs. [10, 11] where it is related to the transition rate from the coupled scattering states to the excited state. However, some decay mechanisms enhanced by light are suggested by the observation of ions when a metastable helium cloud is illuminated by a laser red-detuned from the atomic transition [18, 19].

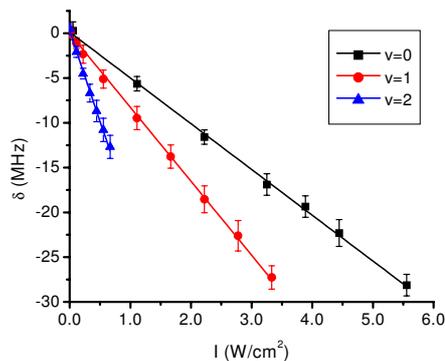


Fig. 3 – Measurements of the light-induced frequency shift δ of the PA resonance as a function of the PA laser intensity I for different molecular bound states ($v = 0, 1, 2$) of the 0_u^+ potential. The ratio between two slopes achieved in same experimental conditions ($\delta_{v=1}/\delta_{v=0}$ or $\delta_{v=2}/\delta_{v=0}$) is used to compare with theory to provide a value for the scattering length a .

Frequency shifts measurements. – For each vibrational level, we measure the shifts δ of the center of the resonance curve for different PA laser intensities I . Typical results are shown in fig. 3. The error bar is explained as follows. At high intensities, the error bar in δ increases due to signal broadening and large shot-to-shot noise. Close to zero intensity, we assign an error of 0.6 Mhz to δ resulting from fluctuations of experimental parameters, which is larger than the error of the Lorentzian fit.

The results displayed in fig. 3 show a linear dependance of $\delta_{v=0,1,2}$ as a function of I . The maximum measurable light shift is limited by two experimental factors. First, the signal broadens with the laser intensity. Second, to keep the amount of loss of atoms low enough, the pulse duration is decreased when I is increased as mentioned earlier, which is limited by the 5 μs switching time of the AOM. These constraints are more severe for $v = 2$. The main error in the determination of the slopes δ_v is due to the systematic uncertainty in the intensity I . This results from the difficulty to measure precisely the beam diameter at the cloud location, the calibration of our laser power meter, a possible slight misalignment of the laser on the cloud and the optical losses on the glass cell walls. We estimate that these factors lead to an error of up to 50% in the absolute value of I . This is why our measurement of the scattering length relies on the ratio of the slopes for two vibrational levels: $v = 0$ and $v = 1$ or $v = 0$ and $v = 2$, which is not affected by the systematic error in the intensity. We also observed that the laser intensity to which we expose the atomic cloud varies from day to day by approximately 10%, due to small changes of the position of the center of the magnetic trap. The slopes of the three levels are therefore measured in a single run without interruption to keep the experimental conditions as similar as possible.

The precision in the measurement of each ratio is limited by the fitting errors in the slopes δ_v which are 2% for $v = 0$, 2.5% for $v = 1$, and 4.5% for $v = 2$ (see fig. 3). The ratios of the frequency shifts are measured several times, and we find the results 1.71 ± 0.14 for $\delta_{v=1}/\delta_{v=0}$ and 4.20 ± 0.48 for $\delta_{v=2}/\delta_{v=0}$. The error bars are chosen such that they include all the measurements and their individual error bars, and a statistical analysis shows that they correspond to a three standard deviation error. The result for $\delta_{v=1}/\delta_{v=0}$ is the most precise because larger shifts produce less error in the linear fit.

Theory. – The details of the theoretical analysis which provides the relation between the shifts and the scattering length for different vibrational levels and light polarizations will be given in great detail in a forthcoming paper [20]. We focus here on its main features.

We consider the light coupling of the molecular bound state in the purely long-range $J = 1$; $M_J = 1$; 0_u^+ potential to the continuum of scattering states in the $l = 0, 2, 4$ waves as well as in several spin states allowed by selection rules. Under our experimental conditions (ultracold atoms in a magnetic trap), the only significant entrance collisional channel corresponds to two spin-polarized atoms colliding in the s -wave. However, the contribution to the light shift of all other possible allowed channels may not be negligible [6]. The fact that $l \neq 0$ channels contribute to the shift suggests a dependence on light polarization. In addition, the contributions of the ground molecular bound states is included. The least bound state $v = 14$ of the ${}^5\Sigma_g^+$ potential gives the most important one, as the other vibrational levels are much further from resonance.

Using ref. [11], it can be shown that the shift δ_v is the sum of partial shifts $\delta_v^{(i)}$ due to different collisional channels (i). Only the partial shifts corresponding to s -wave collisional channels depend on the scattering length. Each $\delta_v^{(i)}$ can be written as a sum over bound and continuum states or as an overlap integral involving the regular and irregular solutions of the scattering equation, and the excited-state wave function [10]. The former can be used to show that in our case both contributions of the least-bound state and the scattering states in the s -wave collisional channel provide the sensitivity of the shift on a . The latter is preferred for computational reasons, and proves that the shift is a linear function of a , very weakly dependent on the scattering energy E_{sc} and on the magnetic field for the low temperature and values of the field we use. We prefer using experimentally the ratio of the shifts between different vibrational levels which is independent of intensity. In our case, the fraction of the shift which depends on a is appreciably different for the different levels. The ratios of the shifts depend therefore in a critical way on a .

Several approximations are made in the theoretical analysis. First, the isolated level approximation, which takes into account that the resonances associated to the excited molecular states are well separated, is valid as their shifts and broadenings are much smaller than the level spacing. Second, the different ground-state collisional channels can be assumed to be uncoupled in the absence of light, as the spin-dipole interaction, which mixes different spin states, is very weak [21]. Third, we neglect dressing effects, which arise from the fact that at infinite separation the colliding atoms still interact with light [22]. As we solely deal with the deepest bound excited states, our laser is tuned far from the atomic resonance. Although these approximations are made, the errors they induce on the determination of a are much smaller than the one due to experimental uncertainty on the ratio measurement.

Scattering length. – We compare the measured ratio of the light shift for $\delta_{v=1}/\delta_{v=0}$ with the calculations in ref. [20]. The fact that the polarization is not pure is taken into account. As mentioned above, our theory does not add uncertainty when deducing the scattering length. The measured ratio of the light shift for $\delta_{v=1}/\delta_{v=0}$ provides a determination of the scattering length of $a = 7.2 \pm 0.5$ nm as shown in fig. 4(a). The ratio $\delta_{v=2}/\delta_{v=0}$ and the measurements for linear polarization shown in fig. 4(b) provide less precise but yet compatible values. One can infer from the present determination of a the absolute values of the slopes of δ_v as a function of I for different polarizations (see ref. [20]). We find a systematic discrepancy of 40% with the experimental results, which are smaller in absolute value. We attribute this to an overestimation of the intensity I .

This new value of a can be compared with the previous experimental determinations. In most cases the error bars do not overlap. The condensate expansion yields $a = 20 \pm 10$ nm [14]

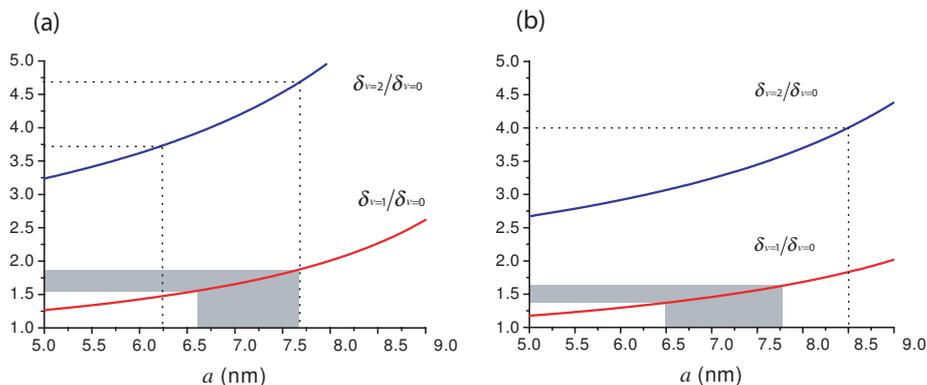


Fig. 4 – Ratios of the frequency shift for the PA lines obtained with 2^3S_1 helium atoms excited to $v = 0, 1$, and 2 in the 0_u^+ potential. (a) shows the result with σ^- polarization: $\delta_{v=1}/\delta_{v=0} = 1.70 \pm 0.14$, $\delta_{v=2}/\delta_{v=0} = 4.2 \pm 0.5$. and (b) with linear polarization: $\delta_{v=1}/\delta_{v=0} = 1.50 \pm 0.12$, $\delta_{v=2}/\delta_{v=0} = 3.3 \pm 0.7$. The curves for $\delta_{v=1}/\delta_{v=0}$ and $\delta_{v=2}/\delta_{v=0}$ are provided by our theoretical calculation [20]. The experimental uncertainty is represented by the grey area for the $\delta_{v=1}/\delta_{v=0}$ ratio, and the dashed lines for the $\delta_{v=2}/\delta_{v=0}$ ratio. In (b) the lower end of the $\delta_{v=2}/\delta_{v=0}$ is 2.6 , out of the plotted range for a . The value for the scattering length of $a = 7.2 \pm 0.6$ nm is provided by the measurement for the $\delta_{v=1}/\delta_{v=0}$ ratio with σ^- polarization.

and $a = 16 \pm 8$ nm [15]. The largest discrepancy is found with the value of the Orsay group $a = 11.3^{+2.5}_{-1.0}$ nm derived from inelastic collision rates combined with the determination of the critical temperature [17]. However, the measurement of the elastic collision rate based on the evaporative cooling rate gave $a = 10 \pm 5$ nm [16], which is in good agreement with our result. The small value of a could explain why the hydrodynamic regime was not reached in our previous experiment accounting for the collective excitation of collisionally dense thermal clouds [23]. The comparison with theoretical values obtained from *ab initio* calculations is also instructive. Using the potential of Starck and Meyer [24], a value of $a = 8.3$ nm is found. More recently, a value of 8.0 nm $< a < 12.2$ nm has been calculated [25]. After completion of the present work, we became aware of the result of Przybytek and Jezierski [26], which agrees very well with our measurement.

Conclusion. – We measure precisely the light-induced frequency shift of the PA spectra of metastable helium atoms and compared our results with our theoretical calculation. The measurements of several ro-vibrational levels at different light polarizations are considered. We also provide the first PA spectroscopic measurement of the *s*-wave scattering length of spin-polarized helium atoms in metastable 2^3S_1 state. The value for a presented in this letter is significantly lower as compared to most previous values.

A more precise spectroscopic method to determine the scattering length would be to measure the binding energy of the least-bound state ($v = 14$) in the ground-state $^5\Sigma_g^+$ potential with a two-photon scheme. This PA experiment is in progress in our group.

The authors thank O. DULIEU from the Cold Atoms and Molecules group at Laboratoire Aime Cotton in France and P. JULIENNE from National Institute of Standards and Technology in USA, for fruitful discussions.

REFERENCES

- [1] See, *e.g.*, the review articles by WEINER J., BAGNATO V. S., ZILIO S. and JULIENNE P. S., *Rev. Mod. Phys.*, **71** (1999) 1; MASNOU-SEEUWS F. and PILLET P., *Adv. At. Mol. Opt. Phys.*, **47** (2001) 53 and references therein.
- [2] ABRAHAM E. R. I., MCALEXANDER W. I., SACKETT C. A. and HULET R. G., *Phys. Rev. Lett.*, **74** (1995) 1315.
- [3] TIESINGA E., WILLIAMS C. J., JULIENNE P. S., JONES K. M., LETT P. D. and PHILLIPS W. D., *J. Res. Natl. Inst. Stand. Technol.*, **101** (1996) 505.
- [4] WILLIAMS C. J., TIESINGA E., JULIENNE P. S., WANG H., STWALLEY W. C. and GOULD P. L., *J. Res. Natl. Inst. Stand. Technol.*, **60** (1999) 4427.
- [5] DRAG C., LABURTHE TOLRA B., T'JAMPENS B., COMPARAT D., ALLEGRIANI M., CRUBELLIER A. and PILLET P., *Phys. Rev. Lett.*, **85** (2000) 1408.
- [6] MCKENZIE C. *et al.*, *Phys. Rev. Lett.*, **88** (2002) 120403.
- [7] SAMUELIS C., FALKE S., LAUE T., PELLEGRINI P., DULIEU O., KNOCKEL H. and TIEMANN E., *Eur. Phys. J. D*, **26** (2003) 307.
- [8] GERTON J. M., FREW B. J. and HULET G., *Phys. Rev. A*, **64** (2001) 053410.
- [9] PRODAN I. D., PICHLER M., JUNKER M., HULET R. G. and BOHN J. L., *Phys. Rev. Lett.*, **91** (2003) 080402.
- [10] BOHN J. L. and JULIENNE P. S., *Phys. Rev. A*, **60** (1999) 414.
- [11] SIMONI A., JULIENNE P. S., TIESINGA E. and WILLIAMS C. J., *Phys. Rev. A*, **66** (2002) 063406.
- [12] LÉONARD J., WALHOUT M., MOSK A. P., MÜLLER T., LEDUC M. and COHEN-TANNOUJJI C., *Phys. Rev. Lett.*, **91** (2003) 073203.
- [13] KIM J., RAPOL U. D., MOAL S., LÉONARD J., WALHOUT M. and LEDUC M., *Eur. Phys. J. D*, **31** (2004) 227.
- [14] ROBERT A., SIRJEAN O., BROWAEYS A., POUPARD J., NOWAK S., BOIRON D., WESTBROOK C. I. and ASPECT A., *Science*, **292** (2001) 461.
- [15] PEREIRA DOS SANTOS F., LÉONARD J., WANG JUNMIN, BARRELET C. J., PERALES F., RASEL E., UNNIKRISHNAN C. S., LEDUC M. and COHEN-TANNOUJJI C., *Phys. Rev. Lett.*, **86** (2001) 3459.
- [16] TOL P. J. J., HOGERVORST W. and VASSEN W., *Phys. Rev. A*, **70** (2004) 013404.
- [17] SEIDELIN S., GOMES J. V., HOPPELER R., SIRJEAN O., BOIRON D., ASPECT A. and WESTBROOK C. I., *Phys. Rev. Lett.*, **93** (2004) 090409.
- [18] WOESTENENK G., Ph.D Thesis, University of Utrecht (2001).
- [19] VAN RIJNBACH M., Ph.D Thesis, University of Utrecht (2004).
- [20] PORTIER M. *et al.*, in preparation.
- [21] FEDICHEV P. O., REYNOLDS M. W., RAHMANOV U. M. and SHLYAPNIKOV G. V., *Phys. Rev. A*, **53** (1996) 1447.
- [22] NAPOLITANO R., *Phys. Rev. A*, **57** (1998) 1164.
- [23] LEDUC M., LÉONARD J., SANTOS F. P. D., JAHIER E., SCHWARZ S. and COHEN-TANNOUJJI C., *Acta Phys. Pol. B*, **33** (2002) 2213.
- [24] STÄRCK J. and MEYER W., *Chem. Phys. Lett.*, **225** (1994) 229.
- [25] DICKINSON A. S., GADÉA F.-X. and LEININGER T., *J. Phys. B*, **37** (2004) 587.
- [26] PRZYBYTEK M. and JEZIORSKI B., *J. Chem. Phys.*, **123** (2005) 134315.

Bibliographie

Bibliographie

- [ABRAHAM *et al.*, 1995] ABRAHAM, E. R. I., MCALEXANDER, W. I., SACKETT, C. A., and HULET, R. G. (1995). *Phys. Rev. Lett.* **74**, 1315.
- [AUTLER and TOWNES, 1955] AUTLER, S. H. and TOWNES, C. H. (1955). *Phys. Rev.* **100**, 703.
- [BEAMS *et al.*, 2006] BEAMS, T. J., PEACH, G., and WHITTINGHAM, I. (2006). *arXiv physics* , 0604189.
- [BEAMS *et al.*, 2004] BEAMS, T. J., PEACH, G., and WHITTINGHAM, I. B. (2004). *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.* **37**, 4561.
- [BEIJERINCK *et al.*, 2000] BEIJERINCK, H. C. W., VREDENBREGT, E. J. D., STAS, R. J. W., DOERY, M. R., and TEMPELAARS, J. G. C. (2000). *Phys. Rev. A* **61**, 023607.
- [BERGEMAN *et al.*, 1987] BERGEMAN, T., EREZ, G., and METCALF, H. J. (1987). *Phys. Rev. A* **35**, 1535.
- [BOHN and JULIENNE, 1996] BOHN, J. L. and JULIENNE, P. S. (1996). *Phys. Rev. A* **54**, 4637(R).
- [BOHN and JULIENNE, 1999] BOHN, J. L. and JULIENNE, P. S. (1999). *Phys. Rev. A* **60**, 414.
- [BUGGLE *et al.*, 2004] BUGGLE, C., LÉONARD, J., VON KLITZING, W., and WALRAVEN, J. T. M. (2004). *Phys. Rev. Lett.* **93**, 173202.
- [CASIMIR and POLDER, 1948] CASIMIR, H. B. G. and POLDER, D. (1948). *Phys. Rev.* **73**, 360.
- [COHEN-TANNOUJDI, 1997] COHEN-TANNOUJDI, C. (1996-1997). *Cours de physique atomique et moléculaire : atomes ultrafroids - piégeage non dissipatif et refroidissement évaporatif*. Collège de France, Paris.
- [COHEN-TANNOUJDI, 1999] COHEN-TANNOUJDI, C. (1998-1999). *Cours de physique atomique et moléculaire : condensation de Bose-Einstein des gaz atomiques ultra froids ; effets des interactions*. Collège de France, Paris.
- [COHEN-TANNOUJDI *et al.*, 1973] COHEN-TANNOUJDI, C., DIU, B., and LALOË, F. (1973). *Mécanique quantique*. Hermann.
- [COHEN-TANNOUJDI *et al.*, 1996] COHEN-TANNOUJDI, C., DUPONT-ROC, J., and GRYNBERG, G. (1996). *Processus d'interaction entre photons et atomes*. Savoirs actuels, Editions du CNRS, Paris.
- [CÔTÉ and JAMIESON, 1995] CÔTÉ, R. and JAMIESON, M. J. (1995). *J. Comput. Phys.* **118**, 388.
- [DICKINSON *et al.*, 2004] DICKINSON, A. S., GADÉA, F.-X., and LEININGER, T. (2004). *J. Phys. B* **37**, 587.
- [DRAG *et al.*, 2000] DRAG, C., LABURTHE-TOLRA, B., T'JAMPENS, B., COMPARAT, D., ALLEGRI, M., CRUBELLIER, A., and PILLET, P. (2000). *Phys. Rev. Lett.* **85**, 1408.

- [DUMKE *et al.*, 2005] DUMKE, R., WEINSTEIN, J. D., JOHANNING, M., JONES, K. M., and LETT, P. D. (2005). *Phys. Rev. A* **72**, 041801(R).
- [FANO, 1961] FANO, U. (1961). *Phys. Rev.* **124**, 1866.
- [FEDICHEV *et al.*, 1996] FEDICHEV, P. O., REYNOLDS, M. W., RAHMANOV, U. M., and SHLYAPNIKOV, G. V. (1996). *Phys. Rev. A* **53**, 1447.
- [FLAMBAUM *et al.*, 1999] FLAMBAUM, V. V., GRIBAKIN, G. F., and HARABATI, C. (1999). *Phys. Rev. A* **59**, 1998.
- [GADÉA *et al.*, 2002] GADÉA, F.-X., LEININGER, T., and DICKINSON, A. S. (2002). *J. Chem. Phys.* **117**, 7122.
- [GAO, 1998] GAO, B. (1998). *Phys. Rev. A* **58**, 4222.
- [GARRISON *et al.*, 1973] GARRISON, B. J., MILLER, W. H., and SCHAEFER, H. F. (1973). *Phys. Rev. A* **59**, 3193.
- [GERBIER *et al.*, 2004] GERBIER, F., THYWISSEN, J. H., RICHARD, S., HUGBART, M., BOUYER, P., and ASPECT, A. (2004). *Phys. Rev. Lett.* **92**, 030405.
- [GERTON *et al.*, 2001] GERTON, J. M., FREW, B. J., and HULET, R. G. (2001). *Phys. Rev. A* **64**, 053410.
- [GRIBAKIN and FLAMBAUM, 1993] GRIBAKIN, G. F. and FLAMBAUM, V. V. (1993). *Phys. Rev. A* **48**, 546.
- [GUÉRY-ODELIN, 1998] GUÉRY-ODELIN, D. (1998). *Dynamique collisionnelle des gaz d'alcalins lourds : du refroidissement évaporatif à la condensation de Bose-Einstein*. PhD thesis, Université Paris VI.
- [GUÉRY-ODELIN *et al.*, 1999] GUÉRY-ODELIN, D., ZAMBELLI, F., DALIBARD, J., and STRINGARI, S. (1999). *Phys. Rev. A* **60**, 4851.
- [HERSCHBACH *et al.*, 2003] HERSCHBACH, N., TOL, P., TYCHKOV, A., HOGERVORST, W., and VASSEN, W. (2003). *J. Opt. B : Quantum Semiclass. Opt.* **5**, S65–S74.
- [HERZBERG, 1950] HERZBERG, G. (1950). *Spectra of diatomic molecules, 2nd édition*. D. Van Nostrand Company INC.
- [HUANG, 1963] HUANG, K. (1963). *Statistical mechanics*. Wiley & Sons.
- [JULIENNE and MIES, 1989] JULIENNE, P. S. and MIES, F. H. (1989). *J. Opt. Soc. Am. B* **6**, 2257.
- [KAVOULAKIS *et al.*, 2000] KAVOULAKIS, G. M., PETHICK, C. J., and SMITH, H. (2000). *Phys. Rev. A* **61**, 053603.
- [KETTERLE and VAN DRUTEN, 1996] KETTERLE, W. and VAN DRUTEN, N. J. (1996). *Advances in Atomic, Molecular, and Optical Physics* **37**, 181–236. édité par B. Bederson and H. Walther.
- [KIM *et al.*, 2005a] KIM, J., MOAL, S., PORTIER, M., DUGUÉ, J., LEDUC, M., and COHEN-TANNOUJDI, C. (2005a). *Europhys. Lett.* **72**, 548.
- [KIM *et al.*, 2005b] KIM, J., MOAL, S., PORTIER, M., and LEDUC, M. (2005b). *Las. Phys.* **15**, 1075.
- [KOELEMEIJ and LEDUC, 2004] KOELEMEIJ, J. C. J. and LEDUC, M. (2004). *Eur. Phys. J. D* **31**, 263.
- [LABURTHE TOLRA *et al.*, 2001] LABURTHE TOLRA, B., DRAG, C., and PILLET, P. (2001). *Phys. Rev. A* **64**, 061401(R).
- [LANDAU and LIFCHITZ, 1975] LANDAU, L. and LIFCHITZ, E. (1975). *Mécanique Quantique*. Mir, Moscou.

- [LEDUC *et al.*, 2002] LEDUC, M., LÉONARD, J., PEREIRA DOS SANTOS, F., JAHIER, E., SCHWARTZ, S., and COHEN-TANNOUJJI, C. (2002). *Acta Phys. Pol. B* **33**, 2213.
- [LEO *et al.*, 2001] LEO, P. J., VENTURI, V., WHITTINGHAM, I. B., and BABB, J. F. (2001). *Phys. Rev. A* **64**, 042710.
- [LEVY and KELLER, 1963] LEVY, B. R. and KELLER, J. B. (1963). *J. Math. Phys.* **4**, 54.
- [LISDAT *et al.*, 2002] LISDAT, C., VANHAECKE, N., COMPARAT, D., and PILLET, P. (2002). *Eur. Phys. J. D* **21**, 299–309.
- [LÉONARD, 2003] LÉONARD, J. (2003). *Photoassociation de l'hélium métastable au voisinage de la condensation de Bose-Einstein et formation de dimères géants*. PhD thesis, Université Paris VI.
- [LÉONARD *et al.*, 2004] LÉONARD, J., MOSK, A. P., WALHOUT, M., VAN DER STRATEN, P., LEDUC, M., and COHEN-TANNOUJJI, C. (2004). *Phys. Rev. A* **69**, 032702.
- [LÉONARD *et al.*, 2003] LÉONARD, J., M. WALHOUT, MOSK, A. P., MÜLLER, T., LEDUC, M., and COHEN-TANNOUJJI, C. (2003). *Phys. Rev. Lett.* **91**, 073203.
- [LOUNIS and COHEN-TANNOUJJI, 1992] LOUNIS, B. and COHEN-TANNOUJJI, C. (1992). *J. Phys. II (France)* **2**, 579.
- [MASTWIJK *et al.*, 1998] MASTWIJK, H. C., THOMSEN, J. W., VAN DER STRATEN, P., and NIEHAUS, A. (1998). *Phys. Rev. Lett.* **80**, 5516.
- [MCKENZIE *et al.*, 2002] MCKENZIE, C., HECKER DENSCHLAG, J., HÄFFNER, H., BROWAEYS, A., LUÍS, DE ARAUJO, E. E., FATEMI, F. K., JONES, K. M., SIMSARIAN, J. E., CHO, D., SIMONI, A., TIESINGA, E., JULIENNE, P. S., HELMERSON, K., LETT, P. D., ROLSTON, S. L., and PHILLIPS, W. D. (2002). *Phys. Rev. Lett.* **88**, 120403.
- [MCLONE and POWER, 1964] MCLONE, R. and POWER, E. (1964). *Mathematika* **11**, 91.
- [METCALF and VAN DER STRATEN, 1999] METCALF, H. J. and VAN DER STRATEN, P. (1999). *Laser cooling and trapping*. Springer, New York.
- [MÜLLER *et al.*, 1991] MÜLLER, M. W., MERZ, A., RUF, M.-W., HOTOP, H., MEYER, W., and MOVRE, M. (1991). *Z. Physik D* **21**, 89.
- [MOAL *et al.*, 2006] MOAL, S., PORTIER, M., KIM, J., DUGUÉ, J., RAPOL, U., LEDUC, M., and COHEN-TANNOUJJI, C. (2006). *Phys. Rev. Lett.* **96**, 023203.
- [NAPOLITANO *et al.*, 1994] NAPOLITANO, R., WEINER, J., WILLIAMS, C. J., and JULIENNE, P. S. (1994). *Phys. Rev. Lett.* **73**, 1352.
- [PEDRI *et al.*, 2003] PEDRI, P., GUÉRY-ODELIN, D., and STRINGARI, S. (2003). *Phys. Rev. A* **68**, 043608.
- [PEREIRA DOS SANTOS, 2002] PEREIRA DOS SANTOS, F. (2002). *Condensation de Bose-Einstein de l'hélium métastable*. PhD thesis, Université Paris VI.
- [PEREIRA DOS SANTOS *et al.*, 2001] PEREIRA DOS SANTOS, F., LÉONARD, J., WANG, J., BARRELET, C. J., PERALES, F., RASEL, E., UNNIKRISHNAN, C. S., LEDUC, M., and COHEN-TANNOUJJI, C. (2001). *Phys. Rev. Lett.* **86**, 3459.
- [PRODAN *et al.*, 2003] PRODAN, I. D., PICHLER, M., JUNKER, M., HULET, R. G., and BOHN, J. L. (2003). *Phys. Rev. Lett.* **91**, 080402.
- [PRZYBYTEK and JEZIORSKI, 2005] PRZYBYTEK, M. and JEZIORSKI, B. (2005). *J. Chem. Phys.* **123**, 134315.

- [ROBERT *et al.*, 2001] ROBERT, A., SIRJEAN, O., BROWAEYS, A., POUPARD, J., NOWAK, S., BOIRON, D., WESTBROOK, C. I., and ASPECT, A. (2001). *Science* **292**, 461.
- [SAMUELIS *et al.*, 2003] SAMUELIS, C., FALKE, S., LAUE, T., PELLEGRINI, P., DULIEU, O., KNÖCKEL, H., and TIEMANN, E. (2003). *Eur. Phys. J. D* **26**, 307).
- [SCHLÖDER *et al.*, 2003] SCHLÖDER, U., DEUSCHLE, T., SILBER, C., and ZIMMERMANN, C. (2003). *Phys. Rev. A* **68**, 051403(R).
- [SCHUSTER *et al.*, 2001] SCHUSTER, J., MARTE, A., AMTAGE, S., SANG, B., REMPE, G., and BEIJERINCK, H. C. W. (2001). *Phys. Rev. Lett.* **87**, 170404.
- [SEIDELIN *et al.*, 2003] SEIDELIN, S., SIRJEAN, O., VIANA GOMES, J., BOIRON, D., WESTBROOK, C. I., and ASPECT, A. (2003). *J. Opt. B : Quantum Semiclass. Opt.* **5**, S112–S118.
- [SEIDELIN *et al.*, 2004] SEIDELIN, S., VIANA GOMES, J., HOPPELER, R., SIRJEAN, O., BOIRON, D., ASPECT, A., and WESTBROOK, C. I. (2004). *Phys. Rev. Lett.* **93**, 090409.
- [SHLYAPNIKOV *et al.*, 1994] SHLYAPNIKOV, G. V., WALRAVEN, J. T. M., RAHMANOV, U. M., and REYNOLDS, M. W. (1994). *Phys. Rev. Lett.* **73**, 3247.
- [SIMONI *et al.*, 2002] SIMONI, A., JULIENNE, P. S., TIESINGA, E., and WILLIAMS, C. J. (2002). *Phys. Rev. A* **66**, 063406.
- [SIRJEAN, 2003] SIRJEAN, O. (2003). *Collisions ionisantes : un nouveau diagnostic pour les condensats de Bose-Einstein d'hélium métastable*. PhD thesis, Université Paris XI.
- [SIRJEAN *et al.*, 2002] SIRJEAN, O., SEIDELIN, S., VIANA GOMES, J., BOIRON, D., WESTBROOK, C. I., ASPECT, A., and SHLYAPNIKOV, G. V. (2002). *Phys. Rev. Lett.* **89**, 220406.
- [STACE *et al.*, 1998] STACE, T., LUITEN, A. N., and KOVACICH, R. P. (1998). *Meas. Sci. Technol.* **9**, 1635.
- [STEPHEN, 1964] STEPHEN, M. J. (1964). *J. Chem. Phys.* **40**, 669.
- [STÄRCK and MEYER, 1994] STÄRCK, J. and MEYER, W. (1994). *Chem. Phys. Lett.* **225**, 229.
- [STWALLEY *et al.*, 1978] STWALLEY, W. C., UANG, Y.-H., and PICHLER, G. (1978). *Phys. Rev. Lett.* **41**, 1164.
- [TOL *et al.*, 2004] TOL, P. J. J., HOGERVORST, W., and VASSEN, W. (2004). *Phys. Rev. A* **70**, 013404.
- [VENTURI *et al.*, 1999] VENTURI, V., WHITTINGHAM, I. B., LEO, P. J., and PEACH, G. (1999). *Phys. Rev. A* **60**, 4635.
- [WEINER *et al.*, 1999] WEINER, J., BAGNATO, V. S., ZILIO, S., and JULIENNE, P. S. (1999). *Rev. Mod. Phys.* **71**, 1.
- [WILLIAMS *et al.*, 1999] WILLIAMS, C. J., TIESINGA, E., JULIENNE, P. S., WANG, H., STWALLEY, W. C., and GOULD, P. L. (1999). *Phys. Rev. A* **60**, 4427.
- [WINKLER *et al.*, 2005] WINKLER, K., THALHAMMER, G., THEIS, M., RITSCH, H., GRIMM, R., and HECKER DENSCHLAG, J. (2005). *Phys. Rev. Lett.* **95**, 063202.
- [WYNAR *et al.*, 2000] WYNAR, R., FREELAND, R. S., HAN, D. J., RYU, C., and HEINZEN, D. J. (2000). *Science* **287**, 1016.
- [YAN and BABB, 1998] YAN, Z.-C. and BABB, J. F. (1998). *Phys. Rev. A* **58**, 1247.

PHOTOASSOCIATION À 2 PHOTONS DE L'HÉLIUM MÉTASTABLE ULTRA-FROID ET MESURE DE LA LONGUEUR DE DIFFUSION EN ONDE S

Résumé :

Au voisinage de la condensation de Bose-Einstein, les propriétés collisionnelles d'un gaz dilué d'hélium métastable He^* dans l'état 2^3S_1 sont gouvernées par les collisions auto-ionisantes de type Penning, et par la longueur de diffusion en onde s , notée a . Nous avons mesuré a par photoassociation à deux photons formant une molécule contenant deux atomes métastables He^* dans l'état le moins lié du potentiel d'interaction entre deux atomes métastables polarisés de spin. La mesure de l'énergie de liaison de cette molécule par résonance noire atomes-molécules permet d'en déduire la longueur de diffusion a , que l'on a pu déterminer avec une grande précision ($a = 7.5105 \pm 0.0025$ nm), et qui ne dépend que très peu de la théorie : c'est donc une mesure directe. De plus, la durée de vie des molécules créées par spectroscopie à deux photons est liée à l'ionisation Penning entre les deux atomes He^* qui la composent. Sa mesure permet de mieux comprendre le mécanisme de ce type de collisions.

Mots clés : Atomes ultra-froids, hélium métastable, condensation de Bose-Einstein, longueur de diffusion, photoassociation, potentiels à purement longue portée, spectroscopie, effet Raman, durée de vie, molécule.

2-PHOTON PHOTOASSOCIATION OF ULTRA-COLD METASTABLE HELIUM AND MEASUREMENT OF THE S -WAVE SCATTERING LENGTH

Summary :

In the vicinity of Bose-Einstein condensation, the collisional properties of a dilute gas of metastable helium He^* in the state 2^3S_1 are governed by the rate of ionizing Penning collisions and the s -wave scattering length a . Thus, we measured a by a 2-photon photoassociation experiment, which allows to create a molecule with two metastable atoms He^* in the least bound state of the interaction potential between two metastable atoms which are spin polarized. The measure of this bound state using the atoms-molecules dark resonance allows to deduce the scattering length a , which is determined with a large accuracy ($a = 7.5105 \pm 0.0025$ nm), and which depends not much on theory : it is a direct measurement. More ones, the lifetime of molecules formed by 2-photon spectroscopy is linked to Penning ionization between the two bound He^* atoms. Its measurement allows to understand the mechanism of these collisions.

Key words : ultra-cold atoms, metastable helium, Bose-Einstein condensation, scattering length, photoassociation, purely long-range potentials, spectroscopy, Raman effect, lifetime, molecule.