



HAL
open science

Spectroscopie Rydberg et excitation du coeur isolé d'atomes d'ytterbium ultra-froids

Henri Lehec

► **To cite this version:**

Henri Lehec. Spectroscopie Rydberg et excitation du coeur isolé d'atomes d'ytterbium ultra-froids. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Université Paris Saclay (COmUE), 2017. Français. NNT : 2017SACLS566 . tel-01698466

HAL Id: tel-01698466

<https://theses.hal.science/tel-01698466>

Submitted on 1 Feb 2018

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.

Spectroscopie Rydberg et excitation du cœur isolé d'atomes d'ytterbium ultra-froids

Thèse de doctorat de l'Université Paris-Saclay
préparée à l'université Paris-Sud

École doctorale n°572 Ondes et matière (EDOM)
Spécialité de doctorat: Physique quantique

Thèse présentée et soutenue à Orsay, le 18 décembre 2017, par

M. Henri Lehec

Composition du Jury :

Éric Charron Professeur, Université Paris-Sud (ISMO)	Président
Frédéric Merkt Professeur, ETH Zürich	Rapporteur
Michel Brune Directeur de recherche, CNRS (LKB)	Rapporteur
Hélène Perrin Directrice de recherche, CNRS (LPL)	Examineur
Arnaud Landragin Directeur de recherche, CNRS (SYRTE)	Examineur
Pierre Pillet Directeur de recherche, CNRS (LAC)	Directeur de thèse
Patrick Cheinet Chargé de recherche, CNRS (LAC)	Invité

Remerciements

Tout d'abord, j'aimerais remercier les rapporteurs Frédéric Merkt et Michel Brune, qui ont beaucoup apporté au manuscrit grâce à leur remarques pertinentes, et Hélène Perrin, Arnaud Landragin et Éric Charron pour avoir accepté de faire partie du jury.

Durant ces trois années de thèse, j'ai travaillé avec plusieurs personnes, qui ont contribué au développement de l'expérience *Rydberg Ytterbium* et que j'aimerais remercier. En premier lieu, je remercie Pierre Pillet, mon directeur de thèse. Je remercie Patrick Cheinet, chercheur permanent sur l'expérience, pour toutes les choses qu'il m'a apprises en physique. Bonne chance pour la suite. Je remercie Alexandre, qui m'a précédé en tant que thésard sur l'expérience et à qui l'on doit, entre autres, le programme d'analyse MQDT. Et puis je remercie Wilfried, post-doc pendant mes deux premières années, qui m'a appris beaucoup de choses et avec qui on aura bien rigolé. J'aimerais aussi remercier les anciens stagiaires de M2 Emile et Xin qui ont aussi beaucoup apporté à l'expérience. Et puis je remercie tout les autres membres de l'équipe MFC : Daniel, Hans, Yan, Jacques, Anne, Élias, Alok, Mélissa, Colin et puis je souhaite bonne chance aux nouveaux thésards de l'équipe : Thibault et Raphaël - *l'avenir est aux acharnés*. Pour finir, merci à tous les autres chercheurs du laboratoire Aimé Cotton qui ont contribué à ce travail de thèse, notamment Eliane Luc-Koenig, qui a beaucoup apporté sur la MQDT, et Laurence Pruvost, qui nous a bien aidé sur la partie auto-ionisation.

Bien sûr, je remercie tous les ingénieurs et techniciens de l'électronique, du bureau d'étude, de la mécanique et du service informatique : Alain, Jean-Paul, Élie, Bruno, Pascal, Jérôme, Michèle et tout ceux que j'oublie...

Je remercie les doctorants Aurélien, Aliou, Hiba, Clément, Paul, Benjamin, Caroline et tous les autres. Bonne chance pour la fin de votre thèse.

Et puis, spéciale dédicace à la famille : mon neveu Marceau, mes sœurs Louise et Elisabeth, mon frère Joseph, mon papa et ma môman et aux amis Louis, Boris, Manzano, Éric, CamCam, Margot, les Didgepones ... et à tous les autres. Et puis pour finir en beauté, merci à Antonine...

Table des matières

Glossaire et notations	7
Introduction générale	9
1 Éléments sur la physique des atomes de Rydberg	13
1.1 Éléments généraux sur les atomes de Rydberg	14
1.1.1 Fonctions d'onde et énergie des états de Rydberg : concept de défaut quantique	14
1.1.2 Zoologie des propriétés des atomes de Rydberg	18
1.1.3 Revue de quelques expériences d'atomes de Rydberg	24
1.2 Atomes à deux électrons de valence et états de Rydberg	32
1.2.1 Éléments sur la spectroscopie des atomes divalents	32
1.2.2 L'excitation du cœur isolé	37
1.2.3 Perspective de l'expérience <i>Rydberg Ytterbium</i>	42
2 Production d'un gaz froid d'atomes d'ytterbium dans des états de Rydberg	47
2.1 Production d'un nuage d'atomes froids d'ytterbium	48
2.1.1 Propriétés générales de l'atome d'ytterbium	48
2.1.2 Dispositif expérimental	50
2.1.3 Source atomique	51
2.1.4 Ralentissement Zeeman du jet atomique	53
2.1.5 Collimation du jet et chargement du MOT 3D	60
2.2 Excitation vers des états de Rydberg et détection	67
2.2.1 Excitation Rydberg	67
2.2.2 Détection des atomes de Rydberg : ionisation en champ	70
2.2.3 Automatisation de l'expérience	73
Conclusion et perspectives	75
3 Spectroscopie des états de Rydberg de l'ytterbium	77
3.1 La théorie du défaut quantique à plusieurs voies	78
3.1.1 Le modèle théorique MQDT	78
3.1.2 Formulations de la MQDT	81
3.1.3 Représentation de Lu-Fano des états liés	82
3.1.4 Le programme d'analyse numérique MQDT	83
3.2 Spectroscopie optique des séries $6sns$ et $6snd$	86
3.2.1 Dispositif expérimental pour les mesures spectroscopiques	87
3.2.2 Mesure et analyse des spectres	89
3.2.3 Évaluation de l'incertitude de mesure	91

3.2.4	Résultats et analyses MQDT	95
3.3	Spectroscopie micro-onde des séries $6snp$ et $6snf$	102
3.3.1	Dispositif expérimental micro-onde	102
3.3.2	Analyse du signal et des spectres	103
3.3.3	Identification des états par mesure du facteur de Landé	106
3.3.4	Résultats et analyses MQDT	108
	Conclusion et perspectives	115
4	Manipulations optiques dans l'état de Rydberg : étude de l'excitation du cœur isolé dans l'ytterbium	117
4.1	L'excitation du cœur isolé	118
4.1.1	Le modèle à électrons indépendants	119
4.1.2	Calcul des déplacements d'énergie de niveaux du cœur ionique dans les états de Rydberg de grand moment orbital	120
4.1.3	Calcul des taux d'auto-ionisation	124
4.2	Étude expérimentale de l'excitation du cœur isolé dans l'ytterbium	127
4.2.1	Dispositif expérimental	127
4.2.2	Création des états de Rydberg de $l > 4$, technique du Stark-Switching	129
4.2.3	Spectre d'auto-ionisation par excitation optique du cœur isolé	133
4.2.4	Étude de l'auto-ionisation des états de faible moment orbital	136
4.2.5	Étude de l'auto-ionisation des états de grand moment orbital	139
4.3	Perspectives : piégeage optique des atomes de Rydberg	146
4.3.1	Force optique et polarisabilité dynamique des lasers	146
4.3.2	Le cas particulier des Rydberg, calcul des longueurs d'onde magiques	147
	Conclusion	151
	Conclusion générale	153
	Annexe	155
.1	Constantes	155
.1.1	L'atome Yb 174	155
.1.2	L'ion Yb ⁺ 174	157
.2	Données de spectroscopie Rydberg	158
.2.1	Spectroscopie optique	158
.2.2	Spectroscopie micro-onde	161
	Bibliographie	174

Glossaire et notations

Acronymes

AOM

Modulateur acousto-optique (*Acousto-optic modulator*)

ICE

Excitation du coeur isolé (*Isolated Core Excitation*)

MCP

Galette de microcanaux (*Microchannel Plate*)

MOT

Piège magnéto-optique (*Magneto-optical trap*)

MQDT

Théorie du défaut quantique à plusieurs voies (*Multi-channel Quantum Defect Theory*)

TiSa

Laser Titane-Saphire

UNP

Plasma neutre ultra-froid (*Ultracold Neutral Plasma*)

Système d'unités

Dans le premier et le troisième chapitre de cette thèse, nous utiliserons les unités atomiques définies par :

$$\hbar = m_e = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} = a_0 = 1$$

Introduction générale

Les atomes de Rydberg sont des outils formidables pour l'étude de phénomènes fondamentaux rencontrés en mécanique quantique. Dans ces états de nombre quantique principal très élevé ($n > 20$), les atomes ont une taille gigantesque à l'échelle atomique. Par exemple à $n = 100$, la taille typique est d'environ $1 \mu\text{m}$ alors que celle-ci est de l'ordre de 50 pm pour un atome dans son état fondamental ! Cette grande taille confère aux atomes des propriétés d'interaction forte et longue portée qui les rendent particulièrement intéressants pour la simulation quantique [1, 2].

Une des manifestations de ces interactions est le *blocage Rydberg* [3]. Cet effet peut être utilisé pour réaliser des portes quantiques [4, 5] et ouvre la voie à l'information quantique avec des atomes de Rydberg. Considérons deux atomes voisins dans un gaz d'atomes, l'excitation du premier atome dans un état de Rydberg peut empêcher l'excitation du second puisque sa résonance est déplacée en énergie par interaction van der Waals (C_6/r_{12}^6) (ou dipôle-dipôle (C_3/r_{12}^3)). L'état du premier atome peut ainsi *contrôler* l'état du second, ce qui est le principe même d'une porte logique. Des manifestations expérimentales de ce mécanisme ont pu être mises en évidence grâce à des pinces optiques [6, 7]. Des études plus récentes avec un plus grand nombre d'atomes ont montré la possibilité d'utiliser ce type de dispositif pour simuler les systèmes de spins en interaction [8]. D'autres expériences, réalisées dans des réseaux optiques [9, 10], se sont attachées à l'étude des corrélations spatiales et ont mis en évidence des structures ordonnées dans l'excitation Rydberg des atomes. Toutes ces études ouvrent la voie à la simulation quantique avec les atomes de Rydberg. L'intérêt des gaz de Rydberg pour ce domaine est que les interactions y sont à

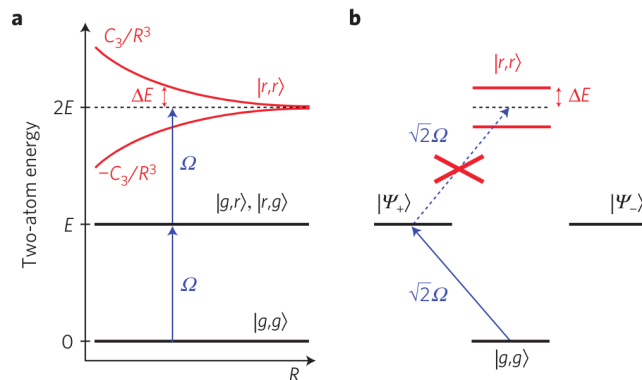


FIGURE 1 – Schéma du mécanisme de blocage dipolaire dans un système à deux atomes. L'excitation d'un premier atome empêche l'excitation du deuxième atome à cause de la forte interaction qui décale la résonance de ce dernier. L'état du deuxième atome est ainsi conditionné par l'état du premier. Tiré de [6].

longue portée, par opposition aux gaz d'atomes dans l'état fondamental où elles sont en général à courte portée¹.

D'autre part, les propriétés d'interaction des Rydberg ont la particularité d'être, dans une certaine mesure, ajustables. Or la possibilité de contrôler les paramètres d'interaction est un élément essentiel de la simulation quantique. Avec les atomes de Rydberg, un moyen de contrôle très puissant est le champ électrique. En effet la polarisabilité des atomes dans l'état de Rydberg est très forte, si bien qu'il est possible d'accorder les niveaux d'énergie et ce faisant, le régime d'interaction. À champ nul, on est dans un régime dipôle induit-dipôle induit en C_6/r_{12}^6 tandis qu'en champ, on peut atteindre le régime d'interaction entre dipôles permanents en C_3/r_{12}^3 .

Une autre manifestation importante de ces interactions est le mécanisme de transfert résonant de Förster [11]. Ce mécanisme est un transfert d'énergie entre atomes, véhiculé par l'interaction dipôle-dipôle. Dans les atomes de Rydberg, l'application d'un champ électrique peut déplacer fortement les niveaux d'énergies, si bien que l'on peut trouver un champ pour lequel il y a résonance en énergie entre deux états-à-deux-corps différents. Dans le sodium par exemple, à un certain champ, le transfert suivant est résonant :

$$ns + ns \rightarrow np + (n + 1)p \quad (1)$$

Ce mécanisme a pu être observé pour la première fois au début des années 1980 par l'équipe de Tom Gallagher [12] dans un jet atomique. Plus tard, les techniques de refroidissement atomique ont fait évoluer ce domaine de recherche dans la mesure où, dans un gaz de Rydberg gelé, les densités d'atomes et les temps caractéristiques d'interaction sont considérablement augmentés. Dans ces systèmes, dès lors qu'un seul transfert résonant à deux corps se produit, les transferts d'énergies vers les atomes voisins vont permettre d'effectuer à nouveau l'échange à deux corps. Pour comprendre ce type de système, on doit alors tenir compte d'effets plus complexes qui impliquent un plus grand nombre d'atomes [13, 14]. On rentre ainsi dans le domaine particulier du problème à plusieurs corps (*many-body problem*).

En parallèle à ces études, les expériences d'électrodynamique quantique en cavité réalisées au laboratoire Kastler Brossel à Paris ont permis de vérifier certains fondements de la théorie quantique en utilisant des atomes de Rydberg traversant une cavité micro-onde. Ces chercheurs ont pu entre autre observer l'essence de la décohérence quantique [15].

Notre projet s'inscrit dans la continuité des expériences étudiant les gaz de Rydberg froids réalisées au laboratoire Aimé Cotton. L'idée générale est d'utiliser des atomes de Rydberg manipulés par laser pour étudier les systèmes physiques en interaction à longue portée. Pour un atome dans son état fondamental, les techniques d'imagerie et le piégeage par laser sont permises par la présence de transitions optiques fortes : transposer celles-ci aux atomes de Rydberg offrirait des opportunités pour le domaine de la simulation quantique. Malheureusement, pour les atomes de Rydberg alcalins, l'absence de transitions optiques fortes rend difficile l'application de ces techniques. Notre approche expérimentale consiste à utiliser un atome à deux électrons de valence optiquement actifs : l'ytterbium. Une fois l'atome excité dans un état de Rydberg, la présence d'un deuxième

1. Notons que pour les atomes très magnétiques comme le chrome, erbium, dysprosium *etc.*, les interactions peuvent être aussi à longue portée (C_3/r_{12}^3)

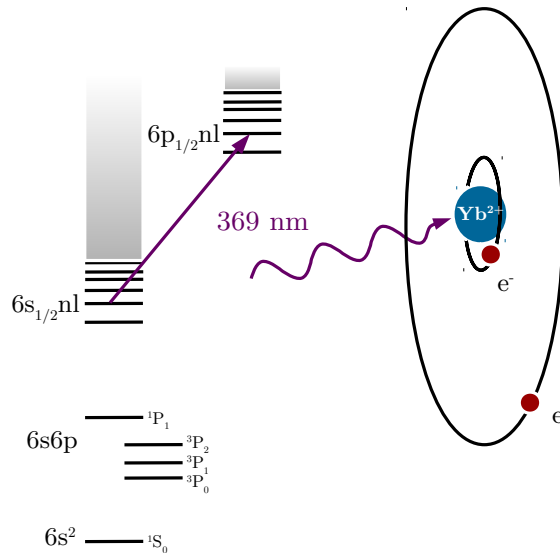


FIGURE 2 – L’excitation du cœur isolé dans l’ytterbium. On excite une transition du cœur ionique Yb^+ sans perturber l’électron de Rydberg. Les transitions du cœur ionique permettront la manipulation de l’atome dans l’état de Rydberg.

électron permet d’agir sur le cœur ionique [16, 17, 18]. Nous allons ainsi pouvoir manipuler l’atome grâce aux transitions optiques du cœur Yb^+ tout en conservant l’électron de Rydberg, celui-ci étant simplement spectateur. Lorsque l’atome est doublement excité, il peut néanmoins auto-ioniser puisque son énergie se situe au delà de la limite d’ionisation de la configuration fondamentale $6s$ du cœur ionique. La possibilité de s’affranchir totalement de l’auto-ionisation est une question ouverte. On donnera des éléments de réponse dans ce travail de thèse.

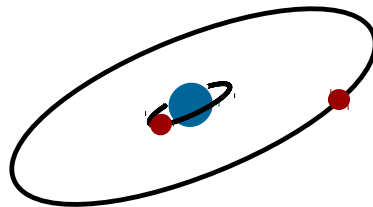
À cause des corrélations entre électrons de valence, la spectroscopie de l’ytterbium est particulièrement complexe par rapport à celle des atomes alcalins. Sa connaissance est cependant un prérequis indispensable pour calculer les propriétés d’interaction et de polarisabilité en champ électrique. Cette thèse se situe dans la lignée de celle d’Alexandre Zuliani [19], au cours de laquelle il a conçu le dispositif expérimental et développé un modèle numérique implémentant la théorie du défaut quantique à plusieurs voies [20] (MQDT) pour l’étude de la spectroscopie Rydberg de l’ytterbium. Le travail que j’ai réalisé au cours de ma thèse est concentré sur le montage de l’expérience et sur les mesures des niveaux d’énergies des séries $6sns$, $6snp$, $6snd$ et $6snf$ de l’ytterbium. Cette étude expérimentale, couplée à une analyse MQDT a permis d’améliorer considérablement la connaissance de la spectroscopie des séries Rydberg étudiées. Afin d’étudier les possibilités de manipulation optique des atomes de Rydberg, une analyse théorique et expérimentale de l’excitation du cœur isolé pour les états de Rydberg de grand moment orbital a ensuite été réalisée.

Cette thèse est articulée comme suit :

- Le premier chapitre sera une introduction à la physique des atomes de Rydberg. En commençant par des considérations générales, je présenterai ensuite les spécificités qu'offrent les atomes de Rydberg à deux électrons actifs.
- Le second chapitre sera centré sur la présentation du dispositif expérimental, depuis le refroidissement des atomes jusqu'à l'excitation Rydberg.
- Le troisième chapitre sera consacré à la spectroscopie des états de Rydberg. Dans une première section, j'introduirai le modèle théorique utilisé : la théorie du défaut quantique à plusieurs voies. Les sections suivantes seront consacrées aux mesures expérimentales et aux analyses réalisées à l'aide du modèle MQDT.
- Dans le quatrième chapitre, on s'attachera à étudier de plus près l'excitation du cœur isolé. On reprendra, pour ce faire, le modèle à électrons indépendants [21] afin de calculer les déplacements énergétiques par rapport à la transition de l'ion et les taux d'auto-ionisation pour les états de Rydberg de grand moment orbital. Je présenterai ensuite les mesures des spectres d'excitation du cœur isolé réalisées en fin de thèse.

Chapitre 1

Éléments sur la physique des atomes de Rydberg



Sommaire

1.1	Éléments généraux sur les atomes de Rydberg	14
1.1.1	Fonctions d'onde et énergie des états de Rydberg : concept de défaut quantique	14
1.1.2	Zoologie des propriétés des atomes de Rydberg	18
1.1.3	Revue de quelques expériences d'atomes de Rydberg	24
1.2	Atomes à deux électrons de valence et états de Rydberg . . .	32
1.2.1	Éléments sur la spectroscopie des atomes divalents	32
1.2.2	L'excitation du cœur isolé	37
1.2.3	Perspective de l'expérience <i>Rydberg Ytterbium</i>	42

1.1 Eléments généraux sur les atomes de Rydberg

Dans cette section, on donnera quelques éléments de base sur la physique des atomes de Rydberg à un électron actif. On passera ensuite en revue quelques expériences clés pour mettre en lumière l'importance de ce domaine de recherche.

1.1.1 Fonctions d'onde et énergie des états de Rydberg : concept de défaut quantique

Un atome de Rydberg est un atome qui possède un électron excité sur un niveau de nombre quantique principal n élevé. Dans le cas des atomes de Rydberg à un électron actif, l'atome sera donc composé d'une charge négative : l'électron, situé sur une orbitale relativement éloignée d'une charge positive et étendue spatialement : le cœur ionique. Dans une certaine mesure, ce système est similaire à l'atome d'hydrogène, il convient donc d'utiliser les mêmes méthodes pour le décrire. L'influence des charges de cœur sera ensuite prise en compte grâce à un outil théorique : le défaut quantique.

Le modèle de l'atome d'hydrogène

L'atome de Rydberg est un système composé d'une charge ponctuelle négative qui subit le potentiel coulombien $V(r)$ du cœur ionique A^+ , chargé positivement. Pour accéder à la fonction d'onde atomique ψ , il convient de résoudre l'équation de Schrödinger $\hat{H}\psi = E\psi$ où \hat{H} est l'hamiltonien et E l'énergie propre. En négligeant les effets spin-orbite, l'hamiltonien s'écrit :

$$\hat{H} = -\frac{\nabla^2}{2} + V(r) \quad (1.1)$$

Au premier ordre, on considère que le cœur ionique est une charge ponctuelle. Le potentiel s'exprime ainsi simplement par $V(r) = -1/r$. La résolution de cette équation est un problème classique de mécanique quantique détaillé dans de nombreux ouvrages (citons notamment [22, 23]), on décrira donc uniquement les grandes étapes de sa résolution, laissant la liberté au lecteur d'approfondir plus, s'il le souhaite. En développant le laplacien en coordonnées sphériques on peut mettre l'hamiltonien sous la forme :

$$\hat{H} = \frac{1}{2} \left(\frac{\partial^2}{\partial r^2} + \frac{2}{r} \frac{\partial}{\partial r} - \frac{\hat{L}^2}{r^2} \right) - \frac{1}{r} \quad (1.2)$$

où l'opérateur moment cinétique \hat{L} est le seul opérateur qui fait intervenir les variables angulaires. Il convient de décomposer la fonction d'onde en produit de la fonction d'onde radiale et de la fonction d'onde angulaire $\psi(r, \theta, \phi) = R(r)Y(\theta, \phi)$. On peut alors isoler partie radiale et partie angulaire de l'équation de Schrödinger :

$$\frac{r^2}{R(r)} \left(\frac{\partial^2 R(r)}{\partial r^2} + \frac{2}{r} \frac{\partial R(r)}{\partial r} + 2(E + \frac{1}{r})R(r) \right) + \frac{1}{Y(\theta, \phi)} \hat{L}^2 Y(\theta, \phi) = 0 \quad (1.3)$$

Les deux membres de cette équation font intervenir des variables indépendantes, on peut donc séparer cette équation en deux équations distinctes : ses deux membres sont opposés et égaux respectivement à une constante $\pm\lambda$. Pour des raisons pratiques, on va prendre $\lambda = l(l+1)$ où l est un entier positif. La partie angulaire de l'équation (1.3) peut donc s'écrire :

$$\hat{L}^2 Y(\theta, \phi) = l(l+1)Y(\theta, \phi) \quad (1.4)$$

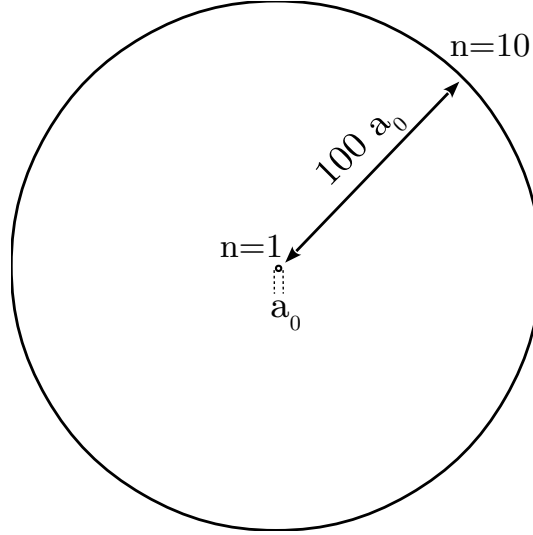


FIGURE 1.1 – Schéma des orbites de Bohr pour $n = 1$ et pour $n = 10$. Cette figure illustre les différentes échelles mises en jeu, la taille typique de l'orbitale électronique pour un atome de nombre quantique principal $n = 10$ est 100 fois plus grande que celle pour $n = 1$! Figure inspirée de [23]

On met ainsi en évidence que les solutions de cette dernière équation sont les harmoniques sphériques $Y_{l,m}(\theta, \phi)$, paramétrées par les nombres quantiques l et m , et dont on peut retrouver l'expression dans de nombreux ouvrages ([22] par exemple). En posant $u_{E,l}(r) = r \times R(r)$, la partie radiale de l'équation (1.3) peut se mettre sous la forme :

$$\frac{\partial^2 u_{E,l}(r)}{\partial r^2} + \left(2E + \frac{2}{r} - \frac{l(l+1)}{r^2} \right) u_{E,l}(r) = 0 \quad (1.5)$$

Les solutions de cette équation sont les fonctions régulières $f(E, l, r)$ et irrégulières $g(E, l, r)$ de Coulomb [23]. Elles ont la particularité d'être oscillantes et déphasées de $\pi/2$ l'une par rapport à l'autre. En appliquant les conditions aux limites pour $r \rightarrow 0$ et $r \rightarrow \infty$, on montre que la seule solution tangible (qui ne diverge pas aux limites) est la fonction régulière $f(E, l, r)$ et que les énergies propres sont données par [23] :

$$E_n = -\frac{1}{2n^2} \text{ avec } n \geq l + 1 \quad (1.6)$$

Pour l'atome d'hydrogène, les fonctions propres et les valeurs propres de l'hamiltonien sont donc :

$$\psi_{n,l,m}(\vec{r}) = \frac{f(E, l, r)}{r} Y_{l,m}(\theta, \phi) \text{ et } E_n = -\frac{1}{2n^2} \quad (1.7)$$

Perturbations du cœur ionique et concept de défaut quantique

Les solutions obtenues sont valables pour un électron chargé $-e$ dans le potentiel créé par un cœur ionique ponctuel chargé $+e$. Dans le cas plus général des atomes de Rydberg alcalins A , ces solutions sont valables uniquement quand l'électron de Rydberg est loin du cœur ionique. Lorsque l'électron de Rydberg se rapproche et pénètre dans le cœur ionique A^+ , l'effet d'écrantage des électrons du cœur sera plus faible, il ressentira donc

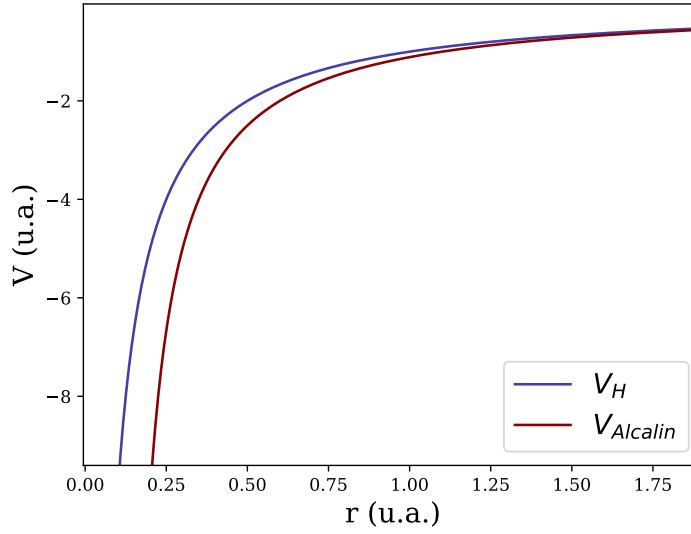


FIGURE 1.2 – Représentation schématique du potentiel ressenti par l'électron de Rydberg V en fonction de la distance au cœur r

un potentiel plus fort (figure 1.2). Dans la mesure où le potentiel est plus fort, l'énergie cinétique de l'électron sera nécessairement plus grande dans cette région : ceci a pour effet de réduire la longueur d'onde d'oscillation de la fonction d'onde radiale. Loin du cœur ionique, l'effet sur la fonction d'onde radiale sera donc uniquement un déphasage τ par rapport à la fonction d'onde radiale hydrogénoïde. Ce déphasage dû au cœur ionique sera pris en compte en prenant comme fonction d'onde électronique la superposition linéaire des fonctions de Coulomb suivante [23] :

$$u_{n,l}(r) = f(E, l, r) \cos(\tau) - g(E, l, r) \sin(\tau) \quad (1.8)$$

En appliquant les conditions aux limites pour cette fonction d'onde radiale, on démontre que l'énergie propre sera donnée par [23] :

$$E_{n,l} = -\frac{1}{2n^{*2}} = -\frac{1}{2(n - \delta_l)^2} \quad (1.9)$$

où n^* est le nombre quantique principal effectif et $\delta_l = \tau/\pi$ est le défaut quantique. En dehors du cœur ionique, les fonctions d'ondes seront elles données par :

$$\psi_{n,l,m}(\vec{r}) = \frac{f(E_{n,l}, l, r) \cos(\pi\delta_l) - g(E_{n,l}, l, r) \sin(\pi\delta_l)}{r} Y_{l,m}(\theta, \phi) \quad (1.10)$$

Ces fonctions d'ondes doivent donc être correctement normalisées. La partie angulaire l'étant déjà, il suffit simplement de normaliser la partie radiale. Comme la fonction de Coulomb g diverge quand $r \rightarrow 0$ et que la fonction f diverge quand $r \rightarrow \infty$, il convient de restreindre le volume d'intégration de la fonction d'onde entre le rayon du cœur ionique r_o (où la fonction d'onde est déjà très faible) et le point de retour classique r_i ; la condition de normalisation s'écrit donc :

$$\int_{r_o}^{r_i} u^2(r) dr = 1 \quad (1.11)$$

En utilisant une approximation W.K.B. de la fonction d'onde radiale [23], on démontre que la constante de normalisation de la fonction d'onde est donnée par $\sqrt{2/(\pi n^3)}$. Cette loi d'échelle en $1/n^{3/2}$ joue un rôle important pour comprendre les propriétés exacerbées des atomes de Rydberg.

Le défaut quantique, lois d'évolutions

En première approximation, le défaut quantique est indépendant de l'énergie de l'électron et donc de n . Sa donnée suffit donc pour caractériser une série¹ de Rydberg entière. Pour les niveaux de faible moment orbital, l'électron de Rydberg pénètre dans le cœur ionique, le défaut quantique sera alors donné par la différence des quantités de mouvement de l'électron de Rydberg intégrées sur le volume du cœur ionique pour l'atome considéré par rapport à l'atome d'hydrogène [24]. Ceci est difficilement calculable de manière exacte², les défauts quantiques sont usuellement mesurés expérimentalement [26, 27, 28]. Bien que l'évolution soit assez faible, il faut noter que le défaut quantique évolue avec l'énergie – et donc avec le nombre quantique principal n – des états de Rydberg. Il est alors possible de corriger le défaut quantique en fonction de n avec la formule de Ritz [29] :

$$\delta_{n,l,j} = \delta_{l,j}^{(0)} + \frac{\delta_{l,j}^{(2)}}{(n - \delta_{l,j}^{(0)})^2} + \frac{\delta_{l,j}^{(4)}}{(n - \delta_{l,j}^{(0)})^4} \quad (1.12)$$

Sur les tables 1.1 et 1.2 sont reportés les défauts quantiques pour les atomes de césium et de rubidium. On remarque que pour une même série, les défauts quantiques du rubidium sont inférieurs à ceux du césium : ceci est dû au fait que le césium possède un noyau plus chargé, l'accroissement du potentiel dans le cœur ionique est donc plus fort pour ce dernier.

Série	$\delta^{(0)}$	$\delta^{(2)}$
ns	4.0493532(4)	0.2391
$np_{1/2}$	3.5915871	0.36273
$np_{3/2}$	3.5590676	0.37469
$nd_{3/2}$ [26]	2.475365	0.5554
$nd_{5/2}$	2.4663144	0.01381
$nf_{5/2}$ [26]	0.033392	-0.191
$nf_{7/2}$ [26]	0.033537	-0.191

TABLE 1.1 – Les défauts quantiques pour les premières séries de Rydberg du césium, tiré de [28] sauf indication.

Série	$\delta^{(0)}$	$\delta^{(2)}$
ns	3.131 180	0.1784
$np_{1/2}$	2.654885	0.2900
$np_{3/2}$	2.641674	0.2950
$nd_{3/2}$	1.348092	-0.6029
$nd_{5/2}$	1.346466	-0.5960

TABLE 1.2 – Les défauts quantiques pour les premières séries de Rydberg du rubidium, tiré de [27]

En revanche, pour les états de grand moment orbital ($l > 3$ pour le rubidium et le césium), la position de la barrière centrifuge est au delà du rayon du cœur ionique. Il est alors possible d'évaluer le défaut quantique en suivant la méthode développée par [24]. Le

1. Dans la suite, une série de Rydberg désignera une série d'états caractérisés par un même nombre quantique orbital l , un même spin s , et un même nombre quantique de moment orbital total j

2. Des calculs *ab initio* peuvent néanmoins être réalisés, voir [25] et les travaux de Christian Jungen sur les molécules

potentiel ressenti par l'électron est la somme du potentiel coulombien et d'un potentiel électrostatique dû à la présence du cœur ionique :

$$V(r) = -1/r + \delta V(r) \quad (1.13)$$

On peut développer le potentiel électrostatique en ne retenant que les termes dipolaires et quadripolaires, il s'écrit alors :

$$\delta V(r) = -\frac{1}{2} \left(\frac{\alpha_d}{r^4} - \frac{\alpha_q}{r^6} \right) \quad (1.14)$$

où α_d et α_q sont des constantes propres à chaque atome que l'on n'explicitera pas ici. D'après la théorie des perturbations au premier ordre, l'énergie de l'état peut s'écrire :

$$E_{nl} = E_n + \langle n, l, j, m | \delta V(r) | n, l, j, m \rangle \quad (1.15)$$

où $E_n = -1/2n^2$ est l'énergie sans perturbation (i.e. l'énergie correspondant au cas de l'atome d'hydrogène). L'expression des éléments de matrice radiaux est présente dans [23] pour diverses puissances de l'opérateur \hat{r} . En faisant les approximations $l \gg 1$ et $l \ll n$, les éléments de matrices dipolaires et quadripolaires peuvent être approximés par :

$$\langle n, l, j, m | \frac{1}{r^4} | n, l, j, m \rangle \approx \frac{3}{2n^3 l^5} \quad (1.16)$$

$$\langle n, l, j, m | \frac{1}{r^6} | n, l, j, m \rangle \approx \frac{35}{8n^3 l^9} \quad (1.17)$$

Ce qui donne pour l'énergie :

$$E_{n,l} = -\frac{1}{2n^2} - \frac{1}{n^3} \left(\frac{3 \alpha_d}{4 l^5} + \frac{35 \alpha_q}{16 l^9} \right) \approx -\frac{1}{2(n - \delta_l)^2} \quad (1.18)$$

avec :

$$\delta_l = \frac{3 \alpha_d}{4 l^5} + \frac{35 \alpha_q}{16 l^9} \quad (1.19)$$

On voit ainsi que la loi de variation du défaut quantique avec l est drastiquement décroissante, les états de grand moment orbital deviennent rapidement quasi-dégénérés et rejoignent l'énergie $E = -1/2n^2$. Cette décroissance est la traduction du fait que la "périhélie" de l'orbitale Rydberg s'éloigne quand l augmente, diminuant ainsi l'influence de la distribution spatiale de charges du cœur ionique sur l'énergie de l'électron.

La description des états de Rydberg avec une théorie de défaut quantique s'est avérée très efficace pour les atomes alcalins. Nous verrons dans la section suivante (section 1.2) que pour les atomes à plusieurs électrons de valence, il faudra passer à une théorie qui prend en compte les perturbations des autres électrons de valence sur les niveaux d'énergie Rydberg : la théorie du défaut quantique à plusieurs voies.

1.1.2 Zoologie des propriétés des atomes de Rydberg

Les atomes de Rydberg ont des propriétés hors-normes, la plupart dépendantes du nombre quantique principal effectif n^* . Comme nous allons le voir dans cette section, la taille de ces atomes varie avec n^{*2} , elle est donc très grande et atteint rapidement le

micron. Dans la mesure où la distance électron-cœur ionique est grande, d'autres propriétés intéressantes apparaissent : forte polarisabilité en champ électrique, interactions à longue portée induites entre atomes etc... Un autre intérêt de cette forte dépendance en n^* est l'accordabilité des propriétés. Dans le contexte de développement de la simulation quantique, les atomes de Rydberg possèdent à cet égard un avantage considérable : le champ électrique appliqué ou le nombre quantique principal n pourront être en effet des paramètres pour ajuster les propriétés d'interaction.

Élément de matrice	Dépendance en n^*
$\langle r \rangle$	n^{*2}
$\langle r^2 \rangle$	n^{*4}
$\langle 1/r \rangle$	$1/n^{*2}$
$\langle 1/r^2 \rangle$	$1/n^{*3}$
$\langle 1/r^4 \rangle$	$1/n^{*3}$
$\langle 1/r^6 \rangle$	$1/n^{*3}$

TABLE 1.3 – Dépendance en n^* de quelques éléments de matrices, tirés de [23]

Une taille gigantesque

La propriété la plus impressionnante des atomes de Rydberg est la taille des orbitales atomiques. Celle-ci est évidemment déductible de l'élément de matrice $\langle r \rangle$, la loi d'échelle pour la taille moyenne de l'orbitale est donc :

$$r \propto n^{*2} \quad (1.20)$$

Par exemple pour l'état $40p$ du césium, elle est de 127 nm, ce qui est déjà spectaculaire en comparaison avec la taille d'un atome dans l'état fondamental, qui est typiquement de 50 pm.

Un temps de vie accru

Le temps de vie des états de Rydberg dépasse très largement les temps de vie des premiers niveaux excités. On peut anticiper cette propriété : pour passer de l'état excité à l'état fondamental, il faut que les fonctions d'onde des deux états se recouvrent. Or, comme on l'a vu précédemment le rayon typique de l'orbitale Rydberg étant très grand, le poids de sa fonction d'onde est très faible au niveau du rayon typique de la fonction d'onde de l'état fondamental.

L'électron de Rydberg ne se désexcite pas nécessairement directement dans l'état fondamental, il se désexcite en effet par cascade en passant par un ou plusieurs états intermédiaires. Le temps de vie est donc l'inverse de la somme des coefficients d'Einstein de toutes les transitions possibles de l'état Rydberg vers les états intermédiaires :

$$\tau_{n,l} = \frac{1}{\Gamma_{n,l}} = \left(\sum_{n'l'} A_{nl,n'l'} \right)^{-1} \quad (1.21)$$

Le coefficient d'Einstein a pour expression (en unité S.I.) [30] :

$$A_{nl,n'l'} = \frac{4e^2\omega_{nl,n'l'}^3 \max(l,l')}{3\hbar c^3} R_{nl}^{n'l'^2} \quad (1.22)$$

où $R_{nl}^{n'l'} = \int_0^\infty u_{n,l,j}(r)u_{n',l',j'}(r)dr$ est le recouvrement des fonctions d'ondes radiales de l'état de Rydberg et de l'état désexcité. Dans la mesure où l'état désexcité est un état de cœur, la partie de la fonction d'onde Rydberg qui contribue au recouvrement est la même pour chaque n , au facteur de normalisation près. La dépendance du coefficient d'Einstein avec n^* est donc en n^{*3} , on a donc la loi d'échelle suivante pour le temps de vie :

$$\boxed{\tau_{n,l} \propto n^{*3}} \quad (1.23)$$

Pour l'état $50p$ du césium par exemple, le temps de vie radiatif est d'environ $350 \mu s$, ce qui est très supérieur aux temps de vie typique des premiers niveaux excités qui n'excèdent pas la centaine de nanosecondes. La durée de vie réelle des états de Rydberg est néanmoins réduite par la relaxation due au rayonnement du corps noir. En effet, ce rayonnement thermique de faible énergie va provoquer des transitions vers des états voisins avec un taux qui peut être estimé par [23] :

$$\Gamma_n^{BB} \approx \frac{4\alpha^3 k_B T}{3n^{*2}} \quad (1.24)$$

Comme cette loi est en $1/n^{*2}$, les états de faible n ne seront pas affectés. En revanche, pour les états de n plus élevé le taux de désexcitation réel sera modifié :

$$\Gamma_n^{Reel} = \Gamma_{n,l} + \Gamma_n^{BB} \quad (1.25)$$

Par exemple pour l'état $50p$ du césium et à la température de 300 K, le temps de vie dû au rayonnement du corps noir est de $106 \mu s$, réduisant le temps de vie réel de l'état à $81 \mu s$ [30].

Une forte polarisabilité

Leur taille géante confère aux atomes de Rydberg une forte sensibilité aux champs électriques statiques. Cette polarisabilité est un atout fondamental : elle permet l'accordabilité des niveaux d'énergie des différents états. De plus, cette forte sensibilité au champ implique que les atomes de Rydberg sont facilement ionisables ce qui permet de les détecter de manière très efficace.

L'hamiltonien d'un atome soumis à un champ électrique selon l'axe Oz s'écrit :

$$\hat{H} = -\frac{1}{2}\nabla^2 + V(r) + \xi(r)\vec{L}\cdot\vec{S} + Fz \quad (1.26)$$

où le terme Fz est le terme d'effet Stark, F étant le champ électrique. Du fait de la taille extrême de l'atome de Rydberg, l'élément de matrice Stark $\langle z \rangle$ peut être très grand. L'utilisation de la théorie des perturbations ne suffit donc pas, en général, pour décrire le comportement des niveaux d'énergie en champ. La méthode de résolution consiste à calculer les éléments de matrices :

$$\langle n, l, j, m | Fr \cos(\theta) | n', l', j', m' \rangle = F \langle l, j, m | \cos(\theta) | l', j', m' \rangle \langle n, l, j | r | n', l', j' \rangle \quad (1.27)$$

où θ est l'angle (\vec{r}, \vec{z}) . Le premier terme se calcule analytiquement tandis que le second est proportionnel aux intégrales radiales qui sont calculables par méthode de Numerov (voir annexe). Il suffit ensuite de diagonaliser l'hamiltonien numériquement [31] pour accéder aux niveaux d'énergie en champ (figure 1.3).

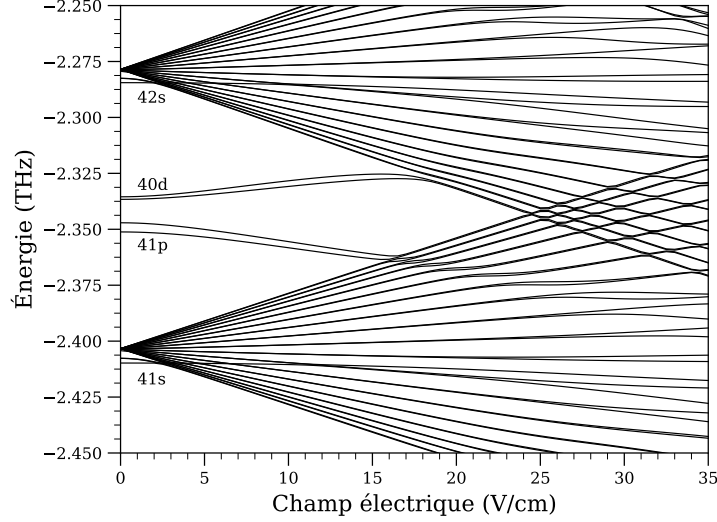


FIGURE 1.3 – Diagramme Stark de l'atome de césium entre les multiplicités $n = 37$ et $n = 38$. Calculé à l'aide du programme ARC de Durham [32]

Pour évaluer la loi d'échelle de la polarisabilité, une méthode alternative consiste à utiliser la théorie des perturbations même si celle-ci est valable uniquement pour des champs relativement faibles. Pour les états de faible moment orbital qui ne sont pas dégénérés hors champ, la contribution à l'effet Stark est quadratique. La variation d'énergie en fonction du champ peut se mettre ainsi sous la forme :

$$\delta E(F) = \frac{1}{2} \alpha F^2 \quad (1.28)$$

où α désigne la polarisabilité statique. δE est la contribution à l'ordre 2 de la théorie des perturbations et peut être mise sous la forme :

$$\delta E(F) = \sum_{n'l'j'm'} \frac{|\langle n, l, j, m | r \cos(\theta) | n', l', j', m' \rangle|^2}{E_{n', l', j', m'} - E_{n, l, j, m}} F^2 \quad (1.29)$$

On identifie ainsi la polarisabilité à :

$$\alpha = 2 \sum_{n'l'j'm'} \frac{|\langle n, l, j, m | r \cos(\theta) | n', l', j', m' \rangle|^2}{E_{n', l', j', m'} - E_{n, l, j, m}} \quad (1.30)$$

L'élément de matrice au numérateur est proportionnel à l'intégrale radiale $\langle r \rangle$, il varie donc en n^{*2} . L'écart d'énergie au dénominateur variant avec n^{*-3} , la loi d'échelle sur la polarisabilité est donc :

$$\boxed{\alpha \propto n^{*7}} \quad (1.31)$$

La sensibilité au champ d'un état de Rydberg à $n = 40$ est plus de 15000 fois supérieure à celle d'un état fondamental ($n \approx 5$ pour les alcalins lourds). Ainsi, en appliquant un champ relativement faible, on peut déplacer les niveaux d'énergie de manière significative. Notons aussi que ces états seront alors des superpositions linéaires des états propres

à champ nul³ : on mélange ainsi les états de différents moments orbitaux l . La forte polarisabilité des atomes de Rydberg est utilisée pour accorder les niveaux sur des résonances à plusieurs corps (voir paragraphe suivant). Une autre application, sans doute la plus importante, est la détection des atomes de Rydberg.

Si l'on applique un champ suffisant, il est en effet possible de faire sortir l'électron de Rydberg du potentiel du cœur ionique. L'électron et l'ion qui en résultent seront alors libres. Un simple champ suffit alors pour guider, selon le signe du champ appliqué, l'électron ou l'ion vers un détecteur de particules chargées⁴. Un calcul classique donne pour le champ d'ionisation [23] :

$$F_i = \frac{1}{16n^*4} \quad (1.32)$$

Prenons encore une fois l'exemple de l'état $40p$ du césium, son champ d'ionisation est de 182.4 V/cm [30], champ tout à fait accessible en laboratoire alors que la détection par ionisation pour un atome dans l'état fondamental est relativement difficile (il faut appliquer un champ de l'ordre de 100 kV/cm). Plus de détails sur la technique de détection par ionisation en champ seront donnés dans la sous-section 2.2.2.

Des propriétés d'interactions : régimes et accordabilité

Comme nous l'avons vu dans le paragraphe précédent, du fait de leur grande taille, les atomes de Rydberg sont très polarisables. Lorsque deux atomes de Rydberg se rapprochent l'un de l'autre, les atomes vont induire mutuellement un dipôle l'un sur l'autre : il se produira alors une interaction dipôle induit-dipôle induit. En revanche si l'on applique un champ électrique, on induit un dipôle permanent, les interactions entre atomes seront alors de type dipôle permanent-dipôle permanent. Dans ce paragraphe, on explicitera les régimes d'interactions possibles entre les atomes de Rydberg.

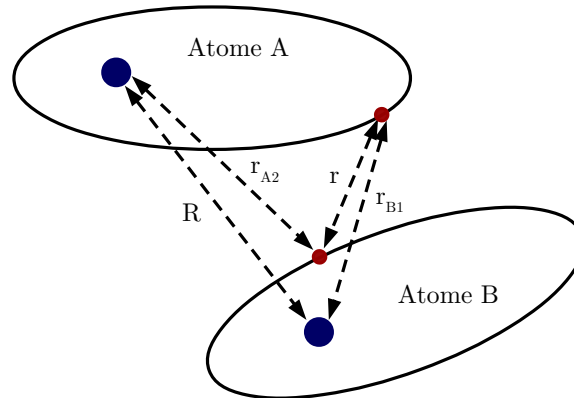


FIGURE 1.4 – Schéma pour illustrer les distances en jeu dans l'interaction entre deux atomes de Rydberg

3. L'état propre en champ peut en effet s'écrire $|k\rangle = \sum_l c_l(F) |l\rangle$

4. Les particules chargées sont très facilement détectables avec une galette de micro-canaux MCP (Micro-Channel Plate) ou un channeltron

L'hamiltonien d'un système de deux atomes de Rydberg, A et B, en interaction s'écrit :

$$\hat{H} = \hat{H}_0^{(A)} + \hat{H}_0^{(B)} + V_{int} \quad (1.33)$$

Si l'on considère chaque atome de Rydberg comme un électron gravitant autour d'une charge positive ponctuelle, le potentiel d'interaction peut s'écrire :

$$V_{int} = \frac{1}{R} - \frac{1}{r_{A2}} - \frac{1}{r_{B1}} + \frac{1}{r} \quad (1.34)$$

avec les distances R , r_{A2} , r_{B1} et r précisées sur la figure 1.4. En considérant la distance inter-atomique grande devant les distances intra-atomiques on peut développer l'expression ci-dessus. On trouve au premier ordre du développement :

$$V_{int} = \frac{\vec{r}_{A1} \cdot \vec{r}_{B2} - 3(\vec{r}_{A1} \cdot \vec{n})(\vec{r}_{B2} \cdot \vec{n})}{R^3} \quad (1.35)$$

où \vec{n} est le vecteur unitaire orienté selon l'axe inter-nucléaire. Au premier ordre de la théorie des perturbations, le décalage énergétique de l'état propre à deux atomes $|\psi_A, \psi_B\rangle$ par rapport à l'état à deux atomes isolés $|\psi_A\rangle \times |\psi_B\rangle$ est donc :

$$\delta E^{(1)} = \langle \psi_A, \psi_B | V_{int} | \psi_A, \psi_B \rangle = \frac{C_3}{R^3} \quad (1.36)$$

C'est le régime d'interaction que l'on appellera régime *dipôle-dipôle*. Cette interaction a la caractéristique d'être longue portée comparée aux interactions usuelles rencontrées avec des atomes neutres. Le coefficient C_3 faisant intervenir le produit de deux éléments de matrices radiaux $\langle r \rangle$, la loi d'échelle en fonction de n^* est donc :

$$\boxed{C_3 \propto n^{*4}} \quad (1.37)$$

Précisons aussi que les opérateurs agissant sur chaque atome sont impairs et ne couplent donc pas deux atomes de même moment orbital l . À champ nul et dans un ensemble d'atomes composé du même état, ce qui est souvent le cas expérimentalement, ce terme d'interaction est nul. Une manière d'induire cette interaction est d'appliquer un champ électrique : les atomes seront alors des dipôles permanents, permettant ainsi l'interaction des deux atomes.

Dans le cas où l'interaction dipôle-dipôle est interdite, le terme dominant sera la correction au second ordre de la théorie des perturbations :

$$\delta E^{(2)} = \sum_{A', B' \neq A, B} \frac{|\langle \psi_{A'}, \psi_{B'} | V_{int} | \psi_A, \psi_B \rangle|^2}{(E_A + E_B) - (E_{A'} + E_{B'})} = \frac{C_6}{R^6} \quad (1.38)$$

C'est le régime d'interaction de *Van der Waals*. Le coefficient d'interaction C_6 admet la loi d'échelle :

$$\boxed{C_6 \propto n^{*11}} \quad (1.39)$$

La force des interactions varie donc très rapidement avec n ! Dans la section suivante, nous reviendrons sur les manifestations de ces interactions en présentant quelques expériences historiques d'atomes de Rydberg.

1.1.3 Revue de quelques expériences d'atomes de Rydberg

Les expériences de transferts résonants

Le transfert résonant d'excitation électronique a été décrit pour la première fois par Theodor Förster pour interpréter les spectres de fluorescence de molécules en solutions [11]. Ce processus fondamental se manifeste lorsque deux molécules d'espèces différentes, l'une donneuse et l'autre accepteuse, transfèrent de l'énergie par interaction dipôle-dipôle, affectant leurs spectres de fluorescence respectifs⁵. Ce processus est utilisé en biochimie pour mesurer des distances entre différents domaines d'une protéine afin d'en déduire sa configuration mais aussi pour détecter des interactions entre différentes protéines.

En physique des atomes de Rydberg, on utilise le terme de résonance de Förster pour désigner les processus de transfert d'énergie résonant entre deux (ou plus) atomes de Rydberg, transfert qui peut modifier les états des deux atomes tout en conservant l'énergie totale de la paire. Soit deux atomes A et B, le processus de Förster à deux corps est de type :

$$A(\psi_1) + B(\psi_1) \rightarrow A(\psi_2) + B(\psi_3) \quad (1.40)$$

si $2E_1 = E_2 + E_3$. Ce type de processus a été mis en évidence pour la première fois en 1981 dans un jet thermique d'atomes de sodium [12]. Les transferts d'énergie ont lieu, dans ce cas précis, au cours des collisions binaires dans le jet. Pour accorder les niveaux d'énergie et ainsi permettre le transfert résonant, un champ électrique statique est appliqué (figure 1.4). Les atomes sont excités dans l'état $20s$ et par interaction dipôle-dipôle le transfert

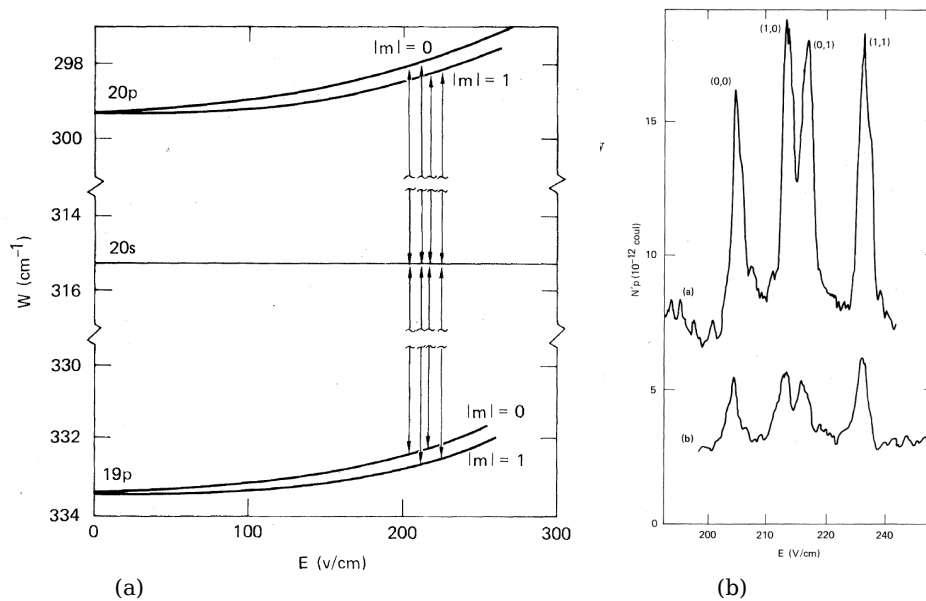


FIGURE 1.5 – (a) Les niveaux d'énergie du sodium en jeu dans l'expérience de collision résonante de 1981. (b) Nombre d'atomes dans l'état $20p$ en fonction du champ électrique appliqué. Les 4 pics correspondent aux résonances pour les 4 configurations différentes de sous-niveaux Zeeman. Tiré de [12]

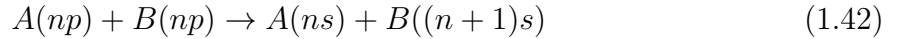
5. Notons que le processus de transfert est non radiatif et ne s'accompagne pas intrinsèquement de fluorescence

suivant se produit :

$$20s + 20s \rightarrow 19p + 20p \quad (1.41)$$

Sur la figure 1.5, le taux de transfert est tracé en fonction du champ électrique appliqué. On distingue, sur cette courbe, les transferts correspondant aux différentes configurations des sous-niveaux Zeeman possibles. Ils apparaissent avec un décalage du fait de la levée de dégénérescence des sous-niveaux $|m\rangle$ en champ électrique. Ce processus a ensuite été mesuré pour différents n , les sections efficaces mesurées admettent une loi en $n^{*4.2 \pm 0.3}$ très proche de la prédiction théorique en n^{*4} .

À la fin des années 1990, les techniques de refroidissement et de pièges atomiques ont évolué et deux expériences (l'une au laboratoire Aimé Cotton [14], l'autre à l'université de Virginie [13]) ont été montées avec l'objectif d'étudier les atomes de Rydberg à partir d'un gaz d'atomes froids. Les atomes sont chargés dans un piège magnéto-optique (MOT), dont la densité et la température sont respectivement de 10^7 - 10^{10} at/cm³ et $100 \mu\text{K}$. À cette température, la vitesse typique des atomes est de l'ordre de 10 cm/s, les temps d'interactions et les paramètres d'impact entre les atomes sont donc considérablement augmentés par rapport à la situation d'un jet atomique. D'autre part, dans la durée d'expérience typique, le déplacement des atomes ≈ 300 nm est très inférieur aux distances inter-atomiques, $\approx 10 \mu\text{m}$, le mouvement des atomes est donc négligeable : c'est un gaz gelé. Dans l'expérience effectuée au laboratoire Aimé Cotton avec un piège magnéto-optique de césium, le mécanisme en jeu est le suivant :



Les atomes sont excités dans un niveau np , avec n compris entre 20 et 30 et en présence d'un champ électrique garantissant la condition de résonance Förster (figure 1.6). Le paramètre témoin du transfert est la population dans l'état $(n+1)s$. Le signal obtenu en faisant varier le champ électrique autour de la résonance de Förster est représenté sur la figure 1.7 ; on remarque que le comportement n'est pas celui attendu pour une résonance à deux corps. En effet, à faible transfert, la largeur du signal devrait être constante quelque soit la densité, et l'efficacité de transfert devrait varier avec son carré. D'autre part, la largeur des pics de résonance n'est pas compatible avec la distance typique entre atomes

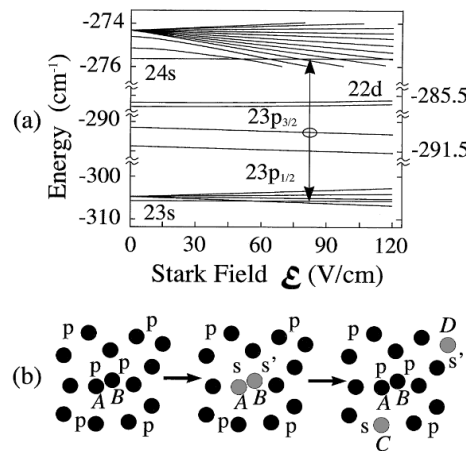


FIGURE 1.6 – a) Les niveaux d'énergie du césium en jeu dans l'expérience de collision résonante de 1998, b) schéma du mécanisme de migration. Tiré de [14]

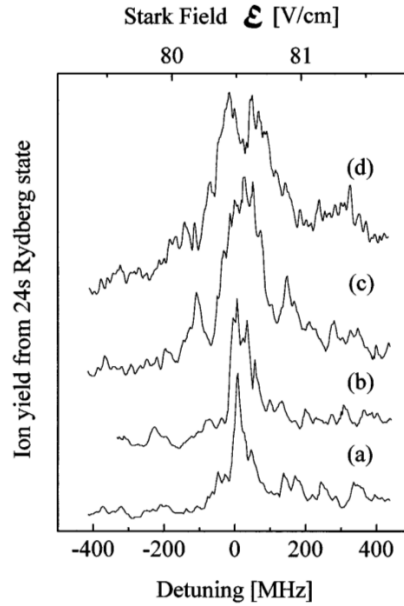
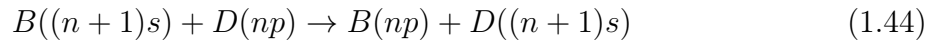
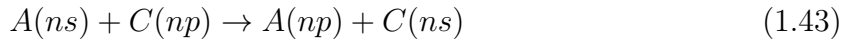


FIGURE 1.7 – Population dans l'état $24s$ en fonction du champ Förster (l'échelle du bas est convertie en fréquence relative) pour une densité initiale estimée à 4×10^8 (a), 7×10^8 (b), 4×10^9 (c), 10^{10} (d), tiré de [14]

voisins dans le gaz. Ces résultats n'ont pu être expliqués qu'en tenant compte des processus à N corps dans le gaz gelé. Ces processus sont les mécanismes de migration de l'excitation suivants :



En effet, peu d'atomes sont susceptibles d'effectuer le transfert Förster. Lorsque le transfert est réalisé, les deux atomes A et B respectivement dans les états ns et $(n+1)s$ vont transférer leur excitation à d'autres atomes voisins (par exemple des atomes C et D) selon les mécanismes (1.43) et (1.44). Or, les deux atomes A et B , qui sont maintenant revenus dans l'état np , sont toujours à la même distance l'un par rapport l'autre et donc toujours potentiellement en résonance. Ainsi il vont pouvoir refaire le transfert Förster et les mécanismes (1.43) et (1.44) et tout ce processus va se produire plusieurs fois. Ce mécanisme de migration favorise l'efficacité du transfert Förster dans le gaz et donc affecte la forme des spectres. La prise en compte de cette migration dans le modèle a permis effectivement de reproduire les spectres expérimentaux. Des résultats similaires ont été obtenus par l'équipe de l'université de Virginie sur des atomes de Rubidium [13]. Ces deux expériences ont mis en évidence des phénomènes à N corps dans les gaz de Rydberg froids et ont ainsi ouvert un champ de recherche.

Le blocage dipolaire

Une conséquence des interactions fortes entre atomes de Rydberg est la possibilité d'introduire des corrélations quantiques dans les gaz atomiques. Lorsque deux atomes dans l'état fondamental sont assez proches, l'excitation d'un des atomes dans un état de Rydberg peut empêcher l'excitation du second atome puisque l'interaction (dipôle-dipôle

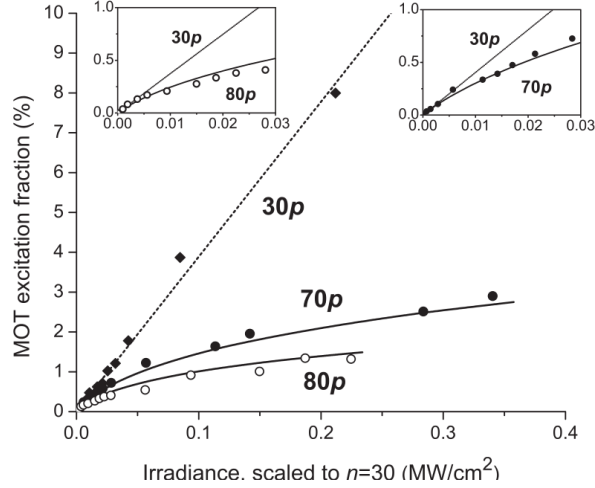


FIGURE 1.8 – Pourcentage d’atomes du MOT excités dans l’état de Rydberg en fonction de la puissance laser dans l’expérience de [3]

ou Van der Waals) induit un décalage de la transition pour ce dernier. Ceci constitue le phénomène de blocage Rydberg. Son intérêt réside dans le fait qu’un atome peut contrôler l’état quantique d’un autre atome, ce qui permet de réaliser une porte quantique [4]. La première manifestation expérimentale de ce phénomène a été mise en évidence par [3] dans un MOT de rubidium. Dans cette expérience, les atomes sont excités à partir de l’état fondamental $5s$ directement vers un état de Rydberg np avec un laser pulsé de largeur 100 MHz. Lorsque l’état visé est $30p$, on observe une dépendance linéaire du pourcentage d’atomes excités avec la puissance laser, tandis que lorsque ils sont excités vers l’état $80p$, l’excitation est saturée à $\approx 1\%$ (figure 1.8). Cette saturation est due au fait qu’à $n=80$, le coefficient de l’interaction Van der Waals C_6 (voir relation (1.38)) est tel qu’un atome excité dans un état de Rydberg décale la résonance des atomes situés dans une sphère de rayon de l’ordre de plusieurs μm ⁶. Le MOT ayant une densité de l’ordre de 1.4×10^{10} at/cm^3 , la distance interatomique moyenne est de $\approx 2.7 \mu\text{m}$. On voit ainsi qu’une grande partie des atomes voit son excitation empêchée et le nombre total d’atomes excités est fortement réduit. Les rayons de blocage mis en jeu dans cette expérience sont relativement faibles dans la mesure où l’interaction induite est de type Van der Waals ($1/r^6$). D’autres expériences se sont consacrées à l’étude du blocage Rydberg en régime dipôle-dipôle (blocage dipolaire) en effectuant l’excitation en champ électrique [30]. L’intérêt de ce régime est que les interactions sont à longue portée et donc le rayon de blocage peut être plus grand.

Des expériences menées en parallèle à l’Institut d’Optique [6] et à l’université du Wisconsin [7] ont mis en évidence la possibilité de piéger deux atomes uniques à distance inférieure au rayon de blocage (avec des pinces optiques) et de les intriquer. Lorsqu’on essaie d’exciter simultanément les deux atomes piégés vers un état de Rydberg, le laser va introduire des corrélations quantiques dans l’état du système dans la mesure où chaque atome seul peut subir l’excitation mais pas les deux à la fois. L’état du système peut

6. La condition pour qu’un atome ne soit plus résonant avec le laser est satisfaite si le décalage Van der Waals induit par l’atome excité est supérieur à la largeur spectrale du laser $C_6/r^6 > \Gamma_L$. Le rayon de la sphère autour de l’atome excité est appelé rayon de blocage.

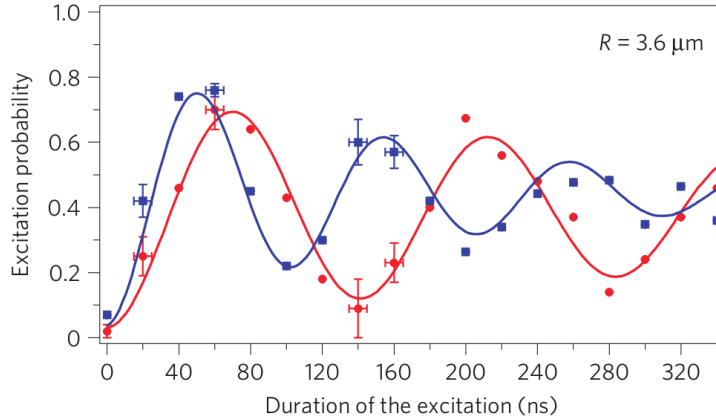


FIGURE 1.9 – Probabilité d’excitation d’un atome en fonction de la durée d’excitation. Les cercles correspondent à la probabilité d’exciter un atome quand le second est absent du piège dipolaire voisin, les carrés correspondent à la probabilité d’exciter un atome quand le second est présent dans le piège voisin. Dans ce dernier cas, l’oscillation de Rabi est accélérée d’un facteur $\sqrt{2}$, comme prévu théoriquement. Tiré de [6]

alors être décrit dans la base $\{|g, g\rangle, |\Psi_-\rangle, |\Psi_+\rangle, |r, r\rangle\}$ où $|\Psi_+\rangle$ et $|\Psi_-\rangle$ sont les états maximalement intriqués :

$$|\Psi_{\pm}\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(e^{ikR_2} |g, r\rangle \pm e^{ikR_1} |r, g\rangle) \quad (1.45)$$

Lors de l’excitation, le laser couple l’état $|gg\rangle$ à l’état $|\Psi_+\rangle$, le système fait donc des oscillations de Rabi entre ces états à la fréquence $\sqrt{2}\Omega$, avec Ω la fréquence de Rabi pour l’excitation d’un seul atome. Sur la figure 1.9, on peut voir la probabilité d’excitation d’un atome en fonction de la durée d’excitation. On peut vérifier que dans le cas où l’autre atome est présent dans le piège voisin, la fréquence de Rabi est augmentée d’un facteur 1.38 ± 0.03 , compatible avec le facteur $\sqrt{2}$ prévu théoriquement. Cette expérience met donc en évidence la possibilité de créer des états intriqués. De plus, si après excitation du système dans l’état $|\Psi_+\rangle$, on applique une impulsion de désexcitation résonante avec un état hyperfin différent de l’état de départ ($|h\rangle$ par exemple), on peut créer l’état intriqué $\frac{1}{\sqrt{2}}(|g, h\rangle + |h, g\rangle)$ composé uniquement d’états des niveaux fondamentaux et qui ont donc un long temps de vie. Dans une expérience effectuée aussi à partir de deux atomes piégés dans des pinces optiques, l’équipe de l’université du Wisconsin a réalisé la première porte quantique CNOT avec des atomes neutres, avec une fidélité de 0.73 [7].

En dehors des applications à l’information quantique, le blocage Rydberg peut être utilisé dans le domaine émergent de la simulation quantique, c’est l’objet du prochain paragraphe.

Vers la simulation quantique avec des atomes de Rydberg

Il est quasiment impossible de simuler l’évolution d’un système quantique comportant un grand nombre de particules avec un ordinateur classique. En effet, la quantité de mé-

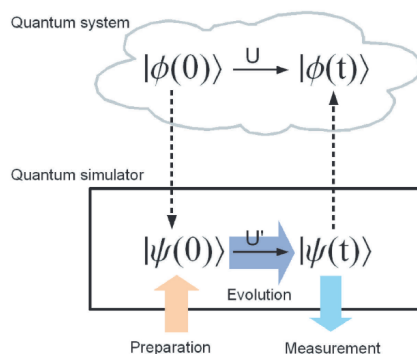


FIGURE 1.10 – Schéma illustrant le principe de la simulation quantique. On peut simuler un système quantique difficilement accessible avec un système simple et entièrement contrôlé mais gouverné par le même hamiltonien. Tiré de [2]

moire nécessaire au calcul croît exponentiellement avec la taille du système⁷, rendant les calculs impossibles à partir d'un certain nombre de particules. Pour simuler l'évolution de 80 spins, la mémoire nécessaire est 10 000 fois la quantité d'information stockée par l'humanité en 2007 [2]. La solution, proposée par R. Feynman, est d'effectuer ces calculs avec un outil fondamentalement quantique. Ainsi naissent l'informatique quantique et la simulation quantique.

L'idée générale de l'information quantique est d'utiliser, à la place de bits classiques qui prennent comme valeur 0 ou 1, des bits quantiques ou qubits qui prendront leur valeurs dans l'infinité des combinaisons linéaires de deux états quantiques $|0\rangle$ et $|1\rangle$ (par exemple des états de la structure hyperfine d'un atome, ou des états vibrationnels d'un ion piégé...). Un ordinateur quantique n'est pas a priori universel, il serait utilisé pour résoudre quelques problèmes particuliers, qui auraient chacun un algorithme propre à leur résolution. L'algorithmique quantique s'est développée au cours des années 1990 agrandissant ainsi le domaine d'application. Le plus connu, l'algorithme de Shor, permettrait par exemple la factorisation en nombres premiers d'un grand nombre en un temps polynomial avec sa taille (tandis qu'un algorithme classique résoudrait le même problème en un temps exponentiel avec la taille du nombre). Un autre exemple renommé est l'algorithme de Grover : il permet d'accélérer la recherche d'un élément dans une base de donnée contenant N éléments en un temps proportionnel à \sqrt{N} , là où un algorithme classique met un temps proportionnel à N .

La simulation quantique est quant à elle réservée à la résolution de problèmes décrits par la physique quantique et donc à des fins exclusivement scientifiques. De nombreux systèmes, notamment en matière condensée, sont trop complexes pour être simulés numériquement et sont difficiles à sonder expérimentalement. La simulation quantique repose sur le fait que si un système physique simple et facilement contrôlable possède le même hamiltonien que le système quantique complexe que l'on souhaite étudier, on peut utiliser notre système contrôlable pour mieux comprendre le système complexe dans la mesure où son évolution est a priori analogue (figure 1.10). Les outils de prédilection pour la simulation quantique sont notamment les gaz atomiques ultra-froids et les ions piégés : les

7. Ceci est dû au caractère probabiliste de la mécanique quantique qu'on ne peut pas reproduire avec un ordinateur classique. Classiquement, on doit stocker toutes les "trajectoires" possibles pour chaque particule.

techniques expérimentales en physique atomique ont en effet beaucoup évolué, rendant possible le piègeage d'atomes uniques dans des réseaux de formes arbitraires [1] ou le piègeage d'ions dans des pièges électromagnétiques [33]. L'accès à l'information sur le système est aussi très efficace, on peut par exemple sonder le sous-niveau Zeeman d'atomes uniques dans un réseau avec une efficacité proche de 100% et avec une très bonne résolution spatiale. De nombreux exemples d'expériences de simulation quantique avec des gaz atomiques ultra-froids sont présentés dans l'article de revue [1].

Nombre de problèmes non solubles numériquement impliquent précisément des particules en interactions à longue portée, notamment les systèmes de N spins en interactions. Les gaz ultrafroids d'atomes de Rydberg possèdent, à cet égard, un avantage considérable par rapport aux gaz ultrafroids dans les états fondamentaux : les interactions y sont fortes, à longue portée et accordables. Une expérience récente, menée à l'Institut d'Optique, a permis de simuler un système de spin d'Ising avec des atomes de Rydberg [8]. Dans cette expérience, les auteurs utilisent un dispositif similaire à celui utilisé dans l'expérience de blocage dipolaire citée précédemment, à savoir une matrice de pinces optiques à géométrie entièrement contrôlée. Huit atomes sont piégés sur un cercle dont le rayon est d'environ 10 μm . Lorsque l'excitation Rydberg est appliqué sur les atomes, l'hamiltonien du système est analogue à l'hamiltonien d'Ising et prend la forme :

$$H = \sum_i \frac{\hbar\Omega}{2} \sigma_x^{(i)} + \sum_{i<j} V_{ij} n^i n^j \quad (1.46)$$

avec Ω la fréquence de Rabi associée au laser, σ_x la matrice de Pauli qui couple l'état fondamental à l'état de Rydberg, $V_{i,j} = C_6(\theta)/(r_i - r_j)^6$ le terme d'interaction de l'atome i avec l'atome j , et n^i le nombre d'atomes de Rydberg excités sur le site i . Notons que le coefficient $C_6(\theta)$ de l'état de Rydberg choisi est fortement anisotrope : il varie selon l'angle entre la direction du champ de quantification et la direction interatomique, si bien que l'intensité des interactions, et donc le rayon de blocage, est accordable. Sur la figure 1.11, sont résumés les résultats pour plusieurs valeurs de ce rayon de blocage. On constate que lorsque celui-ci est très inférieur à la distance interatomique, tous les atomes peuvent être excités et on observe des oscillations de Rabi entre aucun atome excité et l'intégralité des atomes excités. Lorsqu'au contraire, le rayon de blocage est supérieur à la distance inter-atomique, la proportion d'atomes excités est réduite. On constate que ces résultats sont, dans une certaine mesure, conformes à des calculs numériques basés sur la résolution de l'équation de Schrödinger avec l'hamiltonien d'Ising (qui sont, en l'occurrence, faisables puisque le nombre de particules est faible), montrant ainsi le bon fonctionnement de l'expérience de simulation quantique. Les auteurs ont reproduit ensuite l'expérience sur un plus grand nombre d'atomes, démontrant ainsi la puissance de leur dispositif expérimental.

Pour finir, mentionnons les travaux réalisés à Munich [9, 10]. Dans ces expériences, les atomes sont d'abord piégés dans un réseau optique dans un état d'isolant de Mott (un atome par site du réseau). En envoyant un champ laser couplant l'état fondamental à un état de Rydberg, les auteurs ont montré que l'excitation des atomes présente des géométries spécifiques de type cristallines. Comme dans l'expérience mentionnée plus haut, le dispositif expérimental simule un système de spins en interaction et peut donc être utilisé pour étudier cette physique très intéressante.

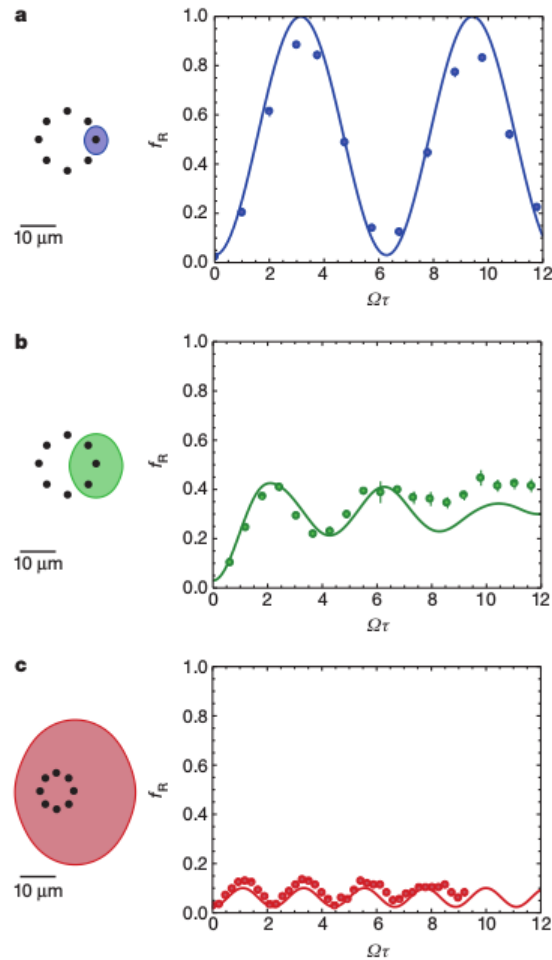


FIGURE 1.11 – , (a),(b) et (c) : fraction d'atomes excités en fonction de la durée du pulse d'excitation, pour un rayon de blocage inférieur à la distance site-site (a), 1.5 fois la distance site-site (b), très supérieur à la distance site-site(c). Les traits pleins sont les calculs théoriques effectués par résolution de l'équation de Schrödinger pour l'hamiltonien 1.46 Tiré de [8]

1.2 Atomes à deux électrons de valence et états de Rydberg

Les atomes de Rydberg divalents ont constitué un domaine de recherche très actif dans les années 1970-1980. Dans un premier temps, les études furent concentrées sur la spectroscopie complexe de ce type d'atome. En effet, les interactions entre électrons de valence induisent des perturbations dans les séries de Rydberg. Celles-ci peuvent être prises en compte grâce à la théorie du défaut quantique à plusieurs voie (MQDT) [20]. En parallèle, un autre champ de recherche fut consacré à l'étude du phénomène d'auto-ionisation [16, 17, 34] des atomes doublement excités. En effet, lorsque l'atome est excité dans un état de Rydberg, il est possible d'exciter son deuxième électron de valence, c'est la technique d'excitation du cœur isolé ICE (pour Isolated Core Excitation). Dans notre expérience, il serait possible d'utiliser ces transitions du cœur ionique pour manipuler les degrés de liberté externes de l'atome de Rydberg, ouvrant ainsi la possibilité d'appliquer toutes les techniques d'imagerie, de piège et de refroidissement optique usuellement réservées aux atomes dans l'état fondamental. Cependant, lorsqu'ils sont doublement excités, les atomes possèdent généralement assez d'énergie pour ioniser spontanément : c'est le phénomène d'auto-ionisation. En principe, l'auto-ionisation peut être évitée pour les états de Rydberg de grand moment orbital [17] et c'est ce que nous voulons vérifier sur l'ytterbium.

Dans cette section, nous présenterons dans un premier temps quelques éléments de spectroscopie des atomes divalents. S'en suivra une présentation de la technique de l'excitation du cœur isolé et du phénomène d'auto-ionisation.

1.2.1 Éléments sur la spectroscopie des atomes divalents

Hamiltonien atomique et position du problème

Considérons un atome divalent A dont les deux électrons seront désignés par 1 et 2. Dans la suite on prendra l'électron 2 comme électron de Rydberg, l'électron 1 restant à priori dans un état fondamental ou faiblement excité. Dans un premier temps, on peut négliger les effets de spins, l'hamiltonien pour les deux électrons est alors donné par [23] :

$$H = - \left(\frac{\nabla_1^2}{2} + \frac{\nabla_2^2}{2} - V(r_1) - V(r_2) - \frac{1}{r_{12}} \right) \quad (1.47)$$

où $V(r_i)$ est le potentiel dû au cœur ionique A^{2+} sur l'électron i . Comme l'électron 2 est dans un état de Rydberg, il est en moyenne très loin du cœur ionique A^{2+} et de l'électron 1. Au premier ordre, le potentiel subi par l'électron 2 est donc $-1/r_2$. On peut réécrire alors l'hamiltonien sous la forme :

$$H = H_0 + H_1 \quad (1.48)$$

où H_0 est l'hamiltonien du système sans interaction entre les deux électrons et s'écrit :

$$H_0 = - \left(\frac{\nabla_1^2}{2} + \frac{\nabla_2^2}{2} - V(r_1) + \frac{1}{r_2} \right) \quad (1.49)$$

En notant $\phi_{n_1, l_1, m_1}(\vec{r}_1)$ les fonctions d'onde du cœur ionique A^+ et $\psi_{n_2, l_2, m_2}(\vec{r}_2)$ les fonctions d'onde de l'hydrogène, la solution de l'équation de Schrödinger pour H_0 peut se mettre

sous la forme $\Psi(\vec{r}_1, \vec{r}_2) = \phi_{n_1, l_1, m_1}(\vec{r}_1) \cdot \psi_{n_2, l_2, m_2}(\vec{r}_2)$. Cette solution est la fonction d'onde "à électrons indépendants" et elle est une bonne approximation⁸ pour les états de moment orbital l_2 élevé, l'énergie de l'état est alors donnée par :

$$E = E_{n_1, l_1} - \frac{1}{2n_2^2} \quad (1.50)$$

H_1 est la partie de l'hamiltonien qui prend en compte les effets de distribution spatiale de charge du cœur A^{2+} et les interactions électroniques :

$$H_1 = V(r_2) + \frac{1}{r_2} + \frac{1}{r_{12}} \quad (1.51)$$

De la même manière que pour les atomes de Rydberg à un électron, on peut prendre en compte l'influence de la distribution de charge du cœur A^{2+} sur l'électron Rydberg par l'introduction d'un défaut quantique. L'énergie de la série Rydberg sera alors donnée par :

$$E = E_{n_1, l_1} - \frac{1}{2(n_2 - \delta_{l_2})^2} \quad (1.52)$$

avec δ_{l_2} le défaut quantique associé à la série de Rydberg en question. L'hamiltonien H_1 contient aussi un terme en $1/r_{12}$ qui couple les deux électrons de valence. Les corrélations électroniques entre électrons de valence peuvent induire des perturbations dans les niveaux Rydberg. Ces perturbations peuvent être prises en compte dans le cadre de la théorie MQDT : ceci sera très brièvement discuté dans cette section et de manière plus approfondie dans la section consacrée 3.1.

Couplages de moments entre électrons de valence : couplage LS

Pour prendre en compte les interactions entre électrons de valence et les effets de spin, il convient de trouver le bon schéma de couplage des deux électrons. Le terme de répulsion électrostatique $1/r_{12}$ peut en principe influencer sur la direction des moment orbitaux de chaque électron, le moment total $\vec{L} = \vec{l}_1 + \vec{l}_2$ reste en revanche inchangé. Ceci se traduit par :

$$[L^2, \frac{1}{r_{12}}] = 0 \quad \text{et} \quad [L_z, \frac{1}{r_{12}}] = 0 \quad (1.53)$$

L'opérateur $1/r_{12}$ n'agissant pas non plus sur le spin, en notant $\vec{S} = \vec{s}_1 + \vec{s}_2$, on a aussi :

$$[S^2, \frac{1}{r_{12}}] = 0 \quad \text{et} \quad [S_z, \frac{1}{r_{12}}] = 0 \quad (1.54)$$

Les nombres quantiques L et S apparaissent ainsi comme des bons nombres quantiques pour prendre en compte l'interaction inter-électronique. Les règles d'addition des moments, nous donne les valeurs possibles pour L et pour S :

$$L = |l_1 - l_2|, |l_1 - l_2 + 1|, \dots, (l_1 + l_2 - 1), (l_1 + l_2) \quad \text{et} \quad S = 0, 1 \quad (1.55)$$

8. Notons que dans la fonction d'onde $\Psi(r_1, r_2)$, on peut à priori échanger la dénomination des deux électrons sans changer l'énergie globale, il y a donc une dégénérescence d'échange. Il faut donc construire à priori deux états propres réels qui doivent tenir compte des effets d'échanges, les énergies propres étant elles aussi décalées par rapport à (1.50)

Pour prendre en compte l'interaction spin-orbite, il convient de définir le moment cinétique total comme $\vec{J} = \vec{L} + \vec{S}$. Ce schéma de couplage est dit de Russel-Sanders ou couplage LS . Il est valable si l'interaction coulombienne en $1/r_{12}$ domine largement les interactions spin-orbitales, ce qui est le cas pour les atomes légers ($Z < 40$). On peut maintenant prendre en compte l'interaction entre spin total \vec{S} et moment orbital total \vec{L} . Celle-ci est prise en compte en ajoutant le terme d'interaction $\xi \vec{L} \cdot \vec{S}$ à l'hamiltonien. En remarquant que :

$$\vec{L} \cdot \vec{S} = \frac{1}{2}((\vec{L} + \vec{S})^2 - \vec{L}^2 - \vec{S}^2) \quad (1.56)$$

il apparaît que le moment cinétique total $\vec{J}^2 = (\vec{L} + \vec{S})^2$ commute avec $\vec{L} \cdot \vec{S}$. Leurs vecteurs propres sont donc communs. Les valeurs possibles pour le nombre quantique J sont données par :

$$J = |L - S|, |L - S + 1|, \dots, (L + S) \quad (1.57)$$

La partie angulaire des états propres sera donc caractérisée par les nombres quantiques L, S, J et m_J .

Prenons l'exemple de la configuration électronique fondamentale de l'ytterbium : $6s^2$. On a $L = 0$ et en appliquant le principe de Pauli, on a nécessairement $S = 0$, ce qui implique que $J = 0$. Il existe donc uniquement un état propre, l'état : $6s^2 - ^1S_0$.

Pour la configuration $6s6p$, pour lequel $L = 1$, on a en revanche $S = 0$ ou $S = 1$. L'état $S = 0$, appelé singulet, est unique et son moment cinétique total J est nécessairement égal à L . Il se note donc $6s6p - ^1P_1$. Les états $S = 1$, appelés états triplets, ont pour moment cinétique total : $L - S, L$ ou $L + S$. Ils sont donc notés respectivement $6s6p - ^3P_0, 6s6p - ^3P_1$ et $6s6p - ^3P_2$.

Couplages de moments entre électrons de valence : couplage jj

Comme mentionné précédemment, le couplage LS n'est pas nécessairement approprié pour tous les atomes divalents. Dans le cas des atomes lourds ($Z > 40$), les électrons sont plus rapides ce qui provoque des effets relativistes. Ceci implique notamment que le terme spin-orbite de chaque électron $\xi(r_i) \vec{l}_i \cdot \vec{s}_i$ devient supérieur au terme de répulsion coulombienne en $1/r_{ij}$ dans l'hamiltonien total. Il devient alors nécessaire de coupler d'abord les spins et les moment orbitaux de chaque électron, $\vec{j}_1 = \vec{l}_1 + \vec{s}_1, \vec{j}_2 = \vec{l}_2 + \vec{s}_2$ pour traiter l'interaction spin-orbitales de chaque électron. On définit alors le moment cinétique total comme :

$$\vec{J} = \vec{j}_1 + \vec{j}_2 \quad (1.58)$$

C'est ce qu'on appelle le couplage jj . Dans le cas de l'ytterbium ($Z = 70$), le nombre d'électrons est supérieur à 40 : nous sommes dans un cas intermédiaire où les termes spin-orbite de chaque électron sont du même ordre de grandeur que le terme de répulsion coulombienne interélectronique. On choisit néanmoins d'utiliser la base LS pour définir les états propres. En effet, pour les états peu excités et pour la plupart des états de Rydberg de faible moment orbital, la base LS reste une base relativement bonne. Cela étant, les véritables états propres seront des combinaisons linéaires de l'état triplet et de l'état singulet de même moment cinétique total $J = L$, on dit alors qu'ils sont *intercombinés*. Ceci va jouer un rôle dans les règles de sélection pour les transitions optiques. En couplage

LS , celles-ci sont données, dans l'approximation dipolaire électrique, par [22] :

$$\left\{ \begin{array}{l} \Delta L = \pm 1 \\ \Delta S = 0 \\ \Delta J = 0, \pm 1 \text{ (sauf } J_i = 0 \leftrightarrow J_f = 0) \\ \Delta m_j = 0, \pm 1 \end{array} \right. \quad (1.59)$$

On voit qu'il est à priori impossible d'exciter optiquement un état triplet ($S = 1$) à partir d'un état singulet ($S = 0$). Cependant, à cause des effets d'intercombinaison, l'état triplet peut contenir une part de son homologue singulet et vice versa, permettant ainsi le couplage entre l'état singulet initial et l'état (majoritairement) triplet final. Par exemple dans l'atome d'ytterbium, la transition $6s^2 \ ^1S_0 \rightarrow 6s6p \ ^3P_1$ est à priori interdite, cependant, grâce aux effets d'intercombinaison, l'état $\ ^3P_1$ est mélangé avec $\ ^1P_1$, menant ainsi à une levée de l'interdiction. La largeur naturelle – qui est proportionnelle à la force d'oscillateur – du $\ ^3P_1$ est ainsi de 180 kHz, ce qui est certes plus faible que la transition vers le niveau $\ ^1P_1$ (28 MHz) mais significativement plus fort qu'une transition strictement interdite⁹.

Les perturbations des séries Rydberg

Dans la section 1.1.1, nous avons présenté la théorie du défaut quantique. Celle-ci permet de décrire de manière très précise la spectroscopie Rydberg des atomes monovalents. Dans ce cadre théorique, on considère que l'électron de Rydberg est, la plupart du temps, très loin du cœur ionique. Il est donc décrit par une superposition des fonctions d'onde de Coulomb. On ne résout pas l'équation de Schrödinger dans le cœur ionique : on considère que le cœur a pour seul effet de déphaser la fonction d'onde, ce déphasage τ étant directement relié au défaut quantique $\delta = \tau/\pi$. Dans ce cadre, il n'y a donc ni échange d'énergie, ni couplage entre les moments de l'électron Rydberg et du cœur ionique. Dans le cas d'un atome divalent, le modèle de défaut quantique simple n'est plus suffisant. En effet, le terme de répulsion coulombienne entre les deux électrons de valence ($1/r_{12}$) introduit des corrélations entre ces derniers. On ne peut donc plus considérer indépendamment l'électron de Rydberg et le cœur ionique A^+ . Les états de Rydberg d'une série correspondant à la configuration fondamentale du cœur ionique (par exemple la série $6sn_2l_2$ pour l'ytterbium) peuvent se coupler à un état correspondant à une configuration du cœur ionique différente (par exemple $6pn'_2l'_2$) et ce couplage va induire des perturbations des niveaux d'énergie.

Reprenons l'hamiltonien H_1 :

$$H_1 = V(r_2) + \frac{1}{r_2} + \frac{1}{r_{12}} \quad (1.60)$$

Celui-ci est responsable des corrélations entre l'électron Rydberg et l'autre électron de valence. Les états $\Psi(\vec{r}_1, \vec{r}_2) = \phi_{n_1, l_1, m_1}(\vec{r}_1) \cdot \psi_{n_2, l_2, m_2}(\vec{r}_2)$ sont les états à deux électrons indépendants et décrivent l'état atomique à l'ordre 0, nous allons inclure par traitement perturbatif les effets que peut produire H_1 sur ces états. Ce traitement n'est valable que pour les états de Rydberg de moment orbital l_2 élevé mais permet de comprendre les effets d'un perturbateur sur les niveaux d'énergie Rydberg. Prenons par exemple une

9. Par exemple, la largeur de la transition "horloge" $6s^2 \ ^1S_0 \rightarrow 6s6p \ ^3P_0$, transition qui viole doublement les règles de sélection, est d'environ 10 mHz pour les isotopes fermioniques de l'ytterbium [35].

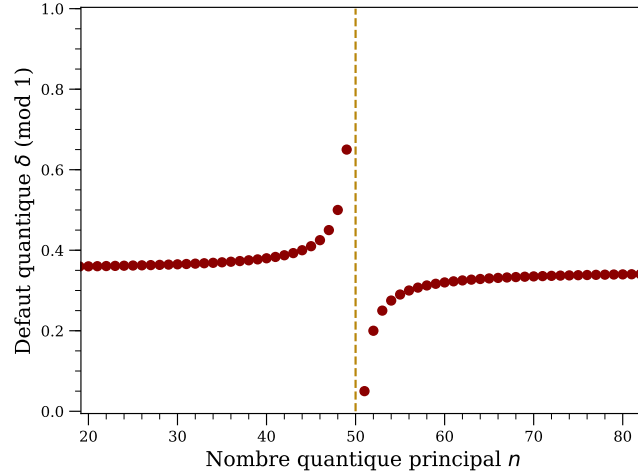


FIGURE 1.12 – Représentation schématique de l'effet d'un perturbateur sur les niveaux d'énergie d'une série Rydberg . L'état perturbateur décale localement les niveaux d'énergie de la série Rydberg et donc leur défaut quantique. Ici le niveau perturbateur est situé à proximité du niveau $n = 50$ de la série Rydberg.

série Rydberg de configuration du cœur ionique fondamentale $6snl$ et prenons un état perturbateur appartenant à une série de configuration excitée du cœur ionique $6pn'l'$. Faisons l'approximation coulombienne pour le potentiel du cœur ionique A^{2+} sur l'électron Rydberg : $V(r_2) = -2/r_2$. En développant le terme $1/r_{12}$, l'hamiltonien H_1 peut s'écrire [23] :

$$H_1 = \frac{r_1}{r_2^2} P_1(\cos(\theta_{12})) + \frac{r_1^2}{r_2^3} P_2(\cos(\theta_{12})) + \dots \quad (1.61)$$

où les P_i sont les polynômes de Legendre et agissent uniquement sur les variables angulaires. Dans le cas où l'électron de valence du cœur ionique A^+ est dans l'état fondamental $6s$, le terme de correction au premier ordre de la théorie des perturbations est nul [23]. Au deuxième ordre, la correction en énergie n'est pas nulle. Sachant que le terme quadrupolaire en r_1^2/r_2^3 est nul et que les termes d'ordres supérieurs sont négligeables, on peut se limiter au terme dipolaire de (1.61) :

$$E_d^{(2)} = \frac{|\langle 6s, nl, J | \frac{r_1}{r_2^2} P_1(\cos(\theta_{12})) | 6p, n'l', J \rangle|^2}{E_{6s, nl}^{(0)} - E_{6p, n'l'}^{(0)}} \quad (1.62)$$

où $E_{6s, nl}^{(0)}$ est l'énergie de l'état de la série Rydberg à l'ordre 0. Ce terme de correction va donc décaler les niveaux d'énergies de la série Rydberg $6snl$ à cause de la présence du perturbateur de la série $6pn'l'$. On remarque que le décalage en énergie est négatif lorsque l'état n de la série $6snl$ est en dessous du perturbateur. Plus l'état est proche du perturbateur, plus le décalage est grand. Pour les états n d'énergie supérieure au perturbateur, le décalage en énergie va être positif et progressivement s'atténuer à mesure que l'on s'éloigne de lui (figure 1.12). Notons qu'un autre effet de ce couplage avec le perturbateur est que les états de la série Rydberg fortement perturbés contiennent une part de l'état perturbateur.

De manière générale, il est nécessaire d'employer un nouveau modèle, la théorie du défaut quantique à plusieurs voies (MQDT) [20], pour prendre en compte ces couplages

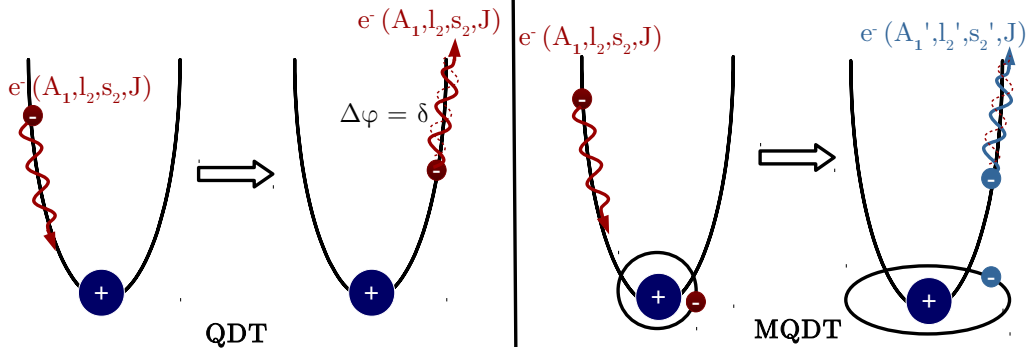


FIGURE 1.13 – Représentation schématique des théories de QDT et de MQDT. À gauche : l'électron de Rydberg, initialement dans la voie A_1, j_1 , subit un déphasage dû au cœur ionique mais sans changer de voie. À droite : l'électron de Rydberg peut maintenant se coupler à d'autres voies correspondant à d'autres configurations du cœur ionique. Après son passage dans le cœur, il repart donc dans une autre voie.

entre électrons de valence. Dans ce cadre théorique, on définit une voie comme l'ensemble des états caractérisés par une même configuration du cœur ionique A^+ , un même moment orbital de l'électron Rydberg l_2 , un moment angulaire total J (tel que $\vec{J} = \vec{j}_1 + \vec{l}_2 + \vec{s}_2$, peu importe le schéma de couplage) et sa projection M . Les bons nombres quantiques pour décrire l'atome sont les nombres quantiques J , M et la parité $\Pi = (-1)^{l_1+l_2}$. Les voies qui sont caractérisées par les mêmes valeurs de J , M et Π peuvent se coupler entre elles à cause du terme en $1/r_{12}$ et ceci mène à des perturbations locales de l'énergie des niveaux. La théorie MQDT permet de prendre en compte ces couplages entre voies en faisant intervenir un petit nombre de paramètres : les défauts quantiques propres de chaque voie μ_α et les paramètres de couplage entre chaque voie $\theta_{\tilde{\alpha}\alpha}$. Cette théorie sera explicitée dans la section 3.1.

1.2.2 L'excitation du cœur isolé

Lorsque l'atome divalent est excité dans un état de Rydberg, il possède toujours un électron dans l'état fondamental. Dans la mesure où l'électron de Rydberg est en moyenne très loin du cœur ionique A^+ , il peut être considéré comme spectateur : son influence sur le cœur est négligeable. Il devient donc possible de manipuler optiquement le cœur ionique A^+ de manière indépendante. Cette technique a été démontrée expérimentalement pour la première fois par Cooke *et al.* [16] sur des états de Rydberg de faible moment orbital de l'atome de strontium. Plus tard, de nombreuses études de l'ICE ont été réalisées sur les états de Rydberg de l'atome de baryum [17, 34, 36, 37]. Une fois dans l'état de Rydberg, les atomes sont excités grâce à un laser résonant avec la transition $6s_{1/2} \rightarrow 6p_{1/2}$ de l'ion Ba^+ : ils sont alors *doublément* excités (l'état de l'atome est $6pnl$). Les états de Rydberg $6pnl$ étant, par définition, proches de la limite d'ionisation de l'atome dans la configuration fondamentale ($6s$) du cœur ionique, l'énergie totale de l'atome doublément excité est au dessus de cette limite. Si l'atome peut se coupler au continuum de la configuration $6s$, il se produit alors le phénomène d'*auto-ionisation*¹⁰

10. Il est facile de comprendre ce phénomène en terme de collision inélastique : si l'électron de Rydberg a une probabilité de présence relativement forte proche du cœur ionique, il peut effectuer un échange

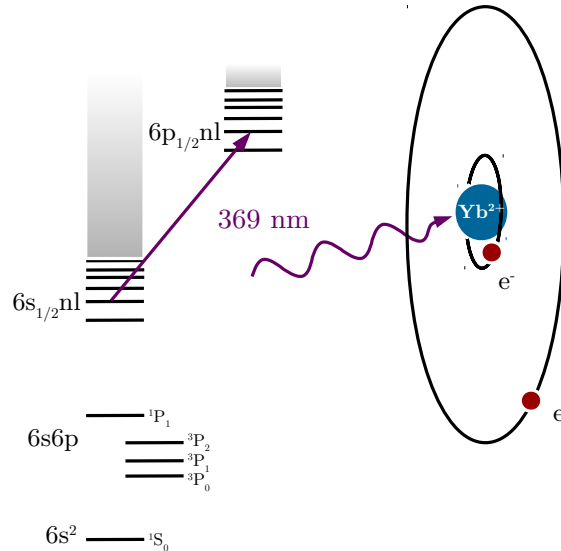


FIGURE 1.14 – Illustration de la technique de l’excitation du cœur isolé (ICE) sur un atome de Rydberg d’ytterbium. Un laser résonant avec la transition du cœur ionique $\text{Yb}^+ 6s_{1/2} \rightarrow 6p_{1/2}$ excite le cœur sans affecter l’état de Rydberg

Dans le cas des états de Rydberg de faible moment orbital, le terme de répulsion coulombienne dans H_1 couple effectivement l’état $6pnl$ à l’état du continuum $6sel$ avec ϵ l’énergie de l’électron libéré. On peut donc observer l’auto-ionisation de ces états. Celle-ci est très rapide et peut être estimée en balayant la fréquence du laser d’excitation du cœur ionique et en mesurant la largeur Γ_a de la raie obtenue. Le temps de vie moyen dans l’état doublement excité est ainsi donné par $\tau \approx 1/\Gamma_a$. Nous reviendrons dans la partie suivante sur le processus d’auto-ionisation des états de faible moment orbitaux.

En revanche, pour les états de Rydberg de moment orbital élevé, le couplage de l’électron Rydberg avec le cœur ionique est tellement faible que le phénomène d’auto-ionisation est très atténué voire inexistant. Une étude de la dépendance du taux d’auto-ionisation avec le moment orbital a été réalisée [17] sur l’atome de baryum et a montré une stabilité par rapport à l’auto-ionisation de l’état doublement excité pour ces états. Ceux-ci sont donc très attrayants pour la manipulation optique des degrés de liberté externes des atomes de Rydberg. Nous reviendrons sur ce point dans une seconde partie.

L’auto-ionisation des états de faible moment orbital

Nous allons utiliser l’exemple de l’atome de baryum. Sa couche de valence étant similaire à celle de l’ytterbium, la plupart des développements seront aussi valables pour ce dernier. À partir de $6snl$, le premier état doublement excité du baryum accessible optiquement est un état $6pnl$. Comme on peut le voir sur la figure 1.15, cet état se situe, en terme d’énergie, dans le continuum des voies $6snl$ et $5dnl$. Ces voies pouvant se coupler entre elles par H_1 , l’atome initialement dans l’état $6pnl$ peut auto-ioniser et donc se retrouver dans une des deux voies $6sel'$ et $5del'$. Le taux d’auto-ionisation Γ_a peut être calculé en utilisant la théorie des perturbations. En effet, si l’on considère H_1 comme une petite perturbation, le taux de couplage au continuum est donné, en utilisant la règle d’or

d’énergie avec celui-ci lors de la collision, ce qui provoque la désexcitation de l’ion et l’excitation de l’électron vers un état de haute énergie du continuum.

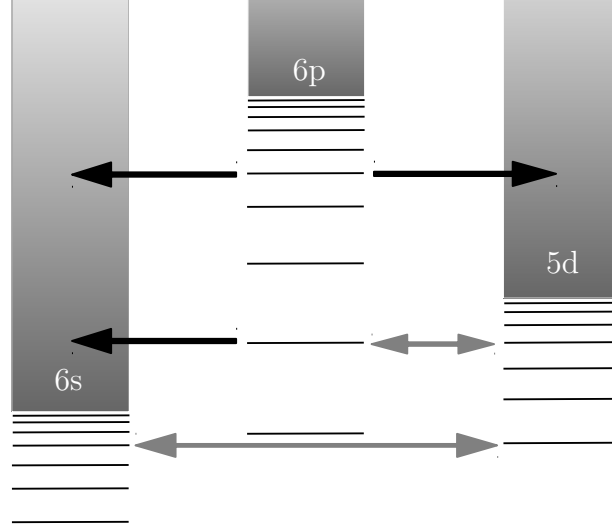


FIGURE 1.15 – Schéma des voies de couplages. L'état excité par ICE appartient à la voie $6pnl$ du milieu. Les couplages entre voies peuvent entraîner l'auto-ionisation vers les continuum des séries $6snl'$ ou $5dnl'$

de Fermi, par [23] :

$$\Gamma_a = 2\pi \left(\sum_{\nu'=l\pm 1} |\langle 6p, n\ell | H_1 | 6s, \epsilon\ell' \rangle|^2 + \sum_{\nu'=l\pm 1} |\langle 6p, n\ell | H_1 | 5d, \epsilon\ell' \rangle|^2 \right) \quad (1.63)$$

En approximant le potentiel du cœur sur l'électron Rydberg au potentiel coulombien¹¹, on peut réutiliser le développement de l'équation (1.61). Les termes quadrupolaires (en r_1^2/r_2^3) étant nuls pour des raisons de parité, le taux d'ionisation devient [23] :

$$\begin{aligned} \Gamma_a = & 2\pi \left(\sum_{\nu'=l\pm 1} |\langle 6p, n\ell | \frac{r_1 P_1(\cos(\theta_{12}))}{r_2^2} | 6s, \epsilon\ell' \rangle|^2 \right. \\ & \left. + \sum_{\nu'=l\pm 1} |\langle 6p, n\ell | \frac{r_1 P_1(\cos(\theta_{12}))}{r_2^2} | 5d, \epsilon\ell' \rangle|^2 \right) \end{aligned} \quad (1.64)$$

On peut séparer les éléments de matrice en partie angulaire et en partie radiale. La dépendance du taux d'auto-ionisation avec n peut ainsi être déduite des éléments de matrice radiaux dans la mesure où les parties angulaires ne dépendent pas de n . L'élément de matrice radial $\langle n\ell | 1/r_2^2 | \epsilon\ell' \rangle$ est sensible à n uniquement par le facteur de normalisation des fonctions d'ondes puisque il est important uniquement pour r petit. Ce facteur de normalisation admettant une loi en $1/n^{3/2}$, le taux d'auto-ionisation évolue donc selon la loi d'échelle :

$$\Gamma_a \propto \frac{1}{n^3} \quad (1.65)$$

Cette loi a été vérifiée sur l'expérience de Cooke *et al.* [16] et plus récemment dans notre expérience sur l'ytterbium (voir chapitre 4) sur des états n plus élevés. Trouver une loi

11. Approximation qui peut être très mauvaise pour ces états de faibles moments angulaires mais qui a le mérite de faciliter les calculs

de manière similaire pour la dépendance au moment orbital l de l'électron de Rydberg est plus difficile, cependant on peut pressentir que le taux d'auto-ionisation va chuter avec l . Reprenons le point de vue de collision inélastique. Lorsque l'électron de Rydberg se rapproche du cœur ionique, le phénomène d'auto-ionisation peut se produire grâce à l'interaction entre les deux électrons de valence. Pour que cette interaction soit forte, il faut nécessairement que la distance entre électron Rydberg et cœur soit faible. Or la "périhélie" de l'orbitale de l'électron Rydberg croît avec l , donc en augmentant l , on diminue le couplage provoquant l'auto-ionisation et on diminue le taux d'auto-ionisation. Nous reviendrons plus précisément sur ce point dans le deuxième paragraphe.

Notons qu'il est aussi possible d'effectuer l'excitation auto-ionisante vers des niveaux de Rydberg n' différents du niveau initial. Prenons l'exemple d'un état de Rydberg initial $|6s, nd\rangle$. Le laser couple un niveau $|6s, nd\rangle$ au niveau auto-ionisant $|6p, n'd\rangle$, lui-même couplé au continuum. L'élément de matrice dipolaire de la transition sera donc [23] :

$$\langle 6s, nd | \mu | 6p, n'd \rangle = \langle 6s | \mu | 6p \rangle A_2 |\langle nd | n'd \rangle| \quad (1.66)$$

où A_2 est la densité spectrale d'état : c'est une somme de lorentziennes correspondant chacune à un état $n'd$ et le terme $\langle nd | \nu d \rangle$ est l'intégrale de recouvrement des fonctions d'onde du niveau $|6p, nd\rangle$ et du niveau final du continuum, cette intégrale est donnée par [23] :

$$\langle nd | n'd \rangle \propto \text{sinc}[\pi(\nu_{6s,nd} - \nu_{6p,n'd})] \quad (1.67)$$

où $\nu = n - \delta$ est le nombre quantique principal effectif de l'électron Rydberg. L'intégrale est maximale lorsque $\nu_{nd} = \nu_{n'd}$ mais elle a aussi des pics secondaires (ou *satellites*) tous les $\nu_{nd} = \nu_{n'd} + \frac{1}{2} \pmod{1}$. Ces pics secondaires correspondent donc à des transitions vers des états de nombre quantique principal n différent pour l'électron Rydberg. Notons que si les défauts quantiques des voies $6snd$ et $6pnd$ sont différents $\pmod{1}$, le spectre peut admettre une forme assez éloignée du sinus cardinal. Ceci est dû à la densité spectrale A_2 : les pics du sinus cardinal peuvent se retrouver décalés par rapport aux maximums de A_2 , donnant ainsi lieu à des formes asymétriques (figure 1.16).

Combattre l'auto-ionisation avec les états de grand moment orbital

Limiter le phénomène d'auto-ionisation peut être extrêmement intéressant. D'une part, cela ouvrirait la voie au domaine des doubles Rydberg. Ces atomes doublement excités et stables ont en effet été prédits par Percival [38] mais leur existence n'a toujours pas été démontrée expérimentalement. D'autre part, cela permettrait de manipuler optiquement l'atome de Rydberg en utilisant cette transition du cœur sans risquer de le détruire.

Discutons tout d'abord de la création de ces états. Les règles de sélection pour les transitions optiques ($\Delta l = \pm 1$) limitent la possibilité de créer des états de moment orbital élevé. Il se présente donc deux possibilités :

- Il est possible d'utiliser effectivement l photons pour atteindre l'état de moment orbital l : c'est la technique de *modified adiabatic rapid passage* notamment utilisée par l'équipe de Serge Haroche [39] pour créer des états de Rydberg circulaires ($l = n - 1, m = \pm l$). Plus précisément, elle consiste à effectuer une excitation optique à 3 photons vers un état f . En appliquant un champ électrique, la dégénérescence en l des états de la multiplicité est levée et les écarts entre niveaux sont sensiblement égaux (à ≈ 1 MHz près). Il suffit alors d'appliquer un champ radio-fréquence à

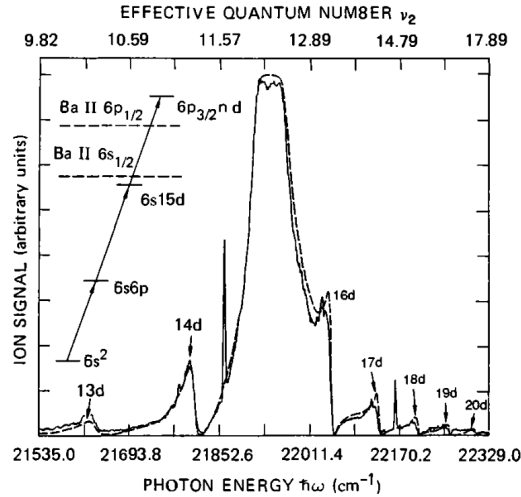


FIGURE 1.16 – Spectres d'auto-ionisation autour de la transition $6s15d - {}^1D_2 \rightarrow (6p_{3/2}n'd)_{J=3}$ du baryum. Ici ν_2 est le nombre quantique effectif pour les états $(6p_{3/2}n'd)_{J=3}$. Tiré de [23].

la fréquence de l'écart entre ces niveaux et lentement diminuer le champ électrique pour transférer tous les atomes dans le dernier état de la multiplicité, correspondant à un état circulaire $l = l_{max} = n - 1$. Cette technique présente l'intérêt d'obtenir les atomes dans un seul état de manière très pure. Cependant, elle est difficilement réalisable dans notre cas dans la mesure où les défauts quantiques des états f de l'ytterbium sont encore trop forts pour "être dans la multiplicité". Il faudrait donc partir d'un état g qui est lui-même difficile à créer de manière pure. D'autre part cette méthode impose de travailler avec un moment orbital de $l_{max} = n - 1$ et ne permet pas une sélectivité en l .

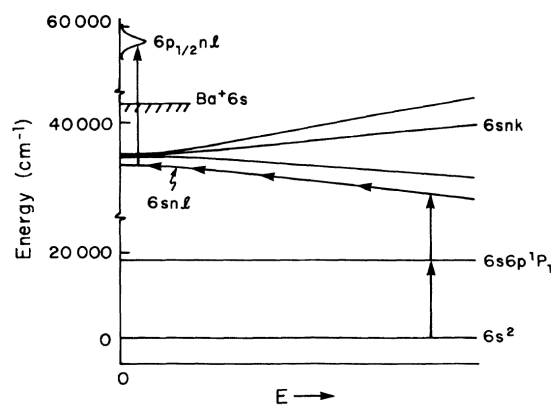


FIGURE 1.17 – Schéma de la technique de *Stark switching*. On excite l'état propre en champ $6snk$, puis on suit cet état en descendant le champ pour finir dans l'état l correspondant. Un troisième laser sur la transition de l'ion Ba^+ permet d'exciter l'état auto-ionisant. Tiré de [17]

- La deuxième solution est de *contourner* les règles de sélection en champ nul en effectuant l'excitation en champ électrique (figure 1.17). En effet, les états propres en champ sont des superpositions des états de moments orbitaux différents à champ nul (*i.e.* l'état propre en champ $|nk\rangle$ peut s'écrire comme combinaison $|nk\rangle = \sum_l c_l(F) |nl\rangle$). Par une transition à 1 ou 2 photons on peut exciter l'état de la multiplicité $|nk\rangle$ en champ électrique correspondant à l'état de moment orbital l à champ nul, puis en redescendant adiabatiquement le champ pour éviter tout transfert vers d'autres états $|nk'\rangle$, on peut finir dans l'état propre $|nl\rangle$. Cette technique dite du *Stark switching*, proposée par Freeman et Kleppner [40], a été utilisée dans plusieurs expériences pour étudier l'auto-ionisation des séries de moment orbital élevé [16, 17, 34]. Les défauts quantiques des différents l de la multiplicité étant très proches, la difficulté consiste à descendre le champ suffisamment lentement pour satisfaire la condition d'adiabaticité. Son avantage réside dans le fait qu'elle permet une sélectivité en l .

En utilisant la technique de Stark-Switching, Jones et Gallagher ont pu montrer que le taux d'auto-ionisation décroît rapidement avec le moment orbital l [17]. Leur expérience réalisée sur un jet d'atomes de baryum consiste à exciter des états de Rydberg de moment orbital l de 4 à 11 et de nombre quantique principal n de 11 à 13. Une impulsion laser est ensuite appliquée et la longueur d'onde est balayée autour de la transition de l'ion $\text{Ba}^+ 6s_{1/2} \rightarrow 6p_{1/2}$. La largeur du spectre d'auto-ionisation est mesurée et l'on constate une nette diminution de cette largeur avec le moment orbital. Cette diminution est confirmée par un calcul théorique basé sur (1.64). Dans les calculs théoriques et les données expérimentales, un plateau est atteint à partir de $l = 9$: la largeur du spectre correspond alors au taux de désexcitation radiative du niveau de l'ion, c'est à dire approximativement $2\pi \times 20$ MHz. Notons que le taux d'auto-ionisation continue à chuter après $l = 9$, l'effet se ressent alors dans l'efficacité d'auto-ionisation qui chute drastiquement. On est alors dans un régime où le cœur est complètement isolé et son excitation n'a plus aucun effet sur l'électron Rydberg. Cette étude confirme la faisabilité d'utiliser une transition du cœur ionique pour la manipulation optique des atomes de Rydberg.

1.2.3 Perspective de l'expérience *Rydberg Ytterbium*

Description générale de l'expérience

L'objectif principal de l'expérience *Rydberg Ytterbium* est l'étude des systèmes fortement corrélés avec des atomes de Rydberg. Contrairement à la plupart des expériences de Rydberg, nous n'avons pas choisi un atome alcalin mais un atome à deux électrons de valence, le deuxième électron de valence nous permettant la manipulation optique de l'atome dans l'état de Rydberg. Plusieurs choix s'offraient alors à nous : les alcalino-terreux, notamment le calcium, le strontium, le baryum mais aussi les terres rares dont la dernière couche s passe au dessus de la dernière couche f comme l'ytterbium. Grâce à sa couche $4f$ pleine, la polarisabilité du cœur ionique de l'ytterbium est grande (comparé au strontium par exemple) et donc il possède des défauts quantiques encore non négligeables pour les états de moment orbital l élevé. Ceci facilite beaucoup la technique de Stark switching dans la mesure où les écarts d'énergie entre niveaux adjacents sont encore conséquents à champ nul. De plus, l'atome d'ytterbium est, parmi les atomes divalents, l'un des plus facile à refroidir : depuis vingt ans, son refroidissement est réalisé par de nombreuses équipes [35, 41, 42] et pour plusieurs d'entre elles, jusqu'au régime de dégénérescence quantique.

Pour le type d'expérience envisagé, il faudra être dans les conditions de gaz gelé : durant le temps de vie des Rydberg, le déplacement des atomes doit être très inférieur à la distance inter-atomique. Ces conditions ne sont remplies que pour des gaz d'atomes ultra-froids. Le refroidissement atomique est donc une étape cruciale et sera discuté dans la section 2.1. À l'issue de cette étape, nous obtenons un nuage d'atomes de densité de l'ordre de 10^{10} atomes/cm³ à une température de l'ordre de $10 \mu K$.

Le piège magnéto-optique fonctionnant en régime stationnaire, il servira de réservoir à atomes. L'excitation Rydberg d'une partie du nuage se fera à deux ou trois photons. Une fois les atomes excités, on a donc un gaz d'atomes de Rydberg. S'ouvre à nous alors deux champs d'investigation : l'étude des systèmes d'atomes de Rydberg en interaction ou l'étude des plasmas ultra-froids. Ces deux champs requièrent l'utilisation de la transition du cœur ionique Yb⁺.

Simulation quantique avec des gaz d'atomes de Rydberg gelés

L'expérience récente réalisée à Munich dans l'équipe d'Immanuel Bloch [9] a permis de montrer des corrélations spatiales dans l'excitation Rydberg d'un gaz piégé dans un réseau optique. Cette expérience ouvre la voie à l'exploration de nouvelles phases de la matière grâce aux interactions longue portée des atomes de Rydberg. Comme dans l'expérience de l'Institut d'Optique [8], l'imagerie des atomes de Rydberg repose sur la fluorescence des atomes après désexcitation, elle est donc indirecte et souffre de certains problèmes (notamment elle peut détecter des faux-positifs). L'expérience d'Heidelberg dans l'équipe de Matthias Weidemüller a développé une technique purement optique [43, 44] basée sur la détection des atomes voisins décalés de résonances par interaction avec l'atome dans l'état d'intérêt. Cette technique est très élégante et a le mérite de permettre une détection non-destructive. Sa résolution spatiale est néanmoins limitée au rayon de blocage.

À certains égards notre expérience possède un avantage considérable dans la mesure où elle rend possible *l'imagerie in situ* des atomes de Rydberg. En envoyant un laser résonant avec la transition du cœur ionique $6s_{1/2} \rightarrow 6p_{1/2}$ et en récoltant la fluorescence qui en résulte, nous aurions la possibilité d'imager plus efficacement les Rydberg. Nous avons donc installé un système de lentilles sous vide dans notre enceinte. Celui-ci nous permet d'avoir une résolution de l'ordre du $\approx 3 \mu m$ à 369 nm. Ce système pourra être perfectionné en utilisant un objectif de microscope à la place des lentilles afin d'atteindre la résolution nécessaire pour pouvoir imager un site unique de réseau optique.

L'autre avantage de notre expérience est la possibilité de *piéger les atomes dans l'état de Rydberg*. Pour les atomes alcalins, les techniques de pièges optiques appliquées aux Rydberg sont basées sur la force pondéromotrice exercée par un laser sur l'électron Rydberg [45, 46]. Le potentiel exercé sur l'électron est donc positif et par conséquent cette force est *antipiégeante*. Par conséquent, cette technique est réservée aux pièges sur réseaux et ne permet pas de piéger dans une pince optique. Une autre technique est basée sur le couplage de l'état Rydberg à un état de cœur intermédiaire par un laser faiblement désaccordé dans le rouge [47]. Cette technique souffre du fait que le laser doit être très proche de résonance pour piéger efficacement les atomes. Ceci implique que le piégeage dépend très fortement de l'état Rydberg : celle-ci est donc inadaptée si l'on veut faire des expériences de transferts résonants.

Avec l'ytterbium, nous pouvons profiter de la transition du cœur ionique : cette transition est forte ($\Gamma = 2\pi \times 20$ MHz) ce qui induit une forte polarisabilité même si l'on est

très désaccordé. De plus, nous aurons alors la possibilité de trouver une longueur d'onde magique [18] pour le piégeage de l'état fondamental et de l'état de Rydberg (une longueur d'onde pour laquelle la polarisabilité de l'atome dans l'état fondamental $6s^2$ et dans l'état Rydberg $6snl$ est égale). Le piège en longueur d'onde magique pourrait éviter des désagréments dus aux différences de polarisabilité sur les bords des pièges qui créent des élargissements lors de l'excitation Rydberg.

Pour finir, la transition du cœur ionique pourrait permettre de refroidir le gaz d'atomes de Rydberg ou au moins limiter les effets de chauffage dus aux interactions.

Les possibilités de piégeage et de refroidissement nous permettraient d'étudier des phénomènes qui apparaissent sur des échelles de temps longues. Cette expérience serait, par exemple, idéale pour simuler des phénomènes de thermalisation dans les systèmes magnétiques [48].

Cristallisation de Wigner dans un plasma ultra-froid et neutre

Un autre champ de recherche qu'il serait possible d'explorer avec l'expérience *Rydberg ytterbium* est le domaine des plasmas ultra-froids et neutres (UNP).

L'univers est composé en majorité de matière sous forme de plasma, notamment dans les étoiles. Ces plasmas sont en règle générale très chauds ($10^6 - 10^8$ K) et denses ($10^{20} - 10^{35} / \text{m}^3$). Les plasmas ultra-froids, créés expérimentalement à partir de nuages atomiques refroidis par laser, sont des ordres de grandeurs moins chauds ($\approx mK$) et moins denses ($\approx 10^{16} - 10^{18} / \text{m}^3$) mais suscitent néanmoins l'intérêt dans la mesure où ils pourraient potentiellement aider à la compréhension des phénomènes élémentaires en jeu dans leurs homologues stellaires. La grandeur qui caractérise l'ordre spatial dans un UNP est le coefficient de couplage coulombien [49] :

$$\Gamma = \frac{E_{int}}{E_{th}} = \frac{e^2/4\pi\epsilon_0 a}{k_B T} \quad (1.68)$$

où a est la distance interatomique typique. Dans les plasmas chauds, ce coefficient est très inférieur à 1 : les particules ont des vitesses telles qu'elles ne subissent presque pas l'influence de leurs voisines. Au contraire les plasmas ultra-froids peuvent à priori approcher le régime fortement corrélé. À partir d'un coefficient supérieur à ≈ 170 , on atteint une phase avec des corrélations à longue distance [49]. La création de plasmas par photo-ionisation directe des atomes ultra-froids induit un chauffage dû au désordre dans le gaz (*disorder induced heating*). Dans un gaz de Rydberg au contraire, le phénomène de blocage dipolaire induit un certain ordre dans la répartition des atomes et l'ionisation du gaz de Rydberg pourrait donc conduire à un plasma beaucoup plus froid et corrélé [50] (figure 1.18). La fluorescence du cœur ionique de l'ion Yb^+ induite par laser pourrait alors nous permettre d'imager le plasma et par conséquent de le caractériser [51]. De plus, on pourrait aussi le refroidir dans une mélasse optique.

Notre expérience serait donc idéale pour l'investigation des transitions de phases du plasma vers un état ordonné de type crystal de Wigner [52]. En effet, ces cristaux ont été observés uniquement dans des plasmas chargés (notamment dans les expériences d'ions piégés [33]). Bien que des simulations numériques prédisent l'existence d'une structure ordonnée (pour $\Gamma > 170$ [49]), elle n'a jamais été observée dans un plasma neutre à ce jour. La possibilité de refroidir les ions du plasmas pourrait augmenter les chances d'atteindre cette phase nouvelle de la matière.

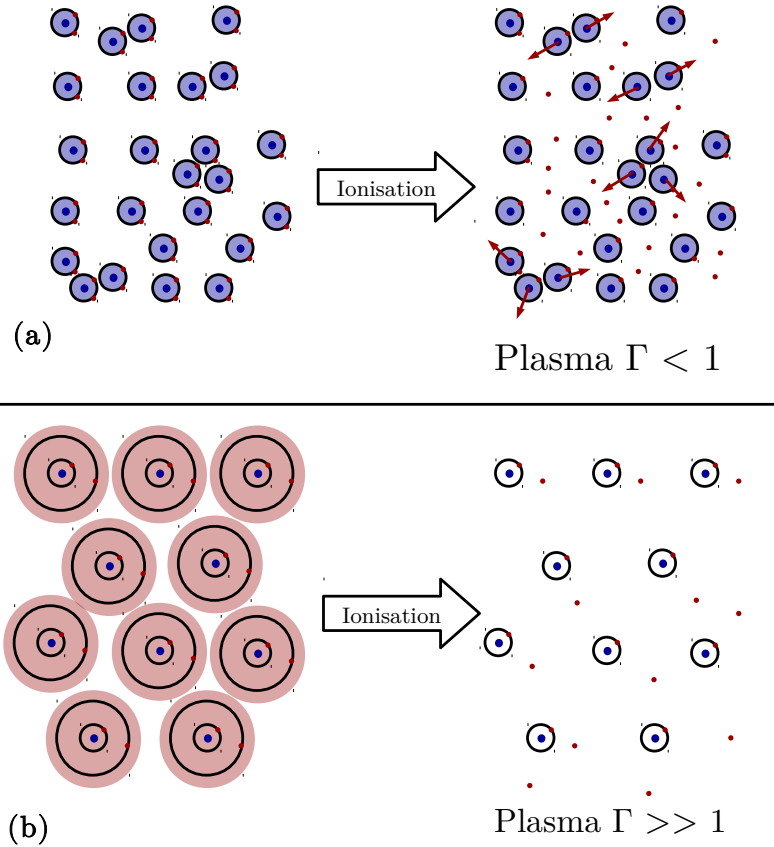
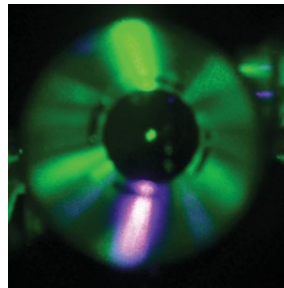


FIGURE 1.18 – Schéma pour mettre en évidence l'intérêt de passer par des atomes de Rydberg pour créer un plasma neutre ultra-froid. Lorsqu'on ionise directement un gaz gelé sans interaction (a), le désordre implique un chauffage du plasma. Au contraire, en partant du gaz de Rydberg (b), l'ordre crée par le blocage dipolaire minimise le chauffage du plasma.

Chapitre 2

Production d'un gaz froid d'atomes d'ytterbium dans des états de Rydberg



Sommaire

2.1	Production d'un nuage d'atomes froids d'ytterbium	48
2.1.1	Propriétés générales de l'atome d'ytterbium	48
2.1.2	Dispositif expérimental	50
2.1.3	Source atomique	51
2.1.4	Ralentissement Zeeman du jet atomique	53
2.1.5	Collimation du jet et chargement du MOT 3D	60
2.2	Excitation vers des états de Rydberg et détection	67
2.2.1	Excitation Rydberg	67
2.2.2	Détection des atomes de Rydberg : ionisation en champ	70
2.2.3	Automatisation de l'expérience	73
	Conclusion et perspectives	75

Dans ce chapitre, l'attention sera portée sur la description du montage expérimental et des résultats relatifs au refroidissement de l'ytterbium obtenus au cours de cette thèse. Pour plus de détails sur la conception du dispositif et les simulations, j'invite à consulter la thèse du précédent doctorant Alexandre Zuliani [19].

2.1 Production d'un nuage d'atomes froids d'ytterbium

2.1.1 Propriétés générales de l'atome d'ytterbium

Propriétés thermodynamiques

L'ytterbium est un métal, découvert au début du XX^{ème} siècle par G. Urbain et C.A. von Welsbach, qui fait partie du groupe des lanthanides. De couleur grise, il se présente sous forme solide aux conditions de pression et de température ambiante. La pression de vapeur saturante à température ambiante étant trop faible, il est nécessaire de le chauffer jusqu'aux alentours de 350 °C pour obtenir une vapeur compatible avec le chargement d'un piège magnéto-optique.

Structure atomique

La configuration électronique de l'ytterbium est $[Xe]4f^{14}6s^2$. Bien que l'on n'exclue pas la possibilité d'utiliser d'autres isotopes, nous avons uniquement utilisé l'isotope 174 dans les expériences que nous avons menées jusqu'à présent. Cet isotope est le plus abondant (Table 2.1). C'est un boson de spin nucléaire nul et, par conséquent, de moment cinétique total nul ($J = 0$) dans son état fondamental. La structure de l'atome présente un état fondamental singulet 1S_0 . Si l'on place un électron sur la couche $6p$, on obtient les quatre premiers états excités : l'état singulet (1P_1) de spin total nul et les états triplets (3P_0 , 3P_1 et 3P_2) de spin unité.

Isotope	Abondance naturelle	Spin nucléaire
^{168}Yb	0.13 %	0
^{170}Yb	3.05 %	0
^{171}Yb	14.3 %	1/2
^{172}Yb	21.9 %	0
^{173}Yb	16.1 %	5/2
^{174}Yb	31.8 %	0
^{176}Yb	12.7 %	0

TABLE 2.1 – Abondance naturelle et spin nucléaire des isotopes de l'ytterbium

Transitions optiques pour le ralentissement et le refroidissement

À la température de 350°C, à laquelle nous obtenons un flux atomique suffisant, la plupart des atomes ont une vitesse très élevée comme le montre la distribution de Maxwell-Boltzman (figure 2.6). Il sera donc nécessaire d'introduire un ralentisseur Zeeman entre la source et la zone du piège magnéto-optique pour atteindre des vitesses proches de la

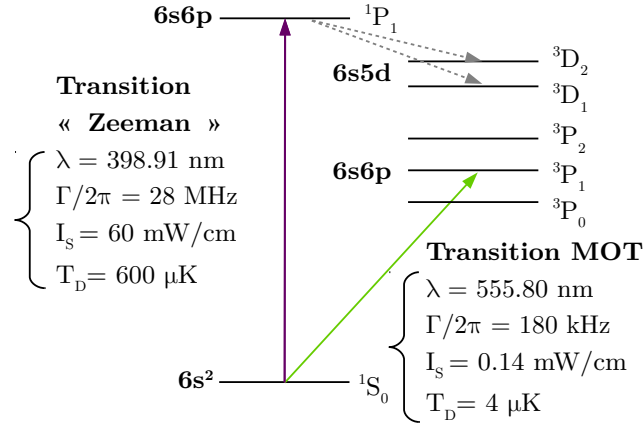


FIGURE 2.1 – Niveaux pertinents pour le refroidissement Doppler de l'ytterbium, les grandeurs caractéristiques sont reportées sur la figure.

vitesse de capture de ce piège. Selon les règles de sélection optique en couplage LS , la seule transition autorisée à partir de l'état fondamental est la transition $^1S_0 \rightarrow ^1P_1$ (Figure 2.1). Celle-ci présente l'intérêt d'avoir une grande largeur naturelle et donc une pression de radiation très forte¹, ce qui la rend attrayante pour le ralentissement Zeeman. Cela étant, elle possède deux inconvénients majeurs pour son utilisation dans un piège magnéto-optique : d'une part, l'état 1P_1 se désexcite partiellement dans l'état $4f^{13}5d6s^2(7/2, 3/2)_{j=2}$ et dans les états $^3D_{1,2}$ [53], qui se désexcitent eux mêmes dans les états métastables $^3P_{0,2}$. Ceci pourrait être gênant pour le chargement d'un piège magnéto-optique dans la mesure où les atomes seraient insensibles au refroidissement pendant le temps qu'ils passent dans ces états (la durée de vie typique dans un piège magnéto-optique sur cette transition est de 200 ms [53]). D'autre part, la limite basse de température dans un piège magnéto-optique étant proportionnelle à la largeur du niveau, un piège magnéto-optique sur cette transition serait relativement chaud². Par conséquent, cette transition sera utilisée exclusivement pour le ralentissement Zeeman.

L'autre transition significativement forte est la transition d'inter-combinaison $^1S_0 \rightarrow ^3P_1$. Du fait qu'elle ne conserve pas le spin total, elle est interdite en couplage LS mais, grâce au couplage spin-orbite fort dans l'ytterbium, elle est faiblement autorisée. La largeur naturelle de ce niveau est donc relativement faible ($\Gamma/2\pi = 180 \text{ kHz}$) : il en résulte une faible force de pression de radiation maximale mais aussi (et c'est un avantage) une température minimale de refroidissement Doppler relativement basse ($T_D \approx 4.2 \text{ } \mu\text{K}$) ce qui est intéressant pour le piège magnéto-optique. De plus, contrairement à la transition $^1S_0 \rightarrow ^1P_1$ la transition est strictement fermée, ce qui évite d'avoir recours à un laser repompeur. Par conséquent, cette transition sera utilisée pour le piège magnéto-optique.

1. La force de pression de radiation maximale étant donnée par $F = \hbar k_L \Gamma \sigma_{ee}$ avec k_L vecteur d'onde du laser, Γ largeur du niveau et σ_{ee} population moyenne dans l'état excité

2. La limite basse de température pour le refroidissement Doppler est donnée par $T_D = \hbar \Gamma / 2k_b$, dans le cas de cette large transition : $T_D \approx 600 \text{ } \mu\text{K}$

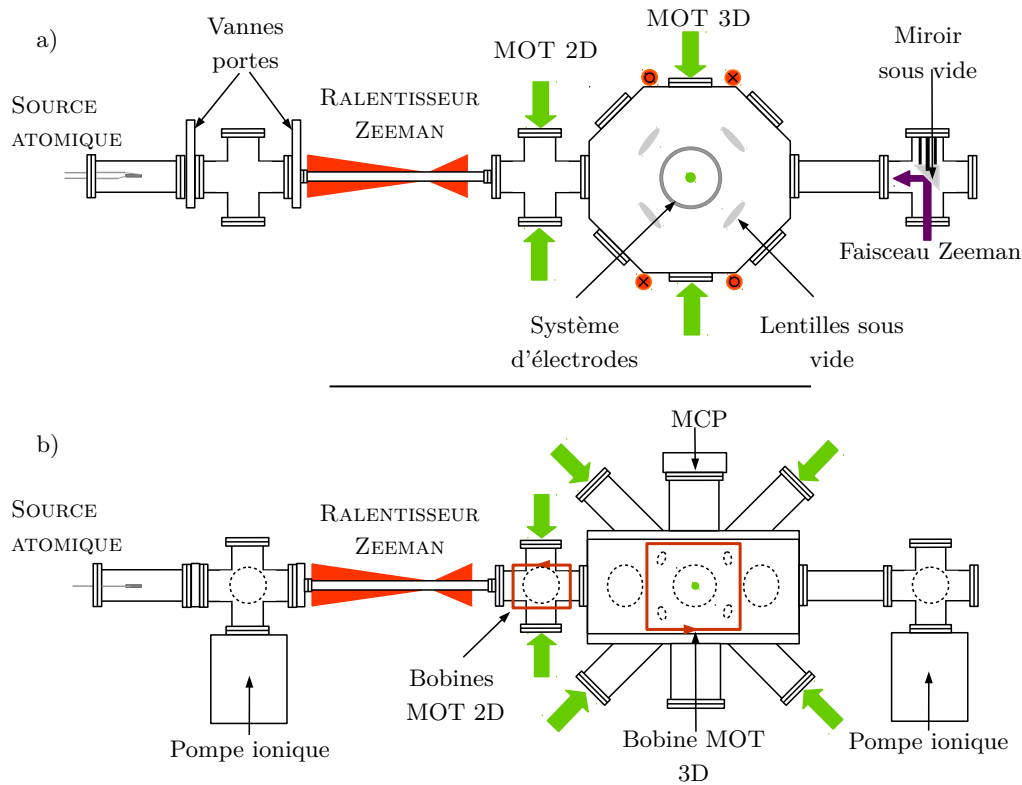


FIGURE 2.2 – Schéma de l'enceinte expérimentale. a) Vue de haut. b) Vue de coté

2.1.2 Dispositif expérimental

Le refroidissement atomique requiert de travailler sous ultra-vide afin d'éviter les collisions avec le gaz atmosphérique. Le dispositif expérimental (figure 2.2) est donc constitué d'une chambre à vide que l'on peut diviser en deux parties.

La première partie est constituée essentiellement de la source atomique (dispenser), fixée sur deux électrodes d'une bride de passage à vide. À l'autre extrémité du tube, nous avons placé une vanne porte qui facilite le changement du dispenser³. Vient ensuite une croix 6-axes dont deux des axes sont occupés par des hublots permettant de s'assurer de la présence du jet atomique et du bon alignement du faisceau ralentisseur. Dans cette partie, la pression est maintenue à $\approx 3 \times 10^{-9}$ mbar (dispenser éteint) par une pompe ionique 40 L/s

Un diaphragme de 6 mm sépare cette partie de la seconde partie. Ce diaphragme sert à sélectionner les atomes de vitesse transverse faible et assure de plus un pompage différentiel entre les deux parties de l'expérience⁴. Un tube de 31 cm et de format CF-16 constitue la partie de ralentissement Zeeman. À la suite, se trouve la croix 6 axes dédiée au piège magnéto-optique 2D. Vient ensuite la chambre expérimentale principale, com-

3. Il est nécessaire de faire le changement de dispenser sous atmosphère neutre. La vanne permet de maintenir le vide dans le tube où se situe le dispenser, on peut ainsi l'amener dans une boîte à gants et "casser" le vide sous argon.

4. La source atomique, chauffée à environ 350 °C, provoque potentiellement une augmentation de la pression. Une telle augmentation peut s'avérer critique pour le chargement du piège magnéto-optique : le diaphragme induit un différentiel de pression entre les deux parties permettant de conserver une pression convenable dans la chambre expérimentale.

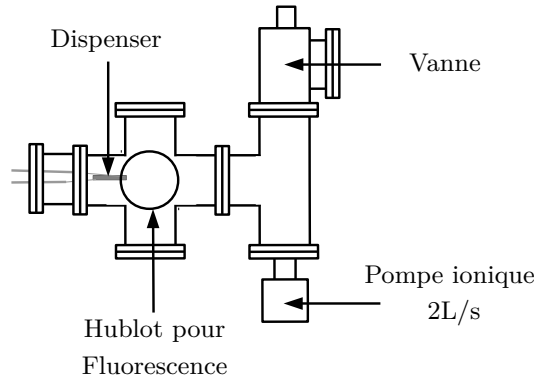


FIGURE 2.3 – Schéma de la cellule de spectroscopie. Cette cellule est une deuxième enceinte à vide que nous utilisons uniquement pour l’asservissement des lasers de refroidissement.

posée de nombreux accès optiques (dont six hublots CF-40 pour les faisceaux du piège magnéto-optique, quatre pour l’imagerie atomique et 8 CF-16 pour les faisceaux d’excitation Rydberg et les faisceaux de piège dipolaire), d’un système d’électrodes, d’un MCP pour la détection des atomes de Rydberg, et d’un couple de deux lentilles de focale 75 mm dans les axes d’imagerie. Dans l’alignement de la source atomique et du ralentisseur se situe une croix 6 axes, sur laquelle était fixée le hublot (non représenté sur le schéma) permettant le passage du faisceau du ralentisseur Zeeman. Ce hublot était chauffé à environ 150 °C pour éviter que l’ytterbium ne se dépose dessus et ainsi affecte la transmission optique du hublot. Ceci faisait augmenter la pression dans l’enceinte et augmentait le risque de fuite à cause des nombreuses dilatations et contractions liées respectivement à l’allumage et à l’extinction du ruban chauffant. Pour améliorer cette situation, nous avons remplacé la croix 4 axes par une croix 6 axes dont un des axes latéraux est occupé par une bride sur laquelle est fixé un miroir. Celui-ci est fixé de manière à ce que le faisceau arrivant par le hublot opposé soit réfléchi dans l’axe du ralentisseur Zeeman. Ceci nous évite de devoir chauffer le dispositif, puisque les atomes d’ytterbium viennent maintenant se coller au miroir ce qui n’affecte que faiblement sa réflexion. Cette deuxième partie est aussi maintenue sous vide par une pompe ionique 40 L/s. Après un étuvage poussé de cette partie de l’enceinte, la pression est descendue à 2×10^{-9} mbar mais elle a lentement augmenté, en quelques semaines, pour atteindre environ 2×10^{-8} mbar. Cette pression trop élevée implique un temps de vie des atomes inférieur à 1 seconde et limite donc notre capacité à piéger un grand nombre d’atomes. Cela étant, pour les expériences réalisées au cours de la thèse, cette limite n’a pas été gênante. L’origine de la fuite n’est à ce jour pas déterminée, le diagnostic étant très difficile.

Notons que nous utilisons une deuxième enceinte à vide qui est utilisée uniquement pour l’asservissement des lasers de refroidissement (voir figure 2.3). Essentiellement, celle-ci comprend un passage à vide, qui sert à alimenter un dispenser et trois axes optiques qui servent au passage des faisceaux et à la récolte de la fluorescence.

2.1.3 Source atomique

La source atomique est un dispenser de la marque Alvatec contenant 1 g d’ytterbium dans les proportions isotopiques naturelles. Le principal intérêt de ce type de source est

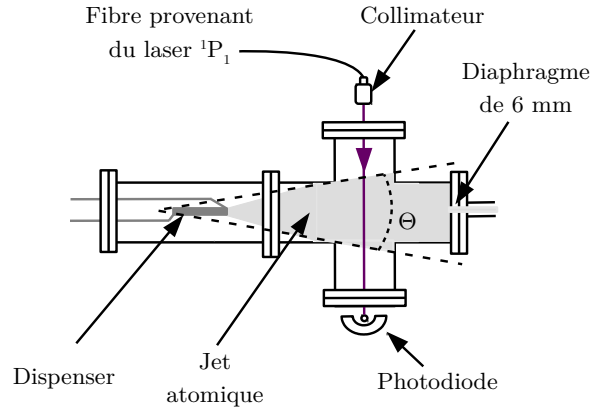


FIGURE 2.4 – Schéma du dispositif de caractérisation du jet atomique en sortie du dispenser sur la chambre principale. La zone grisée correspond au jet d'ytterbium. L'intensité du laser est d'environ $30 \text{ mW/cm}^2 \approx I_{sat}/2$. Le diamètre du jet au niveau du faisceau est estimé à 40 mm.

qu'il exige un investissement relativement faible : un simple passage électrique étanche et une alimentation de courant suffisent pour faire fonctionner la source. Ce qui a attiré notre attention est aussi le fait que grâce à sa forme, le dispenser agit en guide pour les atomes et doit donc créer un jet peu divergent, ce qui devrait permettre de maintenir un flux important jusqu'au diaphragme du ralentisseur Zeeman.

Nous avons caractérisé le jet atomique en mesurant l'absorption d'un laser sur la transition $6s^2 - ^1S_0 \rightarrow 6s6p - ^1P_1$ au niveau de la croix 6 axes en sortie du dispenser (Figure 2.4 et 2.5). Il est possible d'évaluer l'ordre de grandeur du flux intégré⁵ à partir de cette mesure d'absorption. La densité atomique (que l'on va considérer uniforme) n_0 est en effet reliée à la transmittance $T(= I/I_0)$ par la relation de Beer-Lambert : $T = e^{-\sigma nd}$ où σ est la section efficace d'absorption de la transition et d la longueur de jet atomique que traverse le faisceau. On obtient donc pour le flux intégré :

$$\frac{dN}{dt} = -\frac{\pi \bar{v} d}{\sigma} \ln T \quad (2.1)$$

où $\bar{v} = \int_0^{+\infty} v p(v) dv$ est la vitesse moyenne des atomes dans la direction perpendiculaire à l'axe du faisceau. Un ajustement des spectres d'absorption avec une fonction somme de sept gaussiennes (une par isotope/projection du spin...) permet d'accéder à la transmittance à résonance pour chaque isotope et ainsi d'estimer le flux atomique grâce à la relation (2.1) (figure 2.5). La largeur à 1/e des profils d'absorption (environ 130 MHz) nous renseigne sur la distribution de vitesse transverse et permet de déduire un angle de divergence du jet $\Theta = 15^\circ$.

À l'aide de ces données on estime le flux atomique "utile", c'est à dire le nombre d'atomes traversant le diaphragme par unité de temps à 5×10^{10} atomes/s pour un courant nominal de 9 A sur le dispenser⁶. Dans ce régime de fonctionnement et en prenant en compte la masse d'ytterbium présente dans le dispenser, on estime la durée de vie d'un

5. Par flux intégré, on entend ici le flux intégré sur la section du tube CF40, c'est à dire le nombre d'atomes sortant du dispenser par unité de temps

6. Ce courant est le courant nécessaire pour maintenir une absorption d'environ 2.5 % au niveau de la croix. Celui-ci peut augmenter au cours de la vie du dispenser.

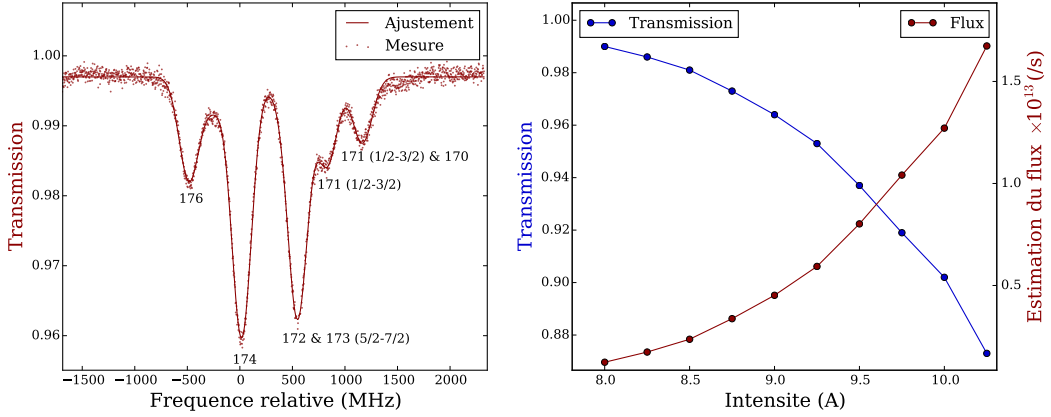


FIGURE 2.5 – À GAUCHE : Courbe d'absorption sur le niveau 1P_1 et à un courant de 9 A sur le dispenser. L'ajustement est fait avec une somme de 7 gaussiennes, correspondant chacune à la transition d'un isotope. À DROITE : Minimum de transmission à résonance avec l'isotope 174 en fonction de l'intensité sur le dispenser (bleu) et estimation du flux atomique correspondant avec la formule (2.1)(rouge)

dispenser à environ 2 ans, ce qui est compatible avec celle constatée expérimentalement (de l'ordre de 1 an).

2.1.4 Ralentissement Zeeman du jet atomique

Les atomes sortent du dispenser avec une grande vitesse longitudinale ($\approx 200\text{-}300$ m/s) et il convient donc de les ralentir pour atteindre la vitesse de capture du piège magnéto-optique. Pour ce faire, on utilise un ralentisseur Zeeman. Le ralentissement Zeeman est une technique expérimentale basée sur la force de pression de radiation exercée par un laser sur un atome lorsque le laser est à résonance avec une transition de l'atome considéré. L'idée étant qu'à chaque absorption d'un photon par l'atome, il reçoit une impulsion $\hbar k_L$ dans le sens de propagation du laser, ce qui le ralentit, et rémet ensuite – par émission spontanée – un photon dans une direction aléatoire, ce qui n'aura en moyenne aucune incidence. L'utilisation de cette force pour la manipulation des degrés de liberté externe de particules fut démontrée pour la première fois à la fin des années 1960 par A. Ashkin [54], lequel souligna les possibilités de l'utiliser en physique atomique.

La force de pression de radiation

On considère d'une part, un atome qui possède un niveau fondamental et un niveau d'énergie excité d'énergie $\hbar\omega_{at}$ et de largeur Γ et d'autre part, un laser de vecteur d'onde \vec{k}_L . L'expression de la force de pression de radiation exercée par le laser sur l'atome est donnée par :

$$\vec{F} = \frac{\Gamma}{2} \frac{s(\vec{R})}{1 + s(\vec{R})} \hbar k_L \vec{k}_L \quad (2.2)$$

où $s(\vec{R})$ est le paramètre de saturation, son développement en fonction de la pulsation de Rabi $\Omega(\vec{R})$ et du désaccord entre le laser et l'atome $\delta = \omega_L - \omega_{at}$ est donné par $s(\vec{R}) = \frac{\Omega^2(\vec{R})/2}{\delta^2 + \frac{\Gamma^2}{4}}$.

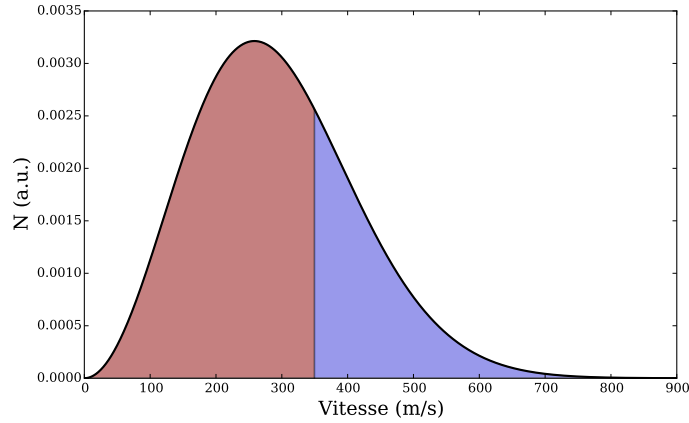


FIGURE 2.6 – Distribution de Maxwell-Boltzmann (à 350°C) des vitesses longitudinales dans le jet atomique à l'entrée du ralentisseur Zeeman, l'aire rouge correspond à la plage d'atomes capturés dans le ralentisseur

On remarque que cette force est naturellement donnée par le taux d'absorption de l'atome multiplié par l'impulsion du photon laser. Elle est maximale à résonance (i.e. désaccord nul) et pour une intensité laser $I(\vec{R})$ grande devant l'intensité de saturation I_s ⁷. Si l'atome possède une certaine vitesse v dans l'axe du laser, la pulsation du laser vue par l'atome est décalée par effet Doppler de la quantité $k_L v$. Il convient donc d'accorder la pulsation laser afin de compenser ce décalage. Mais au cours de la propagation de l'atome et sous l'effet de la pression de radiation, sa vitesse va diminuer et l'enjeu est donc de maintenir une condition de résonance tout le long de la propagation jusqu'à ce qu'il atteigne la vitesse voulue.

Principe du ralentisseur Zeeman

Pour maintenir la condition de résonance au fur et à mesure du ralentissement de l'atome, l'idée est de faire appel au déplacement Zeeman des niveaux d'énergie en champ magnétique [55]. On compense le décalage Doppler par le déplacement Zeeman des niveaux d'énergie en appliquant un gradient de champ magnétique $B_z(z)$ tel que l'on maintient la condition de résonance :

$$\omega_{at} - \frac{m_J g \mu_B B_z(z)}{\hbar} = \omega_L + k_L v(z) \quad (2.3)$$

où l'on a pris Oz comme axe de propagation, m_J et g sont respectivement le nombre quantique magnétique et le facteur de Landé de l'état excité. On a pris ici volontairement $m_J = 0$ pour l'état fondamental. Du fait de sa grande largeur naturelle ($\Gamma/2\pi = 30$ MHz) et puisque la force de pression de radiation est proportionnelle à cette largeur (équation (2.2)), la transition que nous avons choisie pour le ralentissement Zeeman est la transition $^1S_0 - ^1P_1$. L'intensité de saturation est quant à elle, particulièrement élevée ($I_s = 60$ mW/cm²) et il est donc difficile de saturer beaucoup la transition. Dans la mesure où la force de pression de radiation ne varie que très peu avec l'intensité, nous avons décidé de travailler à $I = I_s$. Dans ce régime, la force maximale que l'on peut appliquer sur les

7. À résonance (i.e. $\delta = 0$) : $s(\vec{R}) = s_0 = I(\vec{R})/I_s$

atomes est donnée par :

$$F_{z,max} = -\frac{\Gamma}{4}\hbar k_L \quad (2.4)$$

On peut calculer le profil de vitesse $v(z)$ le long de la propagation et ainsi déduire le profil de champ magnétique théorique qu'il faut appliquer pour réaliser le ralentissement Zeeman :

$$B_z(z) = -\frac{\hbar\delta}{m_J g \mu_B} - \frac{\hbar k_L v_i}{m_J g \mu_B} \sqrt{1 - \frac{F_{z,max}}{M v_i^2} z} \quad (2.5)$$

où v_i est la vitesse d'entrée maximale que l'on souhaite ralentir.

Le profil de champ magnétique

Dans notre dispositif, compte tenu de la distribution de vitesse entrante dans le ralentisseur (figure 2.6), nous avons choisi $v_i = 350$ m/s ce qui permet de capturer environ 60% des atomes. D'autre part, nous avons choisi un désaccord laser δ non-nul ($\delta/2\pi = 500$ MHz $\approx 17 \Gamma/2\pi$) pour que les atomes, une fois sortis du ralentisseur, ne soient plus résonants avec le laser et puissent ainsi atteindre la zone du piège magnéto-optique. La vitesse de sortie des atomes est réglée par le champ final dans la deuxième bobine et elle est ajustée pour être de l'ordre de grandeur de la vitesse de capture du piège magnéto-optique 3D (environ 5 m/s).

Pour la modélisation et les choix de conception des bobines de champ magnétique, je m'en remets à la thèse d'Alexandre Zuliani [19]. Le point essentiel pour garantir le bon fonctionnement du ralentisseur est de vérifier l'adhérence des atomes au gradient de champ magnétique. En effet, si le gradient est trop fort, la condition de résonance risque d'être perdue au cours de la propagation des atomes. Dans le but de vérifier l'homogénéité du champ en fonction du type de bobinage et "l'adhérence" des atomes au gradient, des simulations ont donc été effectuées. Sur la figure 2.7 est reportée une photographie de notre ralentisseur Zeeman, composé de 2 bobines indépendantes (B_1 et B_2) garantissant le profil de champ et d'une dernière bobine (B_c) en série avec B_2 mais bobinée en sens contraire. Cette dernière bobine permet de faire redescendre rapidement le champ magnétique longitudinal et ainsi d'éviter un champ résiduel au niveau de la zone du piège magnéto-optique. Notons qu'au courant nominal, les bobines n'ont pas besoin de refroidissement, la chaleur dissipée étant relativement faible (≈ 7 W par bobine)

Système laser maître-esclave

À la longueur d'onde de la transition $^1S_0 - ^1P_1$, il est difficile de trouver un laser fin spectralement et assez puissant pour pouvoir appliquer une intensité proche de l'intensité de saturation ($I_s = 60$ mW/cm²). La solution que nous avons adoptée est d'utiliser un système maître-esclave. Les lasers de type diode à cavité étendue sont disponibles à cette longueur d'onde et ont une largeur qui convient parfaitement au ralentissement ($\ll \Gamma$) mais ils ont l'inconvénient d'être relativement peu puissants. L'idée est de se servir d'un tel laser comme laser «maître» et de l'injecter dans une diode «esclave» puissante et initialement large pour forcer la diode «esclave» à laser dans le mode du «maître». Pour réaliser cette injection, il faut d'une part ajuster la température de la diode esclave pour que sa zone de gain soit proche de la longueur d'onde voulue et d'autre part, il faut que le mode transverse du laser «maître» épouse au maximum celui du laser esclave. Le courant de la diode «esclave» joue lui aussi un rôle dans la mesure où il influe sur l'indice optique

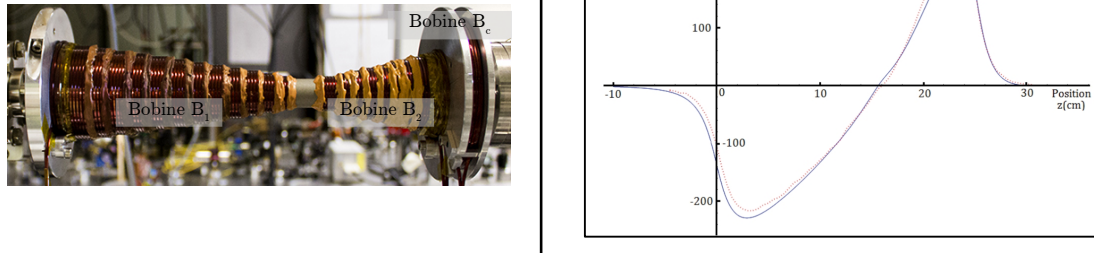


FIGURE 2.7 – À GAUCHE : Photographie du ralentisseur Zeeman. À DROITE : Champ magnétique longitudinal dans le ralentisseur Zeeman (en bleu : champ théorique, en tirets rouge : champ mesuré après bobinage). Figure issue de [19]

de la cavité et donc sur le mode longitudinal qui peut laser. Le laser maître utilisé est une diode montée en cavité étendue (Toptica-DL-pro) d'une puissance de 25 mW (à courant nominal et après isolateur optique) et dont la largeur naturelle est annoncée inférieure au MHz. Durant les premiers mois, nous utilisons une diode «esclave» non adaptée : d'une part, elle émettait trop loin de la transition et avait donc besoin d'être beaucoup refroidie pour être injectable et d'autre part, elle était multi-mode transverse. Avec 10 mW de laser «maître» nous injectons environ 60 mW de laser esclave ce qui est relativement peu, en comparaison avec les performances obtenues dans d'autres équipes [56]. Nous avons donc décidé d'acheter une diode laser mono-mode transverse et plus proche de la longueur d'onde désirée (Nichia NDV4313).

On adapte le mode transverse du laser maître grâce à un télescope (figure 2.8), l'alignement étant assuré par deux miroirs d'injection qui nous permettent d'entrer avec la bonne position et le bon angle dans l'isolateur optique. La diode «esclave» est montée dans un boîtier conçu au laboratoire Aimé Cotton⁸, dans lequel elle peut être refroidie jusqu'à -25 °C grâce à des modules Peltier multiples étages. La température de la diode décale sensiblement la zone de gain qui est elle-même très large ce qui en fait un paramètre peu critique. Le courant joue lui un rôle très important car il influe sur l'indice optique de la cavité or si l'indice est tel que la cavité rejette le mode du laser maître, l'injection est impossible. Ceci implique une périodicité de l'injection avec le courant, ce que nous avons observé (de manière très similaire à [56]). L'injection est contrôlée en observant le signal de fluorescence du faisceau Zeeman dans les hublots de sortie du dispenser (voir figure 2.2). Avec la nouvelle diode Nichia NDV4313, nous produisons environ 100 mW avec 5 mW de laser maître. Une fois l'injection obtenue, elle reste opérante pour la journée sauf en cas de saut de mode du laser maître (auquel cas il faut réajuster le courant du laser esclave). La puissance disponible pour le ralentisseur après tout le système optique est supérieure à 50 mW.

Asservissement du laser maître

Il est essentiel que le laser soit asservi en fréquence pour être maintenu à -500 MHz de la fréquence de résonance de la transition $^1S_0 \rightarrow ^1P_1$. Les fluctuations du laser doivent être

8. Pour plus de précisions, voir [19]

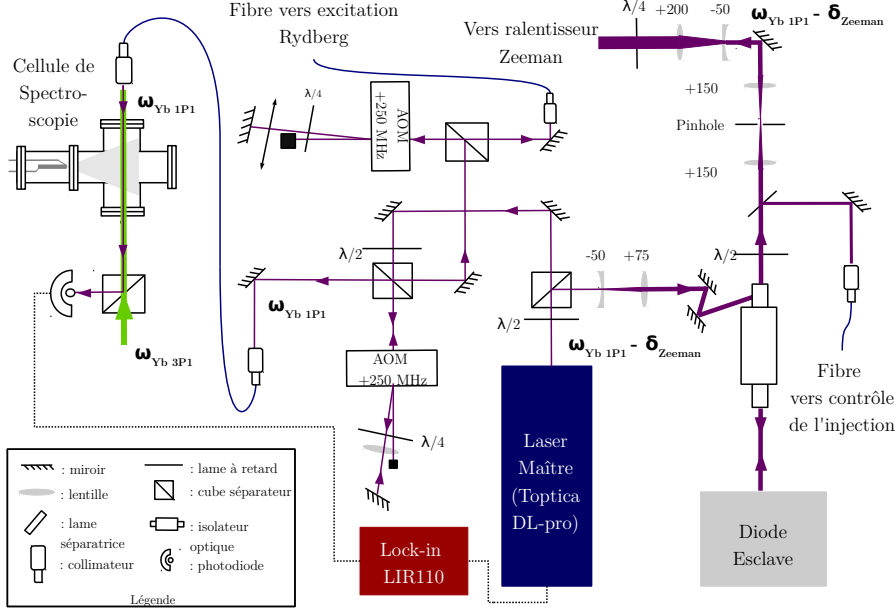


FIGURE 2.8 – Montage optique pour la transition $^1S_0 - ^1P_1$. Les pulsations par rapport aux transitions sont notées en gras aux endroits cruciaux.

faibles devant la largeur de raie. Dans notre cas, on cherche donc à stabiliser la fréquence laser à mieux que 1 MHz. Une partie du faisceau laser «maître» est dédiée à l'asservissement en fréquence. Le faisceau est décalé de $-\delta_{Zeeman}/2\pi = +500$ MHz par double passage dans un modulateur acousto-optique puis est envoyé par fibre optique vers la cellule de spectroscopie. Le signal d'absorption dans la cellule est élargi par effet Doppler à une largeur d'environ de 200 MHz. Avec une largeur Doppler aussi faible, il est difficile de faire ressortir un pic de saturation par la technique d'absorption saturée standard. De plus, l'intensité de saturation ($I_s = 60$ mW/cm²) de cette transition est tellement grande que nous n'avons pas assez de puissance dans le laser maître pour atteindre une intensité grande devant I_s . À l'opposé, l'intensité de saturation de la transition $^1S_0 - ^3P_1$ est beaucoup plus faible ($I_s = 0.14$ mW/cm²). Inspirés de [35], nous avons donc décidé de travailler en absorption croisée avec cette transition.

Le principe de l'absorption croisée est, en beaucoup de points, similaire au principe de l'absorption saturée standard. L'idée est d'envoyer le laser pompe très saturant et résonnant (pour une certaine classe de vitesse) avec le niveau 3P_1 et le laser sonde faiblement saturant autour du deuxième niveau atomique 1P_1 (voir figure 2.8). Ce dernier laser est le laser "maître" à 398.9 nm que l'on veut asservir. Comme le laser pompe est très saturant, il va peupler la moitié des atomes de la classe de vitesse considérée dans le niveau 3P_1 ce qui va créer une fine fenêtre de transparence dans le signal d'absorption du laser sonde, générant ainsi un signal «sub-Doppler» sur lequel on pourra s'asservir. Dans notre cas, le faisceau pompe (voir figure 2.13) est résonant⁹ avec la transition $^1S_0 - ^3P_1$ et peuple donc une partie des atomes de vitesse nulle dans l'état 3P_1 . Par conséquent, le pic de transparence du signal d'absorption du laser sonde sur la transition $^1S_0 - ^1P_1$ est aussi situé exactement à résonance.

L'intensité du faisceau pompe est d'environ 10 mW/cm² $\approx 75I_s$ et celui-ci est mo-

9. Ce laser est asservi par fluorescence saturée sur la transition $^1S_0 - ^3P_1$ (voir 2.1.5)

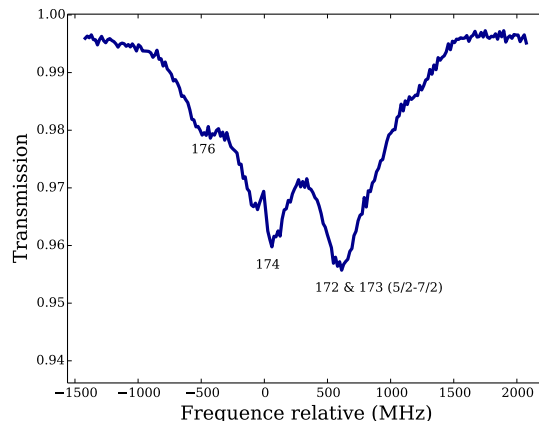


FIGURE 2.9 – Signal d'absorption croisée pour l'asservissement du laser $^1S_0 - ^1P_1$. On asservit le laser sur le pic de transparence (à 0 MHz sur la courbe) dû au pompage sur la transition $^1S_0 - ^3P_1$ de l'isotope 174.

dulé en fréquence à une profondeur de modulation de 5 MHz et une fréquence $f_{mod} = 20$ kHz grâce à un AOM en amont. Notons que cette technique nous affranchit d'appliquer une modulation de fréquence sur le laser sonde. Le signal d'absorption du laser sonde est mesuré avec une photodiode¹⁰ et envoyé sur un module de Lock-In¹¹. On génère le signal d'erreur en démodulant le signal à la fréquence f_{mod} . La rétroaction est générée par ce même module puis renvoyée sur le courant de la diode laser. Bien évidemment, le laser "esclave" subit aussi l'asservissement puisqu'il est injecté par le laser maître qui est, lui, asservi. Les fluctuations à long terme du laser ralentisseur, mesurées avec notre lambda-mètre WS-10 sont ainsi réduites à environ 1 MHz.

Resultats : caractérisation du ralentissement

Le faisceau ralentisseur est faiblement focalisant de manière à épouser la forme du jet (qui a tendance à diverger dans le ralentisseur). Son diamètre à l'entrée du ralentisseur est de 8 mm et de 6 mm en sortie. Avec ces paramètres, l'intensité moyenne du faisceau est estimée à 120 mW/cm^2 ($\approx 2I_s$).

Une première caractérisation du ralentissement a été effectuée en sondant les atomes à la sortie du ralentisseur au niveau de la croix 6-axes du MOT-2D. Un laser sondant la transition $^1S_0 - ^1P_1$ est envoyé avec un angle d'environ 70° par rapport au jet atomique et la fluorescence est récoltée sur une photodiode (figure 2.10). L'effet Doppler dû à la vitesse longitudinale des atomes dans le jet décale la résonance atomique de la quantité $\delta = \vec{k}_L \cdot \vec{v}$. On a donc pour chaque isotope une fonction maxwellienne centrée autour de la fréquence correspondant à la vitesse longitudinale moyenne. Du fait de l'angle relativement important entre la sonde et le jet, la sensibilité sur la vitesse longitudinale n'est pas optimale mais cela reste une bonne indication. Le pic de fluorescence pour le jet non ralenti (figure 2.10) est centré autour de 300 MHz ce qui correspond à une vitesse atomique moyenne de 300 m/s. Lorsque l'on allume le faisceau ralentisseur et que l'on allume le courant dans la bobine B_1 , on voit que la distribution se creuse à partir de la vitesse correspondant au

10. Thorlabs PDA36A

11. Toptica LIR110

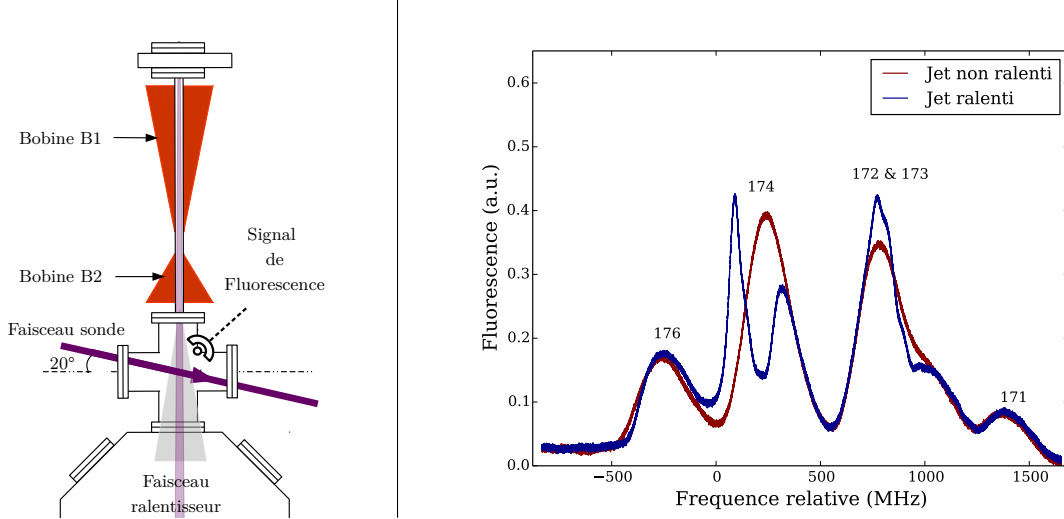


FIGURE 2.10 – À GAUCHE : Schéma du dispositif pour l’optimisation du ralenteur . À DROITE : Signal de fluorescence en fonction de la fréquence du laser sonde. La fréquence est donnée relativement à la résonance de l’isotope 174.

désaccord laser à champ nul (environ 150 m/s) jusqu’à la vitesse maximale de capture (environ 350 m/s) : plus le courant dans la bobine B_1 est grand, plus la vitesse maximale capturée est grande. L’action de la bobine B_2 est de ramener les atomes capturés par B_1 à vitesse faible : augmenter le courant dans B_2 diminue la vitesse finale du jet. Sur la figure 2.10, la vitesse finale est autour de 100 m/s, ce qui est encore très rapide. La vitesse finale doit être de l’ordre de la vitesse de capture du MOT-3D : ≈ 10 m/s. L’optimisation fine de ce paramètre a été effectuée en maximisant les taux de chargement du MOT-3D. Les courants optimaux trouvés expérimentalement sont très proches de ceux trouvés dans la simulation [19] , ce qui nous confirme le bon fonctionnement du ralenteur ¹².

Paramètre	Valeur expérimentale
$\delta_L/2\pi$	- 500 MHz
P_L	50 mW
d_L	6 - 8 mm
I_L	125 mW/cm ²
I_{B1}	1.50 A
I_{B2}	3.65 A

TABLE 2.2 – Tableau résumant les paramètres expérimentaux concernant le ralenteur Zeeman.

12. Notons que le paramètre le plus critique est le courant dans la bobine B_2 . Pour celui de la bobine B_1 , nous avons remarqué qu’au delà d’un certain courant (1.50 A), le gain sur le nombre d’atomes capturés est faible, le choix a été fait de le laisser à une valeur relativement faible pour minimiser le chauffage par dissipation dans les bobines.

2.1.5 Collimation du jet et chargement du MOT 3D

Une fois les atomes ralentis, leur vitesse est maintenant assez faible pour qu'ils soient capturés dans un piège magnéto-optique. La divergence angulaire du jet atomique en sortie du ralentisseur étant significative, une première étape de refroidissement transverse du jet est réalisée par un MOT 2D, puis les atomes atteignent la chambre principale où ils sont chargés dans un MOT 3D.

Le piège magnéto-optique, principe de fonctionnement

Le piège magnéto-optique s'est imposé comme la technique la plus efficace pour piéger et refroidir des atomes neutres. Le principe est d'utiliser la force de pression de radiation exercée par un laser proche de résonance pour ralentir les atomes jusqu'à des vitesses très faibles et les piéger dans une zone particulière grâce à l'action conjointe de cette force optique et d'un champ magnétique.

En utilisant une paire de lasers contra-propageants et faiblement désaccordés dans le rouge de la transition atomique, on peut montrer [57] que l'on va exercer une force de friction sur les atomes et ainsi les refroidir : c'est une mélasse optique. Si l'on ajoute à cela un gradient de champ magnétique, la condition de résonance va varier spatialement pour les niveaux magnétiques $m_j = -1$ et $m_j = +1$ et avec une polarisation des faisceaux adéquate (figure 2.11), on va créer une force de rappel sur les atomes créant ainsi un piège magnéto-optique. En 1D, la force des lasers contra-propageants, désaccordés de δ par rapport à la résonance atomique s'exprime [57] :

$$F_{z,\pm} = \pm \frac{\hbar k_L \Gamma}{2} \frac{s_0}{1 + s_0 + \frac{4}{\Gamma^2} (\delta \mp k_L v_z \pm g \mu_B b z)^2} \quad (2.6)$$

où l'on a pris Oz comme axe et $B_z(z) = bz$ comme gradient de champ magnétique. Lorsque les atomes entrent dans la zone délimitée par les faisceaux du piège, les atomes ayant une vitesse inférieure à une certaine vitesse de capture vont être ralentis et capturés dans une région proche du zéro de champ magnétique ($z = 0$ en l'occurrence). Pour ces atomes, le désaccord laser sera grand devant les décalages Zeeman et Doppler (i.e. $\delta \gg k_L v_z, g \mu_B b z$) : on peut linéariser l'expression (2.6). La force totale résultante apparaît alors comme la somme d'une force de friction et d'une force de rappel :

$$F_z = -\alpha v_z - \frac{1}{2} K z \quad (2.7)$$

créant ainsi un refroidissement et un confinement des atomes dans le piège. Ce résultat est généralisable en deux dimensions (MOT 2D) et en trois dimensions (MOT 3D).

Il ne faut pas perdre de vue que le processus fondamental du piège magnéto-optique est la séquence absorption - émission spontanée et c'est l'émission spontanée qui va limiter d'une part la densité atomique dans le piège et d'autre part sa température. Lorsqu'il y a peu d'atomes dans le piège, on peut considérer que les effets collectifs sont négligeables, la taille du nuage est donnée par la valeur moyenne z_0 de la distance au centre "pour un atome" [58]. La condition d'équilibre thermodynamique s'écrit :

$$\frac{1}{2} K z_0^2 = \frac{1}{2} M v_0^2 = \frac{1}{2} k_B T \quad (2.8)$$

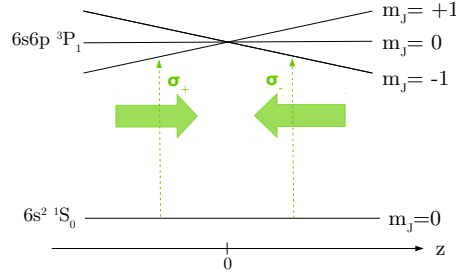


FIGURE 2.11 – Illustration de la force de rappel magnéto-optique : suivant leur position les atomes subissent un décalage Zeeman qui va les rapprocher de résonance avec le laser les ramenant vers champ magnétique nul.

où v_0 et T sont respectivement la vitesse moyenne et la température de l'atome à l'équilibre. Pour des conditions de refroidissement optimal, c'est à dire pour $\delta = -\Gamma/2$, la taille du MOT donne donc :

$$z_0 = \sqrt{\frac{\hbar\Gamma}{4k_L\mu_B b s_0}} \quad (2.9)$$

La taille du MOT étant fixée, la densité va augmenter au fur et à mesure de l'accumulation des atomes. La densité maximale sera limitée par le phénomène de réabsorption de photons [59] : plus la densité est grande, plus la probabilité pour qu'un atome absorbe un photon émis spontanément par un atome voisin est grande. Ceci va impliquer une force répulsive entre les atomes et ainsi limiter la densité (l'accumulation des atomes se fera alors au profit de la taille du nuage). Dans le régime de faible saturation, et dans les conditions de refroidissement optimale ($\delta = -\Gamma/2$), la densité maximale est donnée par :

$$n = \frac{16\pi}{6} \frac{g\mu_B b}{\hbar\lambda^2} \frac{1}{\Gamma} \quad (2.10)$$

On voit ici un des intérêts des raies étroites : la densité maximale est proportionnelle à l'inverse de la largeur de raie ! On peut donc obtenir une densité plus grande avec une raie étroite (jusqu'à 10^{12} atomes/cm³ sur la raie d'intercombinaison du strontium [60]).

Concernant la température du nuage atomique, elle va dépendre de la largeur du niveau excité, il convient de distinguer deux cas :

- Si la largeur du niveau est grande devant l'énergie de recul ($\Gamma \gg E_r/\hbar$)¹³, la limite basse de température est due au caractère aléatoire de l'émission spontanée. Celle-ci va en effet impliquer une diffusion en quantité de mouvement et donc limiter la température. On démontre [61] que la limite basse de température sera :

$$T_D = \frac{\hbar\Gamma}{2k_B} \quad (2.11)$$

Ce cas est celui des refroidissements sur raies larges des alcalins si l'on exclue tout processus sub-Doppler.

13. L'énergie de recul est l'énergie cinétique acquise par un atome, initialement à l'arrêt, après avoir absorbé ou émis un seul photon. La température associée au recul du photon ($T_r = E_r/k_B$) est la limite ultime de tout refroidissement impliquant émission spontanée.

- Si, au contraire, la largeur du niveau est proche voire inférieure à l'énergie de recul, la limite de température basse sera donnée par la «température de recul» :

$$T_r = \frac{3E_r}{2k_B} = \frac{3\hbar^2 k_L^2}{4Mk_B} \quad (2.12)$$

pour un refroidissement en trois dimensions. C'est le cas, par exemple, du refroidissement sur la raie d'intercombinaison du strontium [62, 63].

Le cas du refroidissement sur la transition $^1S_0 - ^3P_1$ de l'ytterbium est particulier puisque, bien qu'étant une raie d'intercombinaison, le rapport $\frac{\hbar\Gamma}{E_r}$ est ici de 23. On se situe donc entre les deux cas décrits précédemment (à titre de comparaison, pour la raie D_2 du césium ce rapport est de 2300, pour la raie d'intercombinaison du strontium, ce rapport est de 1.5). Quoiqu'il en soit, les températures les plus basses atteintes expérimentalement sont toutes sensiblement supérieures à la limite Doppler [35, 41, 64], ce qui montre que l'on reste toujours dans le régime limité par la diffusion en impulsion.

Comme indiqué par l'équation (2.6), la force que l'on va exercer sur les atomes est proportionnelle au facteur de saturation s_0 et donc à l'intensité laser que l'on applique. Dans le cas d'une transition aussi faible et avec des faisceaux de taille raisonnable (≈ 2 cm), il est très difficile de capturer une grande plage de vitesses. Il est donc indispensable de saturer la transition pour arriver à capturer une plage de vitesses plus grande. Bien sûr, le fait de saturer beaucoup va élargir la transition est donc chauffer les atomes. Cela étant, la température n'est pas un paramètre critique dans notre cas puisque nous ne cherchons pas à atteindre la dégénérescence quantique.

Pourquoi un MOT 2D sur la transition $^1S_0 - ^3P_1$ après le ralentisseur Zeeman ?

À la sortie du ralentisseur Zeeman, le jet atomique a une divergence angulaire très importante (figure 2.12). Dans la plupart des expériences utilisant un ralentisseur Zeeman, on essaie de rapprocher le plus possible la zone de piège pour maximiser le flux atomique entrant. Dans notre expérience, le besoin d'espace pour les nombreux accès optiques et le système d'électrodes nous a contraint à utiliser une enceinte assez grande, ce qui implique

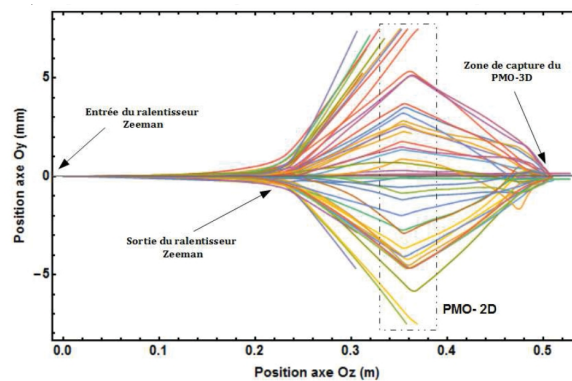


FIGURE 2.12 – Simulation de la séquence de ralentissement Zeeman et de refroidissement transverse du jet atomique. On remarque très bien la divergence du jet en sortie du ralentisseur et l'effet refocalisant du MOT 2D. Figure issue de [19]

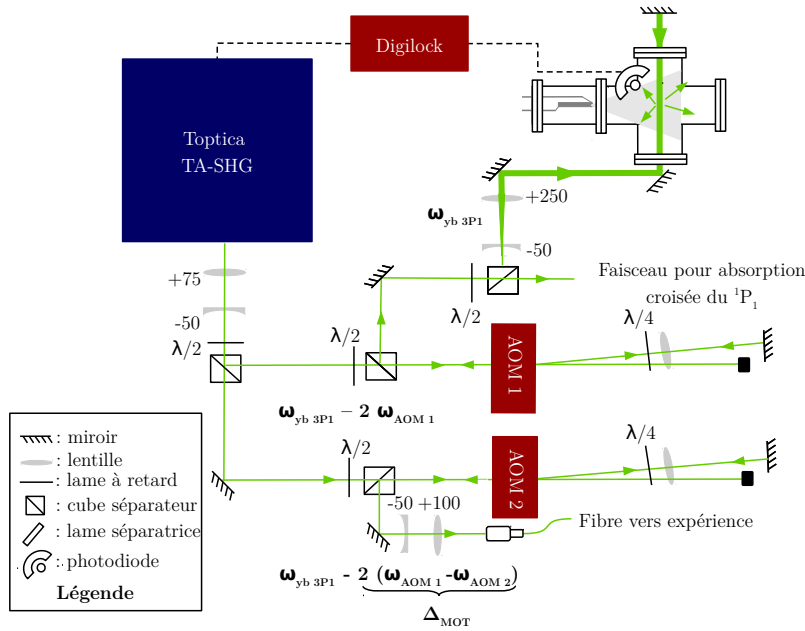


FIGURE 2.13 – Montage optique pour la transition $^1S_0 - ^3P_1$. Les pulsations par rapport aux transitions sont notées en gras aux endroits cruciaux.

une grande distance ralentisseur-MOT 3D. La solution qui a été trouvée est d'introduire un confinement transverse (piège-magnéto optique 2D) en sortie du ralentisseur.

Le MOT 2D est effectué sur la transition $^1S_0 - ^3P_1$. Du fait de la faiblesse de la transition et de la vitesse longitudinale des atomes limitant le temps d'interaction avec les faisceaux, le MOT 2D ne va pas créer un confinement en position et en vitesse mais va plutôt permettre de refocaliser le jet vers le centre de la chambre de science (figure 2.12). L'utilisation de la transition forte $^1S_0 - ^1P_1$ eut été moins judicieuse dans la mesure où, à cause de sa température Doppler très élevée, les atomes seraient sortis du MOT 2D avec une divergence comparable à celle en sortie du ralentisseur.

Système laser et asservissement en fréquence

Le laser du MOT est un système commercial Toptica TA-SHG. Ce modèle est constitué d'une diode à cavité étendue à 1111.60 nm, amplifiée par un amplificateur évasé ("Tapered Amplifier") et d'une cavité de doublage pour atteindre la longueur d'onde voulue : 555.80 nm. La puissance maximale obtenue à cette longueur d'onde en sortie du laser est d'environ 800 mW, ce qui est amplement suffisant pour notre utilisation.

Le montage optique est représenté sur la figure 2.13. Il est bien évidemment nécessaire de stabiliser le laser en fréquence. Ici, il est difficile d'obtenir une absorption forte puisque la raie est relativement faible. Pour asservir ce laser, nous utilisons donc un montage en fluorescence saturée. L'avantage de la fluorescence est que l'on travaille sur fond noir. Mis à part cela, le principe de cette technique est exactement le même que celui de l'absorption saturée standard. La partie dédiée à l'asservissement du laser est décalée de 160 MHz par un modulateur acousto-optique (AOM 1). Afin de maximiser la fluorescence, le faisceau est ensuite grossi et envoyé vers la cellule de spectroscopie où le faisceau est rétro-réfléchi. On

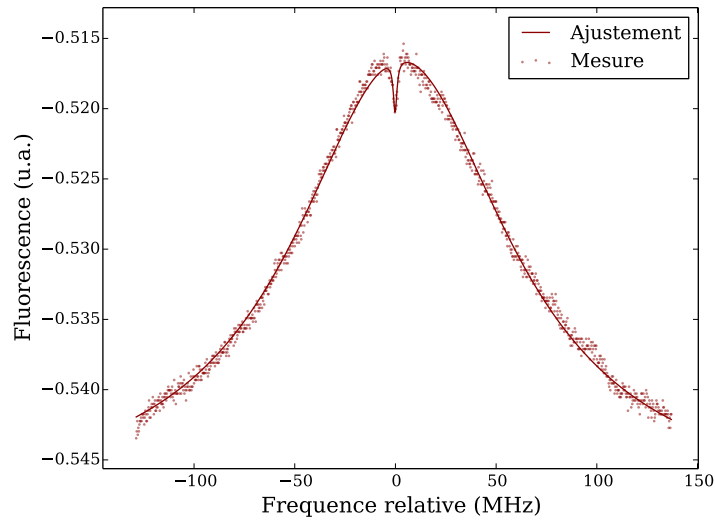


FIGURE 2.14 – Signal de fluorescence saturée de l'isotope 174. L'ajustement à deux lorentziennes donne une largeur à mi-hauteur de 2.2 MHz pour le pic de fluorescence saturée.

applique une modulation sur la fréquence de l'AOM de profondeur 5 MHz et de fréquence 20 kHz qui servira à générer le signal d'erreur. La fluorescence des atomes est collectée via une lentille sur une photodiode¹⁴ dans l'axe perpendiculaire au faisceau. Le signal de saturation sub-Doppler (figure 2.14) a une largeur d'approximativement 2 MHz à cause de l'élargissement par saturation. Le signal de la photodiode est ensuite amplifié et envoyé vers un module de Lock-in¹⁵. La rétro-action générée par le module est envoyée sur le courant de la diode laser. On estime que les dérives à long terme sont très inférieures au MHz.

La partie du laser dédiée aux pièges magnéto-optiques est ramenée proche de résonance grâce à un double passage dans un deuxième modulateur acousto-optique (AOM 2). Ce faisceau peut ainsi être réglé à un désaccord de quelques MHz par rapport à la résonance, que l'on notera Δ_{MOT} par la suite. En sortie de fibre, le faisceau est grossi à un diamètre de 2.2 cm puis séparé en 8 faisceaux, deux par axe du MOT 3D et un par axe du MOT 2D (en configuration rétro-réfléchié). L'intensité des faisceaux de MOT 2D est d'environ 6 mW/cm² ($I_{2D} \approx 40 I_S$) tandis qu'elle est d'environ 3 mW/cm² pour les faisceaux de MOT 3D ($I_{3D} \approx 20 I_S$).

Le gradient de champ magnétique du MOT-3D est assuré par un couple de bobines carrées en configuration anti-Helmoltz. Chaque bobine est constituée de 64 tours de fil de cuivre, dans lequel on peut faire passer jusqu'à 10 A de courant. À cause de la taille importante de l'enceinte, les bobines sont particulièrement loin des atomes (≈ 20 cm), ce qui limite le gradient à 2 Gauss / cm dans l'axe fort des bobines (Oy). Cela étant, le MOT sur raie fine requiert un champ plus faible puisque le gradient nécessaire est typiquement proportionnel à la racine carrée de la largeur du niveau $b \propto \sqrt{\Gamma}$ [35]. Pour une phase de chargement du MOT, le gradient typiquement utilisé est autour de 1 à 2 Gauss/cm [35, 41, 64] et il est donc accessible avec notre système.

14. Thorlabs PDA-36A

15. Toptica Digilock

Résultats : caractérisation élémentaire

Dans la mesure où notre vide est particulièrement mauvais (2×10^{-8} mbar), nous n'avons pas pu optimiser les paramètres du piège magnéto-optique dans de bonnes conditions durant cette thèse. En effet, à cette pression, les pertes dues aux collisions avec les particules résiduelles sont telles que les atomes ont une durée de vie moyenne inférieure à la seconde dans le piège. Dans ces conditions, la densité dans le MOT est très limitée par le vide.

Tout d'abord, précisons que le MOT-2D fonctionne pour l'instant en tant que méléasse (le champ magnétique n'est pas activé) et produit donc simplement un effet de collimation du jet. Le rapport de puissance entre les lasers de MOT-2D et MOT-3D a été réglé en optimisant la fluorescence du MOT-3D. L'optimum est trouvé pour $I_{2D}/I_{3D} \approx 2$ ce qui met en évidence le fait que le MOT 2D améliore considérablement le nombre d'atomes piégés puisque l'on trouve une fluorescence plus grande avec une intensité I_{3D} relativement faible. Dans ces conditions, on trouve que la présence de la méléasse 2D augmente le nombre d'atomes piégés d'un facteur 2.

Pour l'optimisation de la fréquence du laser de MOT, nous nous sommes mis dans les conditions de puissance laser et de gradient de champ magnétique précédemment mentionnées. Le courant aux bornes du dispenser est réglé de manière à avoir $\approx 2.5\%$ d'absorption au niveau des hublots de la première croix 6 axes. Sur la figure 2.16, j'ai rapporté la fluorescence issue du piège magnéto-optique en régime stationnaire en fonction de la fréquence du désaccord laser. On remarque qu'avec le laser simple (sans bandes latérales), on obtient un désaccord optimal autour de $\delta_{MOT} \approx -2\pi \times 1.2$ MHz. Notons

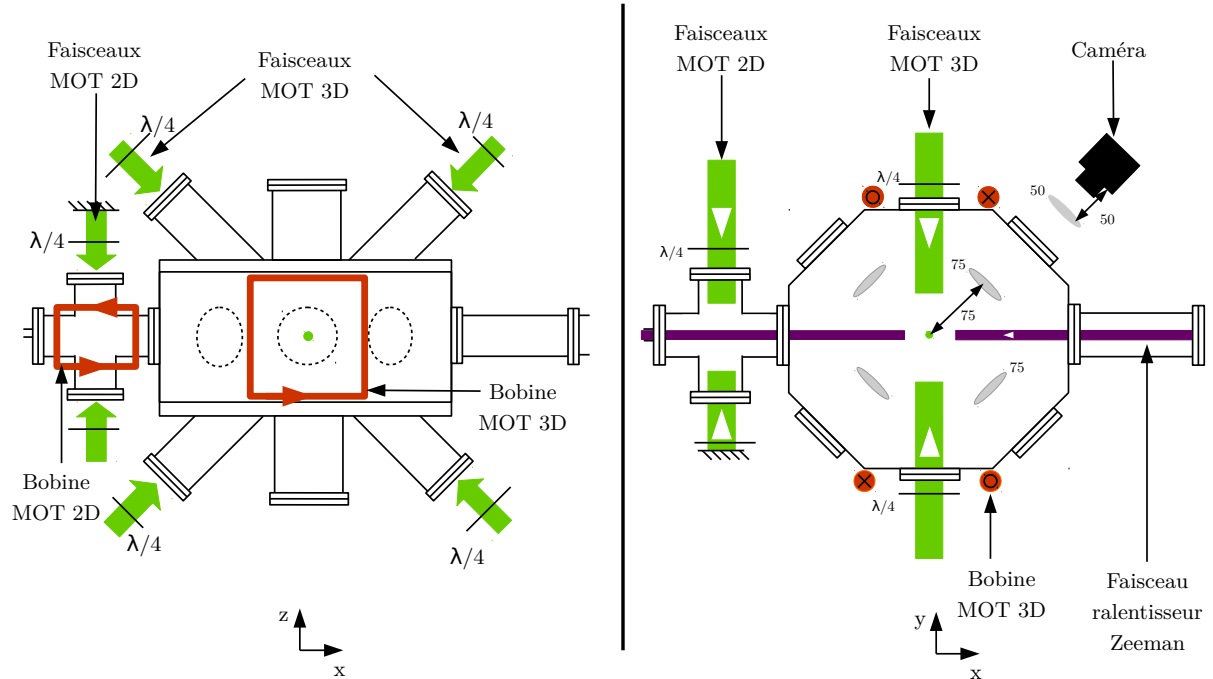


FIGURE 2.15 – Schéma de la configuration des faisceaux pour les MOT 2D et 3D. les distances et les focales des lentilles sont exprimées en mm.

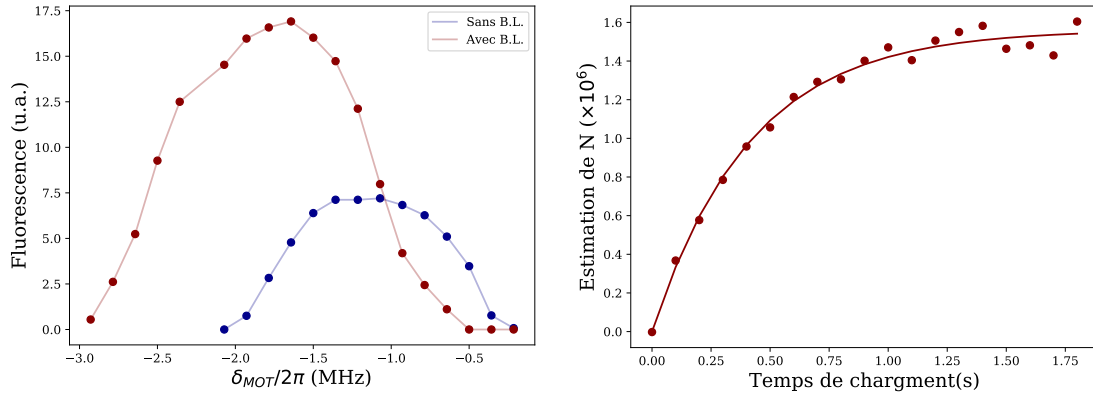


FIGURE 2.16 – À GAUCHE : Fluorescence du piège magnéto optique en fonction du désaccord du laser de MOT. À DROITE : Chargement du MOT à l’optimum ($\delta \approx 2\pi \times 1.75$ MHz), la ligne continu est un ajustement avec la loi (2.15). On trouve un taux de chargement de $\approx 3.5 \times 10^6$ atomes/s

que ce désaccord optimise la fluorescence du MOT mais pas nécessairement le nombre d’atomes (cela devrait néanmoins être très proche).

Pour augmenter la vitesse de capture du piège magnéto-optique et donc le nombre d’atomes capturés, on peut ajouter des bandes latérales au laser du piège magnéto-optique. Cette technique permet en effet d’élargir artificiellement la transition et donc d’être plus efficace sur la capture des atomes. Pour ce faire, on applique une modulation de phase sur la fréquence RF de l’AOM 2 (voir figure 2.13). Nous avons choisi une profondeur de 1 MHz et une fréquence de modulation de 500 kHz si bien que le spectre final du laser du MOT est composé de trois raies espacées de 1 MHz et d’intensité équivalente. On remarque, sur la figure 2.16, que la présence des bandes latérales fait gagner environ un facteur 2 sur la fluorescence. Pour estimer le gain réel en terme de nombre d’atomes, il faut prendre en compte le fait que la modulation de fréquence répartit la puissance sur trois bandes de fréquence qui ont chacune un désaccord différent par rapport à la résonance. En faisant ainsi, on trouve que le nombre d’atomes est effectivement multiplié par deux grâce à la présence des bandes latérales, ce qui est gain considérable.

Pour estimer le nombre total d’atomes piégés en régime stationnaire, nous avons mesuré la fluorescence à l’aide d’une photodiode dont la réponse (courant/puissance optique) est bien caractérisée. Sachant que le taux de diffusion de photons par atome s’écrit :

$$\Gamma_{Diff} = \frac{\Gamma}{2} \times \frac{s}{1 + s + 4(\delta_{MOT}/\Gamma)^2} \quad (2.13)$$

avec $s \approx 6I_{3D}/I_S$ le paramètre de saturation laser (lorsque le laser comporte plusieurs bandes il faut bien évidemment évaluer les contributions de chaque bande au taux de diffusion), on peut remonter au nombre d’atomes dans le piège en utilisant le fait que la puissance optique totale collectée par la photo-diode est donnée par :

$$P = h\nu \times \frac{\Omega}{4\pi} \times N_{atomes} \times \Gamma_{Diff} \quad (2.14)$$

où Ω est l’angle solide de collection de la fluorescence. L’estimation du nombre d’atomes à l’optimum et en présence de bandes latérales donne environ 1.5×10^6 . Ce nombre n’est

qu'une estimation puisque plusieurs paramètres – notamment l'intensité laser ou encore le facteur angulaire d'émission spontanée des atomes – sont assez mal connus. Cela étant, cela devrait donner un bon ordre de grandeur. On peut caractériser le chargement du MOT avec un modèle simple prenant en compte le taux de chargement R et le temps de vie moyen des atomes τ (limité par la pression). Ceci nous donne une équation pour le nombre d'atomes piégés en fonction du temps :

$$N(t) = N_f(1 - e^{-t/\tau}) \quad (2.15)$$

où $N_f = R\tau$ est le nombre d'atomes à l'état stationnaire. En ajustant le chargement du piège en fonction du temps, on obtient un taux de chargement de 3.5×10^6 atomes/s et un temps de vie $\tau = 0.41$ s compatible avec la pression résiduelle dans l'enceinte. Le taux de chargement est significativement inférieur à celui obtenu par d'autres équipes [35, 64] mais dans la mesure où le dispenser est en sous-régime et que des paramètres restent encore à optimiser, le résultat est satisfaisant et montre que notre système fonctionne assez bien. Sachant que la taille du nuage est d'environ 1 mm, la densité moyenne dans le nuage est estimée à 2×10^9 atomes/cm³. Celle-ci est amplement suffisante pour réaliser des expériences de spectroscopie Rydberg.

2.2 Excitation vers des états de Rydberg et détection

Une fois le nuage atomique obtenu, on dispose d'un ensemble d'atomes gelé : pour les temps caractéristiques d'interaction entre les atomes, leur déplacement est largement négligeable. En effet, pour une température de 100 μ K et un temps d'interaction de 0.1-3 μ s, le déplacement est de 10-300 nm, ce qui est très faible par rapport à la distance interatomique typique 5-20 μ m pour des densités de Rydberg de 10^8 - 10^{10} [14]. Dans cette section, on se concentrera sur le dispositif mis en place pendant cette thèse pour les expériences d'atomes de Rydberg.

2.2.1 Excitation Rydberg

Les longueurs d'onde pour effectuer l'excitation Rydberg à un photon étant extrêmement difficiles à obtenir avec une puissance acceptable, on décide usuellement de passer par des niveaux intermédiaires. L'excitation se fera donc à plusieurs photons. Pour pouvoir atteindre une grande gamme d'états, le dernier laser doit être accordable, fin spectralement et assez puissant pour compenser la faiblesse de l'élément de matrice couplant l'état de cœur à l'état de Rydberg. Dans la sous-section suivante, on présentera les deux principaux schémas d'excitation et les états correspondants.

Schémas d'excitation Rydberg

La plupart des phénomènes que nous voulons étudier requièrent une connaissance approfondie de la spectroscopie des états de Rydberg. Il est donc primordial d'avoir la possibilité d'exciter le maximum de séries possibles.

À partir de l'état fondamental $6s^2$ et en considérant les règles de sélection $\Delta L = \pm 1$ pour chaque photon, une voie d'excitation à deux photons nous donnerait accès aux séries

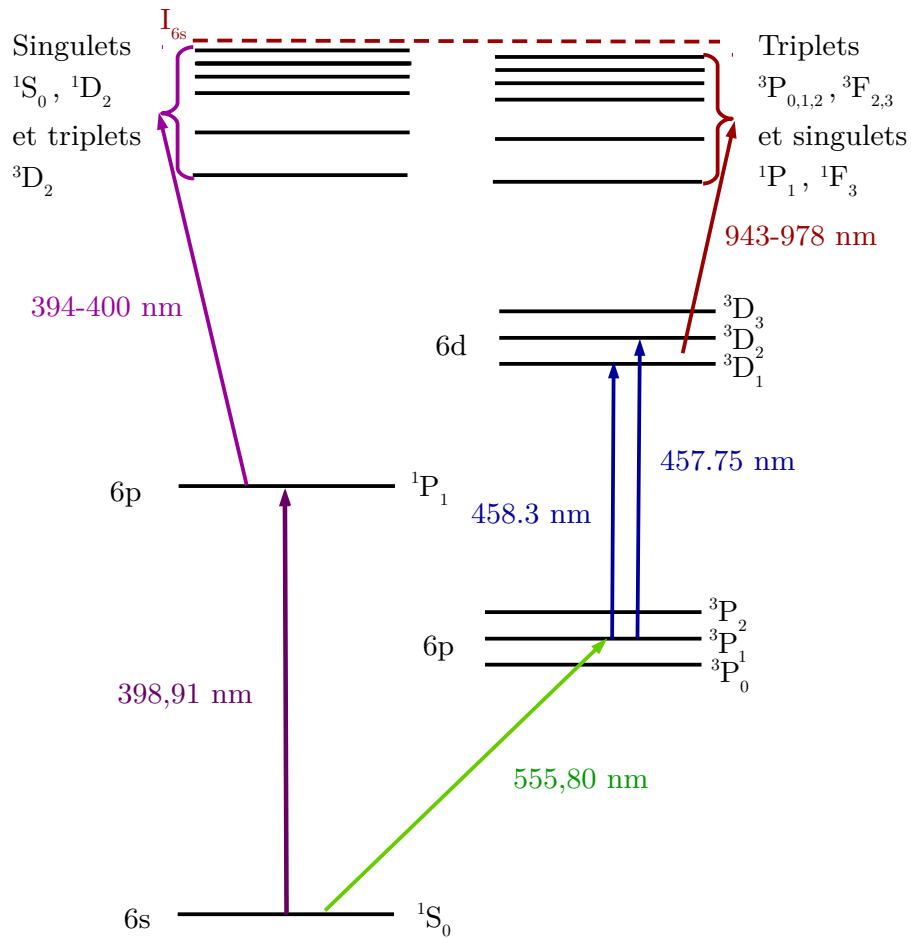


FIGURE 2.17 – Schéma des voies d'excitation Rydberg.

$6sns$ et $6snd$. Une première voie apparaît naturellement :

$$6s^2 - ^1S_0 \rightarrow 6s6p - ^1P_1 \rightarrow \begin{cases} 6sns - ^1S_0 \\ 6snd - ^1D_2 \\ 6snd - ^3D_2 \end{cases} \quad (2.16)$$

Cette voie présente l'avantage que l'on possède déjà le laser pour le premier photon. À partir du niveau intermédiaire $6s6p - ^1P_1$ et pour viser les états $n > 25$, la longueur d'onde du deuxième photon doit être située entre 394 nm et 400 nm. Ces longueurs d'ondes ne sont pas accessibles à haute puissance avec un système laser simple, elles le sont par contre avec un système laser accordable autour de 788nm - 800 nm et doublé en fréquence. Nous avons donc choisi d'acheter un laser Titane-Saphire TiSa doublé commercial (description dans la sous-partie suivante). Cette voie est celle que nous avons exclusivement utilisée pour l'instant.

Pour pouvoir accéder aux séries $6snp$ et $6snf$, il faut nécessairement une voie d'exci-

tation à trois photons. La voie que nous avons retenue est la suivante :

$$6s^2 - ^1S_0 \rightarrow 6s6p - ^3P_1 \rightarrow \begin{cases} 6s6d - ^3D_1 \\ 6s6d - ^3D_2 \end{cases} \rightarrow \begin{cases} 6snp - ^3P_0 \\ 6snp - ^3P_1 \\ 6snp - ^3P_2 \\ 6snf - ^3F_2 \\ 6snf - ^3F_3 \\ 6snp - ^1P_1 \\ 6snf - ^1F_3 \end{cases} \quad (2.17)$$

Cette voie présente l'intérêt que le dernier état intermédiaire $6s6d - ^3D_2$ est intercombiné à hauteur de 14% [65] avec son état singulet $6s6d - ^1D_2$, nous permettant ainsi de viser à la fois les états triplets et les états singulets des séries $6snp$ et $6snf$. Pour atteindre le premier état intermédiaire $6s6p - ^3P_1$, nous avons déjà le laser (laser du MOT). À partir de cet état, pour atteindre le second état intermédiaire, la longueur d'onde est de 458.3 nm pour l'état $6s6d - ^3D_1$ et 457.7 nm pour l'état $6s6d - ^3D_2$, ce qui est accessible avec un simple système de type diode laser à cavité étendue. Pour finir, le dernier photon pourra être produit par notre laser TiSa (avant doublage).

Avec ces deux voies d'excitation, on accède à une grande partie des niveaux de L faible ($L < 4$). À partir de ces niveaux, on pourra compléter par excitation micro-onde. Il sera alors possible d'atteindre les séries triplet $6sns - ^3S_1$, $6snd - ^3D_1$ et $6snd - ^3D_3$ à partir des états $6snp$ excités optiquement. Pour finir, la série $6snf - ^3F_4$ pourra être atteinte par excitation micro-onde à deux photons à partir de la série $6snp - ^3P_2$. Dans la mesure où nous ne possédons pas encore le laser à 457-458 nm et pour prendre de l'avance, nous avons fait la spectroscopie micro-onde de certaines des séries $6snp$ et $6snf$ à partir des séries excitées par la voie (2.16).

Système laser pour l'excitation

Durant cette thèse, la voie d'excitation Rydberg utilisée est uniquement la voie à deux photons passant par l'état intermédiaire $6s6p - ^1P_1$ (équation (2.16)). Nous possédons déjà le laser à 398.9 nm pour le premier photon. Le montage laser est représenté sur la figure 2.8 : une partie du faisceau du laser maître est prélevée puis envoyée vers un AOM en configuration double passage. Celui-ci a pour but de ramener le laser à résonance avec la transition et de permettre l'allumage et l'extinction rapide du faisceau. La configuration en double passage avec oeil de chat permet, qui plus est, de pouvoir changer rapidement la fréquence du laser d'excitation de quelques dizaines de MHz sans avoir à réaligner en aval. Après l'AOM, on injecte le faisceau dans une fibre de manière à l'amener vers l'enceinte. En sortie de fibre, le faisceau est collimaté à un waist de 0.9 mm, l'intensité est alors d'environ $30 \text{ mW/cm}^2 \approx I_s/2$, ce qui est suffisant pour exciter efficacement les atomes vers le niveau $6s6p - ^1P_1$.

Dans la mesure où les forces des transitions reliant états de coeur et états de Rydberg sont faibles, l'excitation de ces derniers nécessite un laser puissant. La deuxième caractéristique requise et une bonne accordabilité en fréquence pour viser les différents niveaux Rydberg. Le choix s'est donc porté sur un système comportant un laser Titane-Saphire puis un doublage en fréquence¹⁶. L'accordabilité du laser, limitée par la cavité de doublage, est d'environ 10 nm autour de 395 nm. La puissance disponible est d'environ 1.5W

16. Solstis-ECD de marque Msquared

après cavité de doublage. Le faisceau passe ensuite dans un AOM qui permet l'allumage et l'extinction rapide de l'excitation, puis envoyé en "espace libre" vers l'enceinte.

2.2.2 Détection des atomes de Rydberg : ionisation en champ

La méthode usuelle pour détecter des atomes de Rydberg consiste à appliquer un champ électrique pour séparer électron de Rydberg et cœur ionique. Le cœur ionique est ensuite détecté à l'aide d'un détecteur de particules chargées. Dans cette section, on détaillera les spécificités de notre dispositif de détection en champ.

Le système d'électrodes

La sensibilité au champ électrique des atomes de Rydberg est utilisée, d'une part pour accorder les propriétés d'interactions inter-atomiques et d'autres part pour la détection par ionisation. Notre système d'électrodes (figure 2.18) a été conçu pour pouvoir remplir ces deux fonctions. Les détails sur la conception des électrodes sont disponibles dans la thèse d'Alexandre Zuliani, nous rappellerons ici uniquement les fonctions des différents éléments.

Pour les besoins de l'expérience, il est essentiel de garantir une bonne homogénéité des lignes de champ dans le volume d'excitation Rydberg, tout en laissant un accès optique suffisant pour tous les faisceaux lasers utilisés dans l'expérience. Pour concevoir ce système d'électrodes, l'équipe s'est inspirée de celui de l'équipe du Professeur Matthias Weidemüller de l'université d'Heidelberg. Il est basé sur un ensemble d'électrodes circulaires, que l'on peut diviser en deux parties parfaitement symétriques par rapport à la zone d'excitation Rydberg (figure 2.18). Un cylindre et un anneau assurent la partie ionisation, ils sont destinés à être utilisés à la même tension pour garantir l'homogénéité du champ. Avec 10 kV appliqués, le champ au niveau des atomes atteint 1466 V/cm, nous permettant de ioniser jusqu'à $n^* = 26$. Une fois les atomes ionisés, les ions sont dirigés dans l'axe normal au plan de l'anneau vers le détecteur MCP (galette de micro-canaux, abrégé MCP pour Micro-Channel Plate). Un deuxième cylindre forme avec le premier une lentille électro-statique, la tension appliquée sur ce deuxième cylindre permettra de régler le facteur de grossissement de l'imagerie des Rydberg. Jusqu'ici, nous avons utilisé le système de manière asymétrique, le cylindre et l'anneau du bas servant alternativement à compenser les champs de biais selon l'axe Oz et à l'ionisation tandis que ceux du haut sont utilisés pour appliquer un champ Stark (pour la technique de branchement Stark par exemple). Pour finir, quatre électrodes sont utilisées pour compenser les biais de champ dans les deux axes Ox et Oy qui sont dus notamment à l'accumulation de charges sur les parois de l'enceinte.

Ionisation sélective en champ électrique

L'état de Rydberg étant peu lié au cœur ionique, il est très facile d'ioniser les atomes de Rydberg en appliquant un simple champ électrique. La loi d'échelle du champ d'ionisation avec le nombre quantique principal effectif n^* est :

$$F_i = \frac{1}{16n^{*4}} \quad (2.18)$$

où l'on voit bien évidemment que plus le nombre quantique n augmente, plus le champ requis pour l'ioniser est faible. Si l'on applique une rampe de champ, les états de n plus

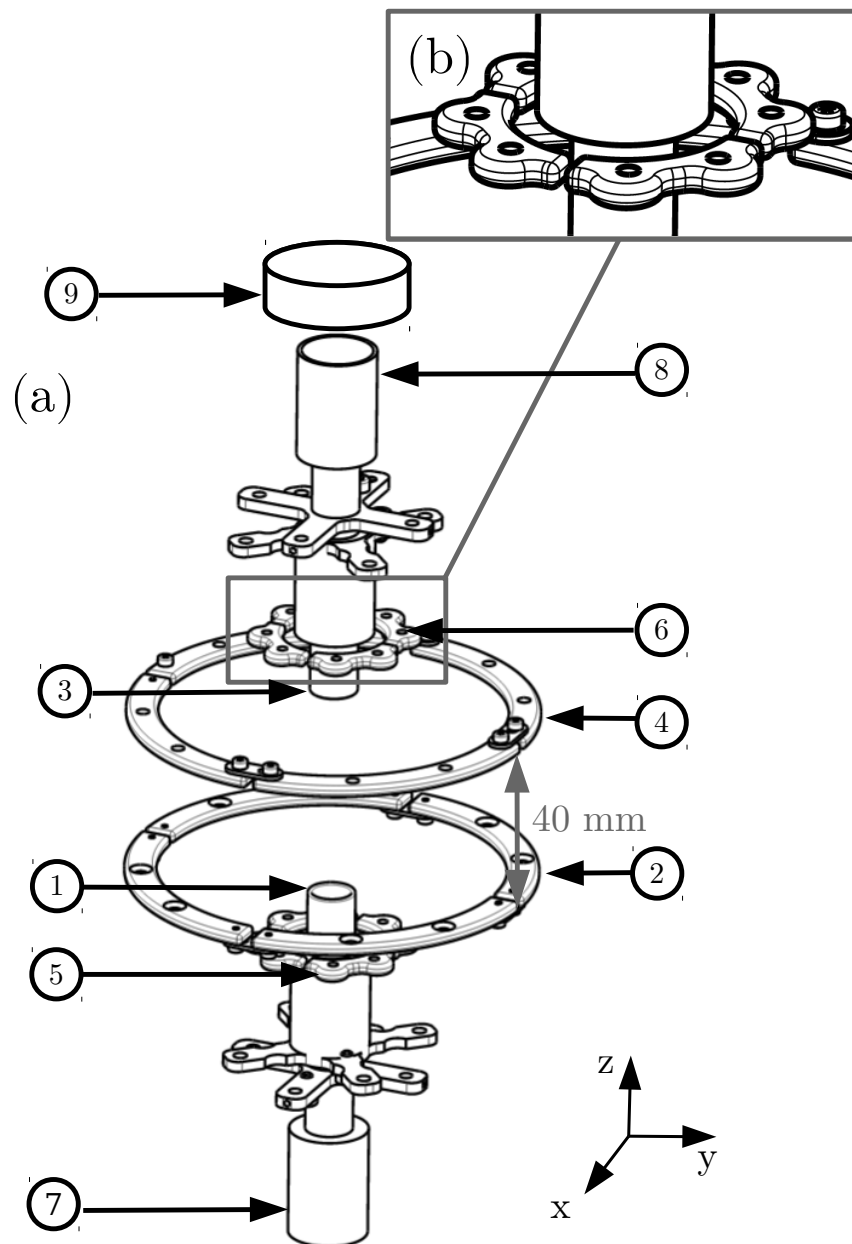


FIGURE 2.18 – (a) : Schéma des électrodes dans l'enceinte expérimentale. Les électrodes ① et ② sont branchées à la même tension et sont utilisées pour le champ d'ionisation. ③ et ④ sont aussi à la même tension et sont utilisées pour le champ de compensation dans l'axe z . Les quadruplets d'électrodes ⑤ et ⑥ sont utilisés pour les compensations dans les axes x et y . ⑦ et ⑧ n'ont pas été utilisées mais sont destinées à la lentille électrostatique. L'élément ⑨ est le détecteur (MCP + écran phosphore). (b) : Zoom sur les électrodes de compensation pour les axes x et y .

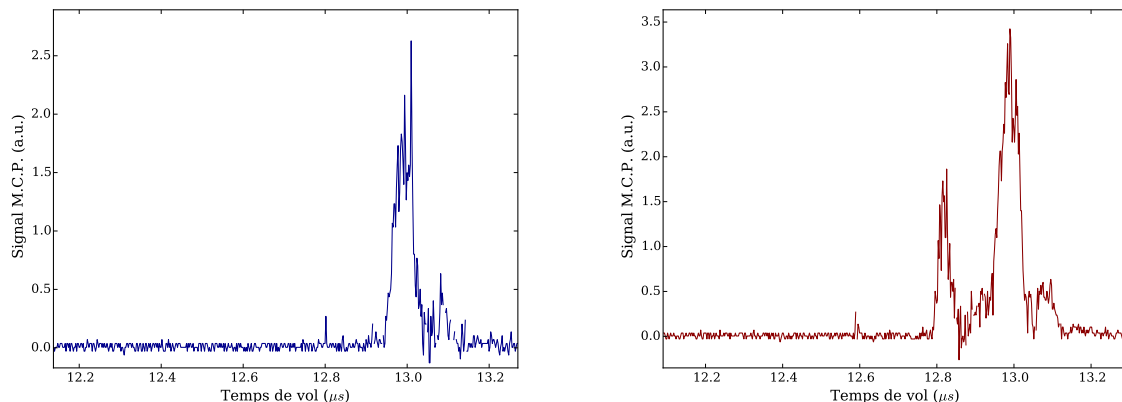


FIGURE 2.19 – Signal de temps de vol des atomes de Rydberg ionisés en champ électrique. A GAUCHE : signal obtenu par ionisation de l'état $6s53s - ^1S_0$. A DROITE : signal obtenu en présence des états $6s53s - ^1S_0$ et $6s54p - ^1P_1$ (excitation micro-onde). Le signal correspondant à l'état de plus grande énergie $6s54p - ^1P_1$ ($\approx 12.8\mu s$) arrive avant celui de plus basse énergie $6s53s - ^1S_0$ ($\approx 13.0\mu s$)

grand vont ioniser avant les états de n faible. Après ionisation, les ions sont guidés par ce même champ vers le détecteur MCP et après un temps de vol, on obtient un signal (figure 2.19). Dans la mesure où ils ont été ionisés avant, les états de grand n sont détectés avant les autres. Cette technique permet donc de distinguer plusieurs états de Rydberg différents, elle est cruciale pour étudier les transferts résonants de Förster.

Dans notre expérience, la haute tension est fournie par une alimentation réglable entre 0 et 10 kV. Cette tension est appliquée sur l'entrée d'un switch haute tension¹⁷ qui permet l'allumage et l'extinction suivant un signal TTL. À la sortie du switch, un filtre RC nous permet de modéliser la rampe désirée. La constante de temps de montée du champ typiquement utilisée est de $2 \mu s$. Lorsque le champ augmente, l'atome effectue des transferts vers divers états, qui ionisent eux-même à des champs sensiblement différents [66] et ceci élargit chaque signal de temps de vol (figure 2.19). Or si l'on veut résoudre deux états proches en énergie, leur signal doit être bien séparé temporellement. Ces transferts sont donc notre limite ultime de résolution. Dans notre cas, nous pouvons distinguer des états proches de 40 GHz (voir chapitre 3).

Détection des atomes de Rydberg ionisés

Après ionisation, les atomes sont dirigés par le champ d'ionisation vers le MCP, le temps de vol des atomes est typiquement d'une dizaine de μs .

Les détecteurs MCP sont couramment utilisés pour la détection de particules chargées. Ils sont composés de deux ou trois galettes de céramique comportant un réseau de micro canaux. Lorsqu'une particule chargée entre en contact avec un micro-canal de la galette, une gerbe d'électrons est libérée et dirigée dans le canal. À chaque contact avec la paroi du canal, le nombre d'électrons va être multiplié, si bien qu'en sortie du canal, le nombre d'électrons devient macroscopique et le signal qui en résulte est détectable électriquement.

17. Belkhe GHTS 100

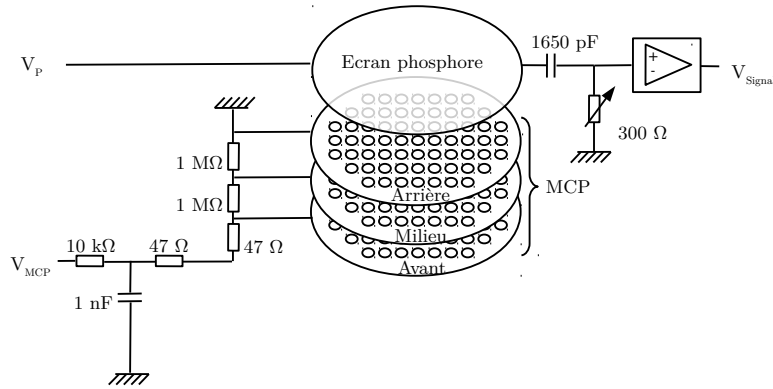


FIGURE 2.20 – Schéma du montage pour l'alimentation du MCP et la récupération du signal

En l'alimentant de manière optimale, un MCP peut détecter un ion unique avec une efficacité quantique pouvant aller jusqu'à 80 %. Notre MCP est composé de deux galettes successives, aux extrémités desquelles sont situés 3 électrodes et un écran phosphore (figure 2.20). Les tensions sont réparties par un circuit à partir d'une tension unique V_{MCP} de manière à ce que l'on ait une différence de tension de $V_{MCP}/2$ appliquée entre chaque électrode. L'écran phosphore est lui alimenté par une alimentation indépendante réglée à 3 kV. Le courant électrique arrivant sur l'écran phosphore, proportionnel au nombre d'ions détectés (et donc au nombre de Rydberg), est amplifié et envoyé sur l'oscilloscope (voir figure 2.19). La différence de tension entre les galettes du MCP définit son gain : à basse tension ($V_{MCP} \approx 1350$ V) la détectivité est réduite tandis qu'à plus haute tension ($V_{MCP} \approx 1600$ V) on détecte un ion unique.

Avec notre système, il est aussi possible d'imager la distribution spatiale des atomes de Rydberg. Le MCP a en effet l'avantage de conserver la distribution spatiale du signal d'ion (avec la résolution correspondant à la taille d'un micro-canal), il nous suffit simplement d'installer une caméra pour imager l'écran phosphore. Il faut souligner que cette méthode d'imagerie est limitée en résolution spatiale par les interactions coulombiennes lors du temps de vol qui vont entraîner une explosion du signal. Pour imager les atomes de Rydberg, une méthode *in-situ* s'impose, et c'est tout l'objet de cette expérience (voir chapitre 4).

2.2.3 Automatisation de l'expérience

Séquence temporelle de l'expérience

L'échelle de temps caractéristique des expériences d'atomes de Rydberg est la micro-seconde. En effet, les forces d'interaction inter-atomiques sont telles que les effets (par exemple les transferts de population) peuvent apparaître dans cette gamme de temps. C'est la raison pour laquelle cette expérience requiert une très bonne résolution temporelle.

Le séquenceur de l'expérience est un générateur de délais¹⁸ à 8 voies qui permet de contrôler l'allumage des champs (via des switches Belkhe) et des lasers (via AOM) avec

18. Berkley Nucleonics Model 575

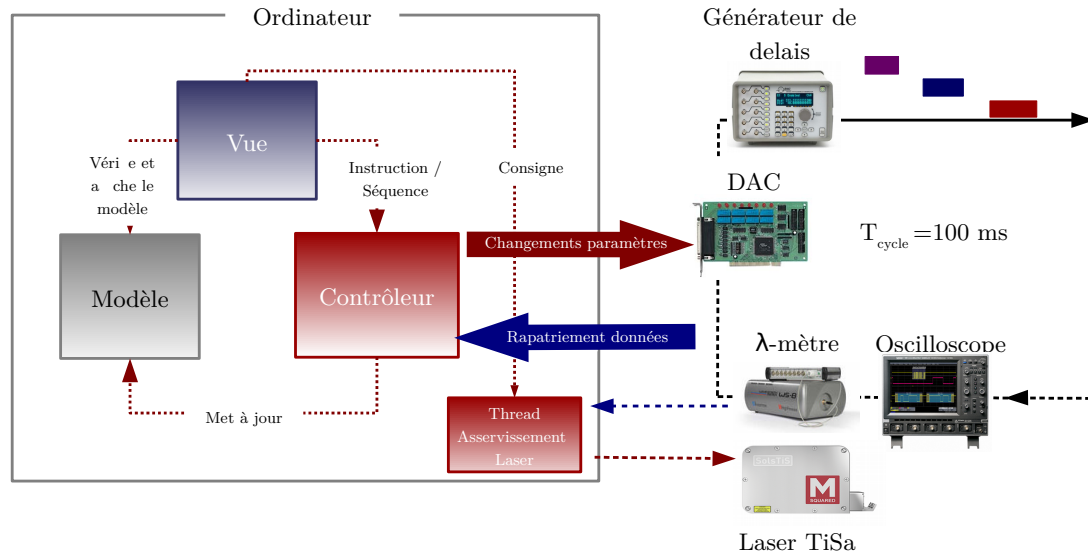


FIGURE 2.21 – Schéma de dispositif d'automatisation de l'expérience.

une résolution de 1 ns¹⁹ Les expériences que nous avons menées durant cette thèse ont toutes été faites à partir d'un nuage d'atomes froids à l'état stationnaire : nous n'éteignons pas le MOT 3D durant la séquence Rydberg. Cette méthode présente l'intérêt que nous pouvons considérablement augmenter la fréquence d'acquisition des données, dans la mesure où le MOT n'a pas à être rechargé à chaque cycle expérimental (le temps de chargement du MOT est typiquement de quelques secondes). Ce générateur fonctionne en cycle dont la durée est réglable : nous avons utilisé des temps de cycle typiquement de 100 ms. Notons qu'une expérience dure beaucoup moins de temps (typiquement 10 μ s), le temps supplémentaire est dédié au rapatriement des données et au changement automatisé des paramètres. Les durées et délais entre chaque élément de la séquence sont programmables par ordinateur.

Contrôle informatique

En dehors de la séquence temporelle, contrôlée par le générateur de délais, toutes les alimentations et instruments de mesure sont en communication avec un seul ordinateur. Le programme a été conçu et codé par nos soins en langage Python pour les expériences d'atomes de Rydberg du laboratoire.

L'architecture du programme d'automatisation est un MVC (pour Modèle, Vue, Contrôle), architecture qui a l'intérêt d'être facile pour l'utilisateur, tout en étant robuste à l'utilisation. De l'interface graphique ("Vue"), on peut accéder à toutes les fonctionnalités de chaque instrument. Lorsqu'une action est commandée, celle-ci est exécutée par le contrôleur ("Contrôle"), qui a accès aux bibliothèques de chaque instrument, et inscrite dans le modèle ("Modèle"). Le modèle contient tous les informations sur les paramètres expéri-

19. Résolution du générateur, les temps de montée des champs ou d'allumage des AOM sont de l'ordre de 100 ns.

mentaux en cours ainsi que les dernières données rapatriées. L'interface graphique vérifie les paramètres en cours et les affiche. Cette structure en boucle assure une sécurité sur l'enregistrement des paramètres par rapport aux paramètres réels sur l'expérience. En mode séquence, on peut faire varier un ou plusieurs paramètres sur une certaine plage et à chaque déclenchement de l'oscilloscope, le contrôleur rapatrie les données de chaque instrument et les stocke dans la mémoire de l'ordinateur.

Un des nombreux intérêts du langage python est qu'il est beaucoup utilisé en science et donc de nombreuses bibliothèques scientifiques, très inspirées de Matlab sont disponibles en open-source. La majorité des données expérimentales de cette thèse ont été analysées avec la bibliothèque Numpy [67] et tracées avec la bibliothèque Matplotlib [68].

Conclusion et perspectives

Dans ce chapitre, j'ai présenté les techniques expérimentales que nous avons mises en œuvre pour produire un gaz d'atomes d'ytterbium froids, réaliser l'excitation Rydberg des atomes et les détecter. Les résultats obtenus sont satisfaisants : on obtient un nuage froid avec une densité de l'ordre de $n \approx 10^9/\text{cm}^3$. Après excitation, le nombre d'atomes de Rydberg obtenu est largement suffisant pour effectuer diverses mesures et ainsi avancer sur la compréhension de la spectroscopie de l'ytterbium : ceci est l'objet des chapitres suivants.

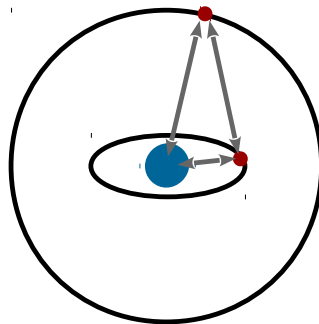
Cela étant, quelques améliorations sont à prévoir pour parfaire le dispositif et spécialement sur la phase de refroidissement et de piégeage, et nous allons en donner une courte liste :

- Amélioration du vide pour atteindre $\leq 10^{-9}$ mbar
- Mise en fonctionnement du gradient de champ du MOT-2D (fonctionne actuellement en mélasse)
- Ajout d'une mélasse bleue en sortie du dispenser pour collimater le jet avant le ralentisseur
- Mise en place d'un refroidissement en deux séquences :
 - Chargement des atomes dans le piège (allumage faisceau ralentisseur et intensité maximale des faisceaux du MOT 3D)
 - Refroidissement et compression du piège (extinction du faisceau ralentisseur, baisse de puissance des faisceaux du MOT 3D et augmentation du gradient de champ)

Ces améliorations seront cruciales pour des expériences de piégeage d'atomes de Rydberg, où les conditions en densité et en température doivent être optimales.

Chapitre 3

Spectroscopie des états de Rydberg de l'ytterbium



Sommaire

3.1	La théorie du défaut quantique à plusieurs voies	78
3.1.1	Le modèle théorique MQDT	78
3.1.2	Formulations de la MQDT	81
3.1.3	Représentation de Lu-Fano des états liés	82
3.1.4	Le programme d'analyse numérique MQDT	83
3.2	Spectroscopie optique des séries $6sns$ et $6snd$	86
3.2.1	Dispositif expérimental pour les mesures spectroscopiques . . .	87
3.2.2	Mesure et analyse des spectres	89
3.2.3	Évaluation de l'incertitude de mesure	91
3.2.4	Résultats et analyses MQDT	95
3.3	Spectroscopie micro-onde des séries $6snp$ et $6snf$	102
3.3.1	Dispositif expérimental micro-onde	102
3.3.2	Analyse du signal et des spectres	103
3.3.3	Identification des états par mesure du facteur de Landé	106
3.3.4	Résultats et analyses MQDT	108
	Conclusion et perspectives	115

Dans le premier chapitre, j'ai présenté les propriétés de polarisabilité et d'interaction des atomes de Rydberg. Celles-ci peuvent être calculées précisément à partir des fonctions d'ondes atomiques de chaque état. C'est la raison pour laquelle la connaissance de la spectroscopie des états de Rydberg est primordiale. Pour les atomes à un électron actif, toute l'information sur une série Rydberg est contenue dans le défaut quantique δ associé à celle-ci. Sa donnée permet en effet de connaître les énergies de tous les états de la série et d'en calculer les fonctions d'onde. En revanche, pour les atomes à plusieurs électrons de valence, les perturbations dues aux corrélations électroniques vont ponctuellement modifier le défaut quantique dans la série. En conséquence, la théorie du défaut quantique simple ne suffit plus. Nous aurons donc recours à une théorie adaptée aux atomes poly-électroniques : *la théorie du défaut quantique à plusieurs voies* (MQDT). Celle-ci prend en compte les couplages entre configurations du cœur ionique. La *voie* (\approx série) Rydberg que l'on cherche à étudier correspond en général à une série de configuration du cœur ionique fondamentale ($6snl$ pour l'ytterbium) et celle-ci peut se coupler à d'autres voies (correspondant à des états excités du cœur ionique) : les voies de perturbation. En introduisant les énergies mesurées expérimentalement de quelques niveaux et à l'aide d'un programme d'ajustement spécialement codé pour, on peut trouver les paramètres caractérisant la série Rydberg d'intérêt (*i.e.* les couplages entre voies, limites d'ionisation...). Le développement du programme MQDT a été réalisé par le précédent doctorant Alexandre Zuliani et sa thèse servira donc de référence pour la suite de ce chapitre. Dans le cadre de ma thèse, j'ai principalement réalisé les mesures expérimentales optiques et micro-ondes des séries de Rydberg, l'accent sera donc mis sur celles-ci.

Dans une première section, je présenterai la théorie MQDT et le programme implémenté au LAC pour réaliser l'analyse des séries Rydberg. Dans la deuxième section, je présenterai les expériences de spectroscopie optique des séries $6sns - ^1S_0$, $6snd - ^1D_2$ et $6snd - ^3D_2$ ainsi que leurs analyses MQDT. Pour finir, je présenterai les mesures micro-ondes des séries, $6snp - ^1P_1$, $6snp - ^3P_1$, $6snp - ^3P_2$, $6snf - ^1F_3$ et $6snf - ^3F_3$ et leurs analyses MQDT.

3.1 La théorie du défaut quantique à plusieurs voies

3.1.1 Le modèle théorique MQDT

La notion de voie

Pour un atome A à deux électrons de valence, on définit une voie comme l'ensemble des états caractérisés par un même état du cœur ionique A^+ , un moment orbital de l'électron Rydberg l_2 , un moment cinétique total J (tel que $\vec{J} = \vec{j}_1 + \vec{j}_2$) et sa projection M . Les nombres quantiques J , M et la parité Π sont de bons nombres quantiques. Par conséquent, toutes les voies caractérisées par les mêmes valeurs de J , M et Π peuvent a priori se coupler. Dans l'analyse MQDT d'une série Rydberg, il faut considérer en plus de la voie Rydberg, toutes les voies qui ont le même moment cinétique total J et la même parité Π et les inclure dans l'analyse.

Comme dans le formalisme QDT, il convient de distinguer deux régions de l'espace :

- La région à proximité du cœur ionique ($r < r_0$ où r_0 est une distance arbitraire supérieure au rayon du cœur), où les effets du premier électron de valence et des électrons de cœur se font ressentir sur l'électron Rydberg

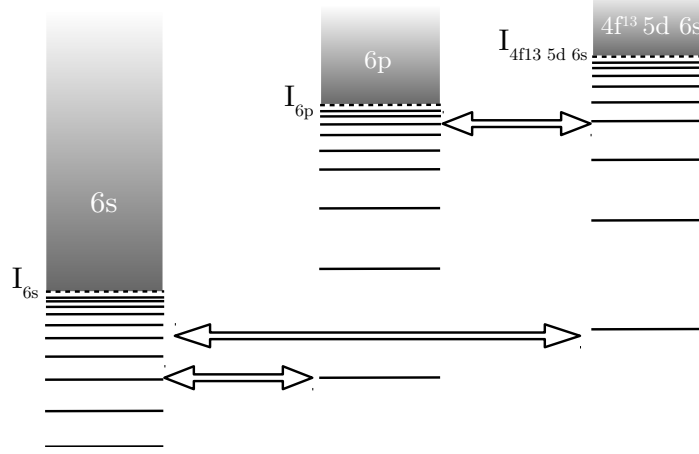


FIGURE 3.1 – Représentation schématique des couplages entre voies. La voie Rydberg que l'on cherche à étudier est en général la configuration fondamentale du cœur ionique (voie de gauche). Les voies perturbatrices correspondent à des configurations excitées du cœur ionique (voies du milieu et de droite). Les flèches représentent les couplages entre voies.

- La région au delà du cœur ionique ($r > r_0$) où le potentiel subi par l'électron de Rydberg est purement coulombien ($1/r_2$). Comme dans la théorie du défaut quantique simple (QDT), la MQDT décrit la fonction d'onde uniquement dans cette région de l'espace. Néanmoins on ne perdra pas d'informations à se limiter à cette région dans la mesure où c'est ici que les propriétés des Rydberg se jouent.

La fonction d'onde à longue distance

Pour un état caractérisé par une énergie totale donnée, la fonction d'onde propre de l'atome dans cette région éloignée est une superposition des fonctions d'onde des différentes voies considérées :

$$\Psi(E) = \sum_i^N A_i \phi_i \quad (3.1)$$

où ϕ_i est la fonction d'onde de la voie i , A_i étant le poids de chacune des voies dans la fonction d'onde totale. On rappelle que les fonctions d'onde ϕ_i sont données par la superposition linéaire des fonctions de Coulomb f et g pondérée par leur défaut quantique ν_i de la manière suivante [23] :

$$\phi_i = \frac{f(\epsilon_i, l_i, r) \cos(\pi\nu_i) + g(\epsilon_i, l_i, r) \sin(\pi\nu_i)}{r} \xi_i \quad (3.2)$$

où ϵ_i désigne l'énergie de l'électron Rydberg, ξ_i contient la partie angulaire de la fonction d'onde Rydberg ainsi que la fonction d'onde totale du cœur ionique. Notons que les fonctions d'onde ϕ_i sont définies habituellement en couplage jj . Pour un état lié (voie fermée), c'est à dire une voie pour laquelle $\epsilon_i < 0$, les conditions aux limites imposent une décroissance exponentielle de la fonction d'onde quand $r \rightarrow \infty$. Ceci implique que l'énergie de l'électron ϵ_i et le nombre quantique principal effectif¹ ν_i sont liés par $\epsilon_i = -1/\nu_i^2$.

1. On rappelle que le nombre quantique effectif est $\nu = n - \delta$ où δ est le défaut quantique.

L'énergie total E s'écrit donc :

$$E = I_i - \frac{\tilde{R}}{\nu_i^2} \quad (3.3)$$

où I_i est l'énergie du cœur ionique, c'est à dire l'énergie d'ionisation de la voie i et \tilde{R} est la constante de Rydberg corrigée en masse².

À proximité du cœur ionique

À grande distance du cœur, les fonctions d'onde ϕ_i des différentes voies de couplage sont des fonctions propres du problème coulombien à longue distance. Mais, par définition, elles ne forment pas une bonne base à proximité du cœur ionique. Dans cette région $r < r_0$, on définit alors une nouvelle base de N fonctions d'ondes ψ_α propres qui seront les modes normaux de diffusion du cœur. Notons qu'à proximité du cœur, le schéma de couplage LS est plus approprié, on choisit donc celui-ci. Les fonctions d'onde ψ_α sont définies par [23] :

$$\psi_\alpha = \frac{1}{r} \left[\sum_i^N U_{i\alpha} \xi_i f(\epsilon_i, l_i, r) \cos(\pi\mu_\alpha) - \sum_i^N U_{i\alpha} \xi_i g(\epsilon_i, l_i, r) \sin(\pi\mu_\alpha) \right] \quad (3.4)$$

où les termes $U_{i\alpha}$ sont les éléments de la matrice de transformation de la base $\{\phi_i\}$ à la base $\{\psi_\alpha\}$. Le terme μ_α est le défaut quantique propre. Sous cette forme, l'équation fait apparaître que $\pi\mu_\alpha$ est le déphasage acquis par la somme des fonctions d'ondes de Coulomb $\sum_i U_{i,\alpha} \xi_i f(\epsilon_i, l, r)$ lors du passage dans le cœur. Comme la base $\{\psi_\alpha\}$ forme à priori une base complète, on peut nécessairement écrire la fonction d'onde propre ainsi :

$$\psi(E) = \sum_\alpha^N B_\alpha \psi_\alpha \quad (3.5)$$

où B_α est le coefficient qui pondère la part de la fonction propre dans la fonction d'onde totale. Notons que cette fonction d'onde est une fonction propre pour $r < r_0$ mais n'est pas nécessairement une fonction propre au delà. Il faut maintenant assurer la condition de jonction des fonctions d'onde au point r_0 . En utilisant les équations (3.4) et (3.1) :

$$\sum_i^N A_i \phi_i = \sum_\alpha^N B_\alpha \psi_\alpha \quad (3.6)$$

Équation de la MQDT

A partir de cette condition de jonction des fonctions d'onde (équation (3.6)) et en utilisant les expressions de ϕ_i et ψ_α définies plus haut, on obtient :

$$\begin{cases} A_i \cos(\pi\nu_i) = \sum_\alpha^N U_{i\alpha} B_\alpha \cos(\pi\mu_\alpha) \\ A_i \sin(\pi\nu_i) = - \sum_\alpha^N U_{i\alpha} B_\alpha \sin(\pi\mu_\alpha) \end{cases} \quad (3.7)$$

2. Notons que dans le chapitre 1 nous n'avons pas pris en compte la correction en masse.

Comme la matrice $[U_{i\alpha}]$ est unitaire, elle est inversible et son inverse est égal à sa transconjuguée $[U_{i\alpha}]^{-1} = [U_{i\alpha}]^\dagger = [U_{\alpha i}]$, on a donc :

$$\left\{ \begin{array}{l} \sum_i^N U_{\alpha i} A_i \cos(\pi \nu_i) = B_\alpha \cos(\pi \mu_\alpha) \\ \sum_i^N U_{\alpha i} A_i \sin(\pi \nu_i) = -B_\alpha \sin(\pi \mu_\alpha) \end{array} \right. \quad (3.8)$$

En multipliant ces équations respectivement par $\cos(\pi \mu_\alpha)$ et $-\sin(\pi \mu_\alpha)$ puis en additionnant, on obtient une première équation. Ensuite, en multipliant ces équations respectivement par $\sin(\pi \mu_\alpha)$ et $\cos(\pi \mu_\alpha)$ puis en additionnant, on obtient la seconde. Le système devient alors :

$$\left\{ \begin{array}{l} \sum_i^N U_{\alpha i} \cos(\pi(\nu_i + \mu_\alpha)) A_i = B_\alpha \\ \sum_i^N U_{\alpha i} \sin(\pi(\nu_i + \mu_\alpha)) A_i = 0 \end{array} \right. \quad (3.9)$$

Ce jeu d'équations constitue la formulation de Cooke et Cromer [69] de la MQDT. En utilisant la seconde équation, on remarque qu'il admet des solutions non triviales si :

$$\boxed{\det[U_{\alpha i} \sin(\pi(\nu_i + \mu_\alpha))] = 0} \quad (3.10)$$

Cette équation est fondamentale puisqu'elle impose, pour un jeu de coefficients $U_{\alpha i}$ et μ_α , les nombres quantiques effectifs ν_i des états propres à longue distance. Les ν_i de la voie Rydberg d'intérêt qui respectent les équations (3.10) et (3.3) sont les paramètres que l'on souhaite déterminer. Tout l'objectif du programme MQDT est, à partir de mesures expérimentales de quelques états, d'ajuster les paramètres $U_{\alpha i}$, μ_α et I_i caractérisant les séries Rydberg. Après optimisation de ces paramètres, on aura un modèle complet des séries Rydberg, contenant tous les paramètres dont nous avons besoin pour les décrire.

3.1.2 Formulations de la MQDT

Le formalisme $\theta_{\tilde{\alpha}\alpha}$, μ_α

La matrice $[U_{i\alpha}]$ s'identifie à une matrice de rotation et il convient de la décrire plus en détail. Pour notre modèle MQDT, nous avons choisi la formulation développée dans [70]. Dans la mesure où les états propres ψ_α sont décrits en couplage LS et les états ϕ_i en couplage jj , il est plus pratique de réécrire les éléments de matrice $U_{i\alpha}$ pour les décomposer en produits :

$$U_{i\alpha} = \sum_{\tilde{\alpha}} \bar{U}_{i\tilde{\alpha}} V_{\tilde{\alpha}\alpha} \quad (3.11)$$

où l'on a défini la base intermédiaire $\{\tilde{\alpha}\}$ qui correspond à la base $\{i\}$ en schéma de couplage LS . La matrice $[\bar{U}_{i\tilde{\alpha}}]$ s'identifie donc à la matrice de rotation de la base jj vers la base LS . La matrice $[V_{\tilde{\alpha}\alpha}]$ est aussi une matrice de rotation caractérisée par un angle $\theta_{\tilde{\alpha}\alpha}$: c'est celle-ci qui caractérise le couplage entre voies. L'intensité de ces couplages est donc entièrement déterminée par les angles $\theta_{\tilde{\alpha}\alpha}$.

En plus des angles de rotation, il faut aussi considérer les défauts quantiques propres des différentes voies μ_α . Ceux-ci vont jouer sur les positions en énergie des différents niveaux des voies correspondantes. Notons qu'il est nécessaire d'introduire une dépendance en énergie dans le défaut quantique propre de la voie Rydberg et ceci pour les mêmes raisons que pour les alcalins (voir formule de Ritz (1.12)). Celle-ci est faible et elle est

usuellement approximée par une dépendance linéaire. Le défaut quantique propre s'écrit alors :

$$\mu_\alpha(E) = \mu_\alpha^{(0)} + E \times \mu_\alpha^{(1)} \quad (3.12)$$

où l'origine des énergies est prise à l'énergie de ionisation de la configuration fondamentale du cœur ionique I_{6s} .

Les paramètres $\mu_\alpha(E)$, $\theta_{\tilde{\alpha}\alpha}$ et les limites d'ionisation de chaque voie I_i suffisent à décrire intégralement un modèle MQDT.

Résolution de (3.10) et formalisme de la matrice K

Pour des raisons historiques, nous résolvons l'équation (3.10) en utilisant un autre formalisme : le formalisme de la matrice de réaction (matrice K). Le passage entre les deux formalismes est très bien expliqué dans [19], l'idée est de définir une matrice K par transformation unitaire de la matrice $U_{i\alpha}$:

$$[K_{ji}(E)] = [U_{j\alpha}]^\dagger [\delta_{\alpha\alpha'} \tan(\pi\mu_\alpha(E))] [U_{\alpha i}] \quad (3.13)$$

L'intérêt est que l'on peut ensuite simplifier l'équation (3.10). En effet, en exprimant le nombre quantique effectif des différentes voies de couplage ν_i en fonction du nombre quantique effectif ν_j d'une seule voie de couplage (par exemple celle du premier perturbateur) :

$$\nu_i = \left(\frac{I_i - I_j}{\tilde{R}} + \frac{1}{\nu_j^2} \right)^{-\frac{1}{2}} \quad (3.14)$$

on peut alors réexprimer (3.10) :

$$\boxed{\det([K_{ji}(E) + \delta_{ij} \tan(\pi\nu_i(\nu_j))]) = 0} \quad (3.15)$$

Cette équation est l'équivalent de la relation (3.10) dans le formalisme de la matrice de réaction. Les valeurs de ν_j vérifiant (3.15) sont les états liés du système, paramétrés par les éléments de matrice $K_{ij}(E)$. Dans notre programme MQDT, nous faisons un changement de base à partir des μ_α et des $U_{i,\alpha}$ vers les $K_{ij}(E)$ et nous résolvons (3.15) par la méthode de Brent pour accéder aux niveaux d'énergies *théoriques*.

3.1.3 Représentation de Lu-Fano des états liés

L'équation (3.10) définit la surface des défauts quantiques. En effet, les solutions de cette équation sont les nombres quantiques effectifs ν_i de tous les états liés possibles pour chaque voie i . Or, on rappelle que $\nu_i = n - \delta_i$, ainsi si l'on trace les solutions $\nu_i \pmod{1}$, celles-ci s'identifient aux défauts quantiques.

Si l'on considère, par exemple, une situation à deux voies de couplage, la surface des défauts quantiques est une courbe à une dimension et peut donc être tracée en $2D$. Prenons une première voie, caractérisée par un défaut quantique ν_1 et une limite d'ionisation I_1 , qui sera la voie de Rydberg. Puis prenons une seconde voie, caractérisée par un défaut quantique ν_2 et une limite d'ionisation I_2 qui sera la voie de perturbation. En utilisant la relation (3.10), on déduit le défaut quantique de la voie Rydberg en fonction de celui de la voie perturbatrice : on a alors une fonction continue $\nu_1(\nu_2)$ et paramétrée par les coefficients $\mu_{\frac{1}{2}}$, $U_{\frac{11}{22}}$ et $U_{\frac{12}{21}}$. Cette fonction continue est la fonction tracée en trait noir sur

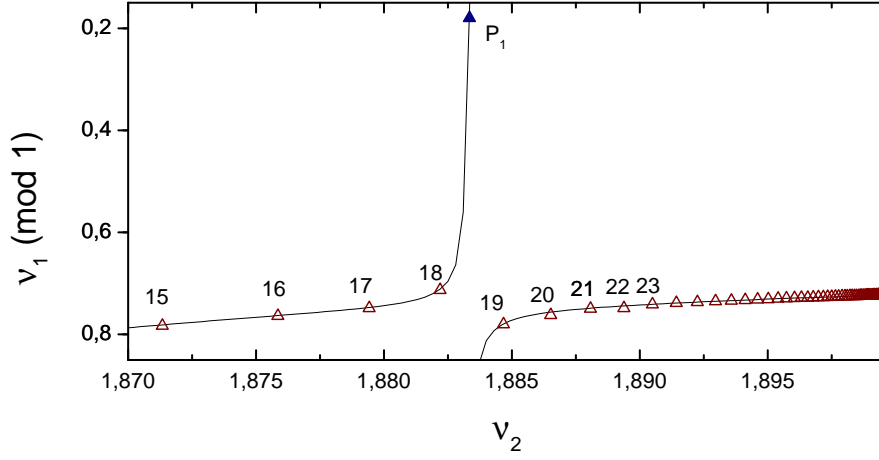


FIGURE 3.2 – Graphe de Lu Fano. ν_1 est le nombre quantique effectif de la voie Rydberg, ν_2 celui du perturbateur. En trait plein, le modèle MQDT $\nu_1(\nu_2)$. Triangle : niveaux de la voie Rydberg (série 2). On remarque qu'autour de l'énergie de l'état P_1 appartenant à la série perturbatrice, le défaut quantique de la voie Rydberg diverge.

la figure 3.2. Les états liés, c'est à dire les états discrets de la série Rydberg sont alors les points d'intersection entre la fonction $\nu_1(\nu_2)$ et la fonction :

$$\nu_1 \pmod{1} = \left(\frac{I_1 - I_2}{\tilde{R}} + \frac{1}{\nu_2^2} \right)^{-\frac{1}{2}} \quad (3.16)$$

Les tracés de la fonction continue $\nu_1(\nu_2)$ et des points correspondant aux états discrets de la série Rydberg constituent un graphe de Lu-Fano [71] (voir figure 3.2). Notons que le défaut quantique de la voie perturbatrice est une échelle d'énergie, les niveaux de la voie Rydberg se répartissent donc de façon croissante sur l'axe des abscisses. La voie perturbatrice correspond à une série d'états doublement excités et possède une limite d'ionisation bien plus grande que la voie Rydberg. Les écarts d'énergie correspondant à une même variation du défaut quantique effectif seront donc beaucoup plus grands pour la série perturbatrice que pour la série Rydberg. En conséquence, les états de Rydberg sont en général comprimés dans une "petite" zone du nombre quantique effectif de la voie perturbatrice. Ceci implique par ailleurs que très souvent, seul un état de la voie perturbatrice se situe dans la zone d'énergie des états de Rydberg. On remarque aussi, sur la figure 3.2, la divergence caractéristique du défaut quantique de la voie Rydberg autour du niveau de la voie perturbatrice.

3.1.4 Le programme d'analyse numérique MQDT

Dans la mesure où les corrélations entre électrons de valence provoquent des couplages entre voies de même moment angulaire total J , il convient d'insérer les séries Rydberg $6snl$

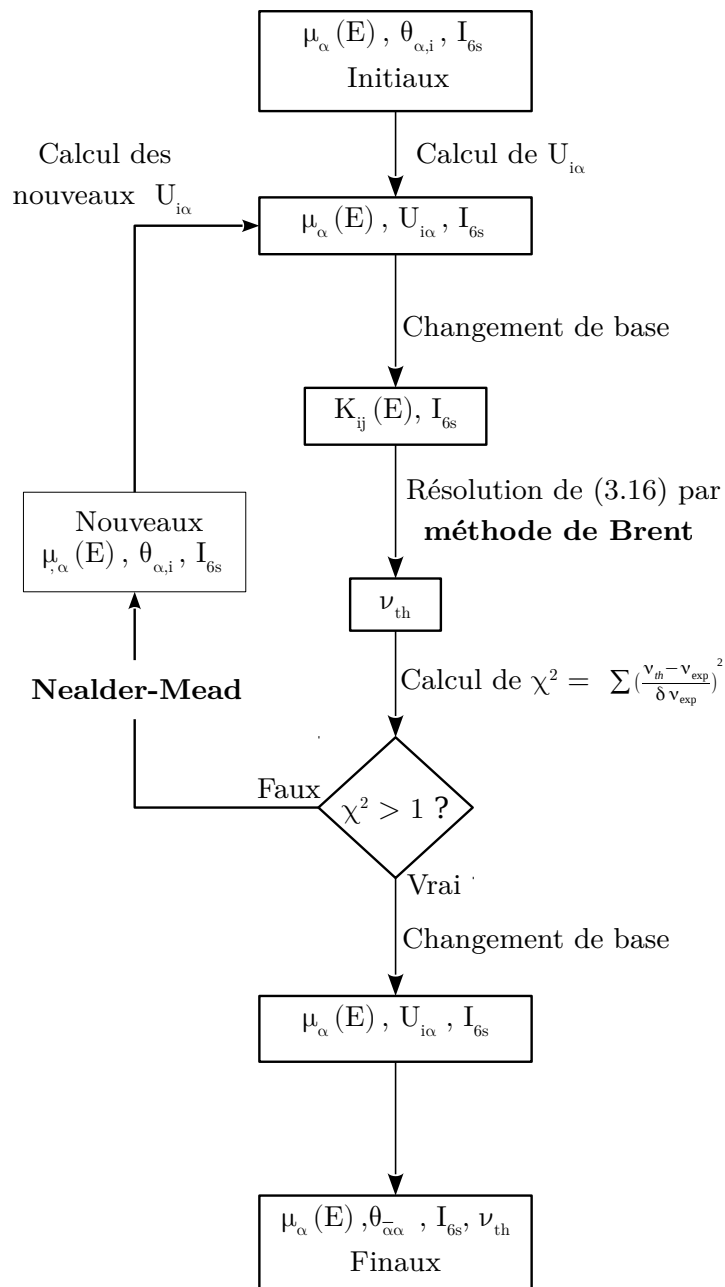


FIGURE 3.3 – Schéma de fonctionnement du programme MQDT

de même moment angulaire J dans une même analyse MQDT. Les deux premières voies du modèle correspondront donc (sauf dans le cas des séries $6snl - 1l_i$ et triplet $6snl - 3l_i$). Les suivantes seront les voies de perturbation. Dans le formalisme que nous utilisons, chaque voie i est caractérisée par une limite d'ionisation I_i et un défaut quantique propre μ_α , ce sont donc ces paramètres que l'on insère dans le modèle. Ensuite, on inclut les angles de rotation caractérisant les couplages entre voies $\theta_{\alpha\alpha}$. Pour finir, on donne en entrée les mesures des niveaux d'énergie expérimentaux ν_{exp} de la voie Rydberg et les énergies des perturbateurs quand elles sont connues. Le programme MQDT doit alors, à partir des paramètres initiaux, calculer les niveaux d'énergie théoriques ν_{th} . En comparant les niveaux théoriques et expérimentaux, on détermine si le modèle est assez proche. Tant que la convergence n'est pas atteinte, le programme réajustera les paramètres μ_α et $\theta_{\alpha\alpha}$ et fonctionnera ainsi de manière itérative pour trouver le bon jeu de paramètres MQDT. Sur la figure 3.3 est reporté le schéma de fonctionnement du programme. Pour une description détaillée de son fonctionnement je me reporte une fois de plus à la thèse d'Alexandre Zuliani [19]. Dans les paragraphes suivants, les étapes importantes du programmes seront décrites de manière succinctes.

Calcul des ν_{th} par méthode de Brent

Pour déterminer les états liés du système, *i.e.* les niveaux d'énergie ν_i , il est nécessaire de résoudre l'équation (3.15). Pour ce faire, nous utilisons un algorithme de recherche de zéros appelé *méthode de Brent*. Celui-ci permet de déterminer le zéro d'une fonction qui change de signe sur un certain intervalle en combinant la méthode de la sécante, de la dichotomie et de l'interpolation quadratique inverse [19]. La fonction $f(\nu_j)$ dont nous cherchons les racines est définie par :

$$f(\nu_j) = \det([K_{ji} + \delta_{ij} \tan(\pi\nu_i(\nu_j))]) \quad (3.17)$$

Elle contient donc une infinité de pôles, et ceux-ci vont déranger la recherche des zéros. Il convient donc de découper l'espace de recherche en plusieurs intervalles, un entre chaque pôle ($\nu_i(\nu_j) = 1 \pmod{1}$). Dans chacun de ces intervalles, on applique la méthode de Brent pour trouver la valeur de ν_j . Notons que lorsqu'on a un perturbateur localisé, celui-ci va s'insérer dans un intervalle, on peut alors avoir plusieurs racines dans un même intervalle. De même, dans le cas où on analyse deux séries de Rydberg en même temps (cas singulet/triplet), on s'attend à avoir au moins deux états dans chaque intervalle. Dans ces deux dernières situations, il convient de sous-diviser ces intervalles (voir [19] pour plus de détails). À l'issue de cette étape, on a déterminé tous les états liés ν_{th} du système.

Le critère de convergence

Après le calcul des niveaux théoriques ν_{th} , l'étape suivante est la comparaison aux valeurs expérimentales ν_{exp} . Ceci est effectué en évaluant la fonction d'erreur normalisée χ^2 . Celle-ci est calculée à partir de la comparaison entre les valeurs calculées par la MQDT et les valeurs expérimentales :

$$\chi^2 = \sum_{n=1}^{N_p} \left(\frac{\nu_{exp}^{(n)} - \nu_{th}^{(n)}}{\delta\nu_{exp}} \right)^2 \quad (3.18)$$

où la somme porte sur l'ensemble des points expérimentaux de la série de Rydberg et $\delta\nu_{exp}$ est l'erreur expérimentale sur la mesure des niveaux. Il convient de normaliser la

fonction d'erreur par le nombre de points :

$$\underline{\chi}^2 = \frac{\chi^2}{N_p} \quad (3.19)$$

Optimisation des paramètres MQDT et algorithme de Nelder-Mead

L'ossature de notre programme est l'algorithme itératif d'optimisation des paramètres MQDT. À chaque itération, celui-ci doit modifier le jeu de paramètres pour minimiser en bout de course la fonction d'erreur $\underline{\chi}^2$. Pour ce faire nous utilisons l'algorithme de Nelder-Mead (*Downhill Simplex Method* en anglais).

Cet algorithme est basé sur la notion de simplexe. Dans un espace à M dimensions, un simplexe est défini comme un polytope à $M + 1$ sommet (par exemple : $M = 2$ est un triangle). L'espace dans lequel se situe le simplexe est l'espace des paramètres MQDT. Ainsi, chaque sommet du simplexe correspond à une configuration MQDT (i.e. ses coordonnées sont les paramètres MQDT) et on peut y calculer la fonction d'erreur. Selon la valeur de cette fonction d'erreur aux sommets, l'algorithme va explorer l'espace des configurations MQDT en réalisant des transformations géométriques sur le simplexe. Lorsqu'il trouve une zone de l'espace où la fonction d'erreur est minimale, le simplexe va se rétracter autour de cette zone pour trouver le minimum local de la fonction d'erreur. Le critère de convergence de l'algorithme tient sur la taille du simplexe. En dessous d'une certaine taille l'algorithme s'arrête et le sommet du simplexe qui minimise la fonction d'erreur a pour coordonnées les paramètres MQDT optimaux.

Le critère de convergence inhérent à la méthode des simplexes ne correspond pas nécessairement au minimum absolu de $\underline{\chi}^2$. L'algorithme peut en effet converger vers des minimums locaux de $\underline{\chi}^2$. Pour éviter cela, on utilise une méthode de recuit simulé. Celle-ci permet de forcer l'algorithme à explorer un espace des configurations plus grand. À l'issue de cette étape, si l'algorithme converge et que l'on a atteint le critère $\underline{\chi}^2 \approx 1$, on a obtenu le jeu de paramètres MQDT optimal.

3.2 Spectroscopie optique des séries $6sns$ et $6snd$

Pour obtenir un bon modèle MQDT décrivant les séries Rydberg, on a besoin de mesures précises des niveaux d'énergie. La résolution recherchée est idéalement de l'ordre de grandeur de la largeur des niveaux Rydberg (≈ 1 kHz à $n = 40$). Cela étant, dans la plupart des expériences, on élargit artificiellement la transition par la puissance laser ou encore par la largeur du niveau intermédiaire. Par conséquent, une résolution de 1 MHz est en général suffisante. Les précédentes mesures spectroscopiques des niveaux de Rydberg [70, 72, 73, 74] de l'ytterbium ont été effectuées avec des lasers très larges spectralement, limitant ainsi la précision sur la mesure à quelques GHz (à 3.6 GHz pour [70]). Celles-ci ne sont donc pas suffisantes pour nous.

C'est la raison pour laquelle nous avons entrepris de faire de nouvelles mesures avec des lasers plus fins et à partir d'un nuage d'atomes froids. Dans cette partie, je présenterai les mesures effectuées sur les séries de Rydberg accessibles optiquement par la voie d'excitation (2.16) : c'est à dire les séries $6sns - ^1S_0$, $6snd - ^1D_2$ et $6snd - ^3D_2$. Les énergies mesurées et ajustées par le modèle MQDT sont reportées dans les tableaux 10 et 11 situés en annexe.

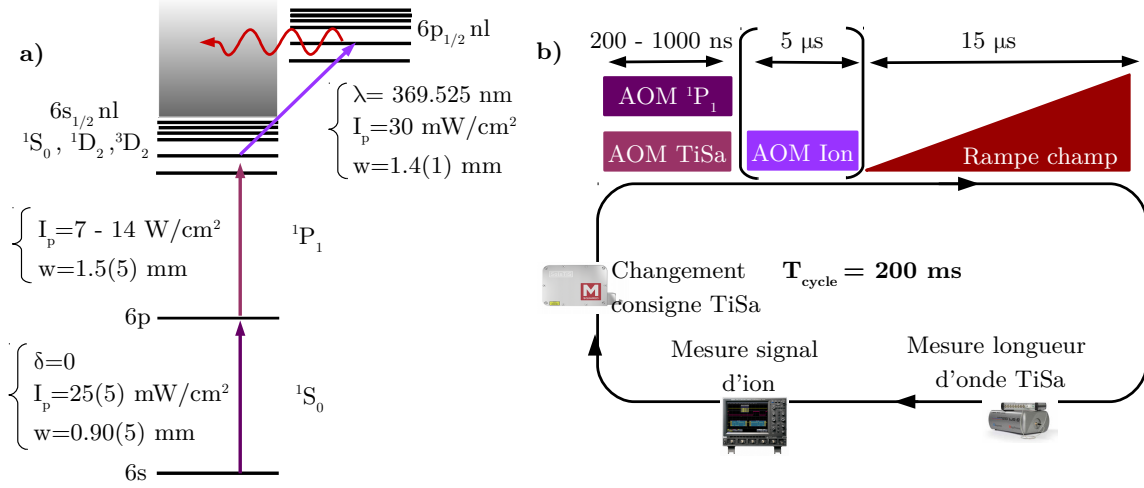


FIGURE 3.4 – a) Schéma des niveaux et paramètres des lasers pour les mesures spectroscopiques. b) Schéma de la séquence temporelle pour les mesures de spectroscopie optique

3.2.1 Dispositif expérimental pour les mesures spectroscopiques

Excitation optique et mesure des longueurs d'onde

Pour toutes les mesures spectroscopiques effectuées, le nuage d'atomes froids est chargé en régime stationnaire, il mesure environ 1 mm de diamètre et contient entre 10^6 et 10^7 atomes. Dans le piège, les atomes sont envoyés vers les états de Rydberg par excitation à deux photons via le niveau intermédiaire $6s6p - ^1P_1$. Le laser utilisé pour atteindre ce niveau est le laser maître décrit dans la section 2.1.4. Le faisceau est coupé par un modulateur acousto-optique (AOM) et injecté dans une fibre. En sortie de fibre, il est collimaté à un waist de $0.90(5) \text{ mm}$ et possède une intensité pic d'environ $25(5) \text{ mW/cm}^2$. Sa fréquence est résonante avec la transition $^1S_0 - ^1P_1$.

De l'état 1P_1 , les atomes sont excités vers les niveaux de Rydberg par le laser Titane-Saphire (TiSa) doublé en fréquence. Ce laser est accordable de 394 nm à 400 nm , nous donnant accès à tous les états de Rydberg des séries 1S_0 , 1D_2 et 3D_2 de nombre quantique principal n supérieur à 20. Sa largeur spectrale est estimée par le constructeur à 200 kHz . Le faisceau laser est coupé par un AOM, puis collimaté à un waist d'environ $1.5(5) \text{ mm}$ et envoyé directement vers les atomes. Son intensité pic sur les atomes est $^3 7-14 \text{ W/cm}^2$. La fréquence du laser TiSa est mesurée avant doublage (à $\approx 790 \text{ nm}$) toutes les 10 ms grâce à un lambda-mètre commercial⁴. Une routine du programme d'automatisation rapatrie les longueurs d'ondes mesurées et asservit le laser à une longueur d'onde consigne en rétroagissant sur le résonateur de la cavité du laser TiSa.

La séquence temporelle est schématisée sur la figure 3.4. Les lasers d'excitation sont allumés simultanément pendant une durée allant de 200 ns à $1 \mu\text{s}$. Un délai de sécurité est appliqué entre excitation et détection de manière à s'assurer que le champ électrique soit bien éteint pendant l'excitation (dans le cas contraire, le champ électrique peut décaler les résonances par effet Stark). Les atomes sont ensuite ionisés par application d'une rampe de champ électrique (pour les état $n > 40$). Pour les états de faible nombre quantique

3. La grande incertitude sur la puissance du laser est due aux variations de l'efficacité de doublage selon la longueur d'onde. Nous n'avons pas réoptimisé la cavité à chaque état...

4. High Finesse WSU

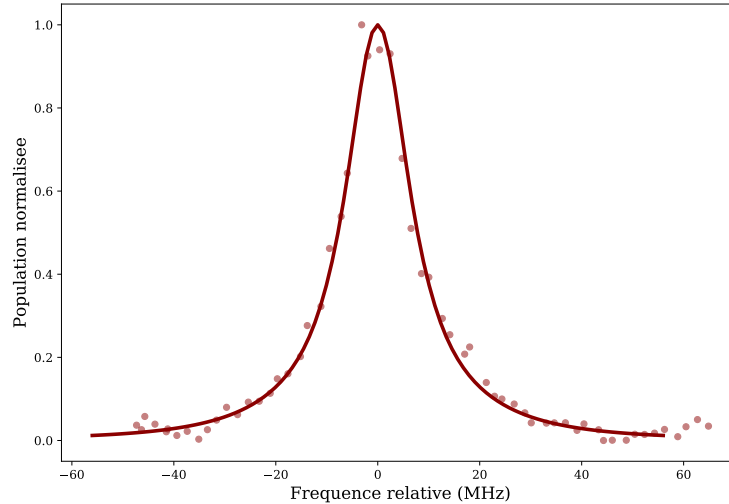


FIGURE 3.5 – Spectre d’excitation Rydberg du niveau $6s45d-1D_2$ normalisé à 1. Cercle : points expérimentaux. Trait continu : ajustement avec un modèle d’équations de Bloch à trois niveaux. La pulsation de Rabi pour le laser couplant état fondamental et intermédiaire est ajustée à $\Omega_1 \approx \Gamma_{6p}/(2\sqrt{2})$ ($s_1=0.5$). Pour le laser couplant état intermédiaire et état de Rydberg, la pulsation de Rabi est ajustée à $\Omega_2 \approx 2\pi \times 18$ MHz. L’amplitude du signal est aussi ajustée.

principal ($n < 40$), le champ électrique maximum applicable est trop faible⁵ pour les ioniser, c’est la raison pour laquelle nous les détectons par auto-ionisation. Dans les deux cas, les ions sont ensuite guidés par champ électrique vers le détecteur MCP.

Détection des états $n < 40$: auto-ionisation

Pour les états $n < 40$, la détection des atomes de Rydberg est effectuée par auto-ionisation. Un laser proche de la résonance de la transition $6s_{1/2} - 6p_{1/2}$ de l’ion Yb^+ est envoyé pendant $5 \mu\text{s}$ après l’excitation Rydberg (figure 3.4). Comme les états de Rydberg visés sont des états de faible moment orbital, le couplage entre la voie excitée $6p_{1/2}$ et le continuum des voies $6s_{1/2}$ et $5d_{3/2}$ est fort : les atomes vont rapidement auto-ioniser (voir chapitre 4). Le champ électrique va ensuite guider les ions vers le détecteur MCP. En l’occurrence, le potentiel appliqué sur l’électrode est sensiblement plus faible (≈ 1 kV) que dans le cas de la détection en champ puisqu’il sert uniquement à guider les ions. Le laser utilisé est une diode à cavité étendue commerciale⁶ de largeur 500 kHz. Celui-ci est accordé à la longueur d’onde de résonance de la transition de $6s_{1/2} - 6p_{1/2}$ de l’isotope 174 de l’ion Yb^+ (≈ 369.525 nm). La largeur du spectre d’auto-ionisation pour les états ns et nd autour de $n=30$ est de l’ordre de 10 GHz, très grande devant la dérive du laser. Par conséquent, nous n’avons pas besoin d’asservir celui-ci. En sortie du laser, le faisceau est coupé par un AOM puis injecté dans une fibre. En sortie de fibre, le faisceau est collimaté à un waist de 1.4 mm et son intensité pic est d’environ $30 \text{ mW}/\text{cm}^2$.

5. La tension maximale applicable sur les électrodes d’ionisation est de 4 kV pour l’instant.

6. Moglabs-ECDL

3.2.2 Mesure et analyse des spectres

Procédure de mesure et d'analyse des spectres

À chaque valeur de fréquence consigne, on prend 5 mesures et on enregistre, pour chacune d'entre elles, l'intégrale du signal de temps de vol ainsi que la fréquence mesurée du laser. En post-traitement, pour chaque valeur consigne de la fréquence, on fait une moyenne sur les 5 points. Sur la figure 3.5 est reporté, à titre d'exemple, le spectre obtenu autour de la résonance du niveau $6s45d - {}^1D_2$. Les spectres sont ensuite ajustés avec une fonction lorentzienne :

$$f(\nu) = A_0 \frac{\frac{2}{\pi\Gamma}}{1 + \left(\frac{\nu - \nu_0}{\Gamma/2}\right)^2} \quad (3.20)$$

où A_0 , ν_0 et Γ donnent respectivement l'aire, le centre (en fréquence) et la largeur à mi-hauteur (en fréquence) du spectre. L'incertitude statistique sur la fréquence centrale est évaluée à 150 kHz à 1σ , faible devant l'incertitude de mesure (voir sous-section suivante). La fréquence totale du niveau Rydberg est ensuite calculée en additionnant la fréquence du second photon ν_0 avec celle du premier photon correspondant à la transition $6s - {}^1S_0 \rightarrow 6p - {}^1P_1$. Celle-ci a été mesurée récemment [75] avec une très bonne précision à $\nu_{1P1} = 751.526\,533\,49(33)$ THz.

Sur le spectre 3.5, on remarque que la largeur à mi-hauteur est d'environ 15 MHz. On s'attendrait pourtant à une largeur limitée par celle du niveau intermédiaire $2\pi \times 28$ MHz. Dans les deux paragraphes suivants, on propose un modèle analytique et un modèle numérique pour comprendre cette réduction de la largeur observée.

Approche analytique simple de l'excitation Rydberg à deux photons

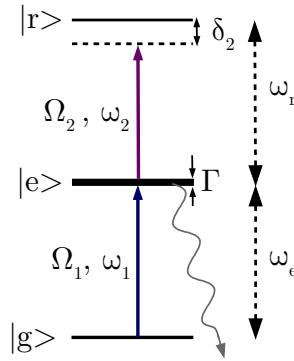


FIGURE 3.6 – Schéma de la structure atomique et des lasers pour le modèle analytique

Prenons un système à trois niveaux $|g\rangle$, $|e\rangle$ et $|r\rangle$ couplés deux à deux par des lasers de pulsations de Rabi Ω_1 et Ω_2 (voir figure 3.6). Ce système est assez simple pour être traité analytiquement si l'on considère que le laser assurant la transition $g \rightarrow e$ est résonant et peu saturant, *i.e.* $\delta_1 = 0$ et $s_1 \ll 0.5$. Dans ce cas de figure, on peut négliger le recyclage des atomes provenant de e dans l'état g . Ainsi on peut traiter le système avec une équation de Schrödinger simple : il n'est pas nécessaire d'utiliser les équations de matrice densité.

L'hamiltonien H du système est donné par :

$$H = H_0 + \hbar\Omega_1 \cos(\omega_1 t) (|e\rangle \langle g| + |g\rangle \langle e|) + \hbar\Omega_2 \cos(\omega_2 t) (|r\rangle \langle e| + |e\rangle \langle r|) \quad (3.21)$$

et la fonction propre du système peut s'exprimer sous la forme :

$$|\psi\rangle = c_g(t) |g\rangle + c_e(t) e^{-i\omega_e t} |e\rangle + c_r(t) e^{-i(\omega_e + \omega_r)t} |e\rangle \quad (3.22)$$

En projetant l'équation de Schrödinger puis en appliquant l'approximation du champ tournant, on obtient le système d'équations suivant :

$$\begin{cases} i\dot{c}_g(t) &= \frac{\Omega_1}{2} c_e(t) e^{i\delta_1 t} \\ i\dot{c}_e(t) &= \frac{\Omega_1}{2} c_g(t) e^{-i\delta_1 t} + \frac{\Omega_2}{2} c_r(t) e^{i\delta_2 t} \\ i\dot{c}_r(t) &= \frac{\Omega_2}{2} c_e(t) e^{-i\delta_2 t} \end{cases} \quad (3.23)$$

Comme le laser couplant les états $|g\rangle$ et $|e\rangle$ est résonant, on a $\delta_1 = 0$. D'autre part, on peut faire le changement de phase : $\tilde{c}_r(t) = c_r e^{i\delta_2 t}$. On a ainsi éliminé tous les termes exponentiels. À ce stade, on peut aussi rajouter la relaxation de l'état $|e\rangle$. Celle-ci s'introduit en ajoutant le terme $i\Gamma/2c_e$ à l'équation de $i\dot{c}_e(t)$. Ce terme garantit une décroissance exponentielle de la population $|c_e|^2$ dans l'état e . Notons que l'on ne recycle pas cette population dans l'état $|g\rangle$. Par conséquent, cette approximation n'est valable que si l'on peuple faiblement l'état $|e\rangle$, c'est à dire si l'on a $\Omega_1 \ll \Gamma$.

$$\begin{cases} i\dot{c}_g(t) &= \frac{\Omega_1}{2} c_e(t) \\ i\dot{c}_e(t) &= \frac{\Omega_1}{2} c_g(t) + \frac{\Omega_2}{2} \tilde{c}_r(t) - i\frac{\Gamma}{2} c_e(t) \\ i\dot{\tilde{c}}_r(t) &= \frac{\Omega_2}{2} c_e(t) - \frac{\delta_2}{2} \tilde{c}_r(t) \end{cases} \quad (3.24)$$

On fait alors l'approximation que la dynamique de l'état $|e\rangle$ est bien plus rapide que celle des états $|g\rangle$ et $|r\rangle$. Sur les échelles de temps long ($t \gg 1/\Gamma$), on peut estimer que $\dot{c}_e(t) \approx 0$. Ceci nous permet d'exprimer c_e en fonction de c_g et c_r :

$$c_e(t) = -i \left(\frac{\Omega_1}{\Gamma} c_g(t) + \frac{\Omega_2}{\Gamma} \tilde{c}_r(t) \right) \quad (3.25)$$

On peut ainsi remplacer c_e dans l'équation sur $\dot{c}_g(t)$ et sur $\dot{\tilde{c}}_r(t)$:

$$\begin{cases} i\dot{c}_g(t) &= -\frac{\Omega_1^2}{\Gamma} c_g(t) - \frac{\Omega_1\Omega_2}{\Gamma} \tilde{c}_r(t) \\ i\dot{\tilde{c}}_r(t) &= -i\frac{\Omega_1\Omega_2}{2\Gamma} c_g(t) - i\frac{\Omega_2^2}{2\Gamma} \tilde{c}_r(t) - \frac{\delta_2}{2} \tilde{c}_r(t) \end{cases} \quad (3.26)$$

Sachant que $\Omega_2^2 > \Omega_1\Omega_2$, on identifie le taux de décroissance effectif de la population dans l'état Rydberg $|c_r|^2$ comme :

$$\Gamma_{eff} \approx \frac{\Omega_2^2}{\Gamma} \quad (3.27)$$

Ce taux de décroissance est équivalent, dans l'espace des fréquences, à la largeur spectrale que l'on va observer. On démontre ainsi que celle-ci peut être très inférieure à celle du niveau intermédiaire. La condition de validité de ce modèle sur la durée de l'excitation τ est assez drastique. En effet, on rappelle que nous n'avons pas pris en compte le recyclage vers $|g\rangle$ des atomes émettant spontanément à partir de $|e\rangle$. Dans le modèle, on a donc une perte de la population du niveau $|g\rangle$ qui n'est pas présente en réalité. L'expression

de $\dot{c}_g(t)$ dans l'équation (3.26) indique un taux de déplétion de $\frac{\Omega_1^2}{\Gamma}$. Pour que le modèle épouse nos conditions expérimentales, il faut que la durée d'excitation τ soit telle que l'effet de déplétion soit négligeable, *i.e.* :

$$\tau \leq \frac{\Gamma}{\Omega_1^2} \quad (3.28)$$

Cette condition n'est malheureusement pas remplie avec nos paramètres expérimentaux. On a en effet un paramètre de saturation $s_1 \approx 0.5$, donnant $\frac{\Gamma}{\Omega_1^2} \approx 50$ ns ce qui est faible devant notre durée d'excitation $\tau \approx 200 - 1000$ ns. Dans le paragraphe suivant, on va faire appel à un modèle numérique basé sur les équations de matrice densité qui sera valable avec nos paramètres expérimentaux. Cela étant, cela n'enlève rien à la validité de ce modèle dans le régime où $s_1 \ll 1$.

Approche numérique : analyse par équations de Bloch optiques

Des simulations avec un modèle d'équations de Bloch optiques à trois niveaux ont été effectuées. Dans cette approche, on utilise les équations de matrice densité, le recyclage des atomes descendant spontanément de e dans l'état g peut ainsi être pris en compte. On a donc un modèle qui sera bien plus conforme à l'expérience. Les paramètres ajustables de notre modèle sont les pulsations de Rabi des lasers et l'amplitude du signal. La pulsation de Rabi du premier laser a été ajustée à $\Omega_1 \approx \Gamma_{6p}/2\sqrt{2}$, ce qui correspond à un paramètre de saturation $s_1 \approx 0.5$. Pour le second laser couplant e à r , la pulsation de Rabi a été ajustée à $\Omega_2 \approx 2\pi \times 18$ MHz. Notons que pour cette transition, il est difficile d'évaluer la force d'oscillateur réelle. Cela étant, la fréquence de Rabi ajustée est compatible avec nos paramètres expérimentaux. En effet, en prenant $\Gamma_{r \rightarrow e} = 5 \times 10^4 s^{-1}$ et une intensité laser à 10 W/cm², la fréquence de Rabi expérimentale est de $\Omega_2 \approx 2\pi \times 6$ MHz. Compte-tenu de l'incertitude sur l'intensité et sur $\Gamma_{r \rightarrow e}$, ce résultat est satisfaisant. Avec ce modèle, on reproduit très bien la largeur mesurée (figure 3.5), nous confirmant ainsi la provenance de cette réduction de la largeur.

Notons que cette réduction de largeur peut s'interpréter en terme de piègeage cohérent de population. En effet, l'état propre du système à trois niveaux couplés est l'état noir suivant [76] :

$$|NC\rangle = \frac{1}{\sqrt{\Omega_1^2 + \Omega_2^2}}(\Omega_2 |g\rangle - \Omega_1 |r\rangle) \quad (3.29)$$

Dans les conditions où $\Omega_2 \gg \Omega_1$, cet état contient de l'état Rydberg $|r\rangle$ mais ne contient pas du tout de l'état intermédiaire. L'action des deux lasers a pour effet d'accumuler les atomes dans l'état noir. Or, lorsqu'on détecte la population dans l'état Rydberg $|r\rangle$, on détecte de fait la population dans l'état noir $|NC\rangle$. Ainsi la largeur de la résonance n'est plus liée à la largeur de l'état intermédiaire $|e\rangle$ puisque l'état noir n'en contient pas. Dans notre cas, nous sommes dans un régime intermédiaire $\Omega_2 \geq \Omega_1$, on observe seulement une réduction de la largeur. Notons que cet effet a déjà été observé par [76].

3.2.3 Évaluation de l'incertitude de mesure

Déplacement lumineux

Compte tenu de la puissance du laser TiSa, il convient d'évaluer quel est l'effet de celui-ci sur l'énergie du niveau $6p$. En effet, le laser est désaccordé de la transition $6s^2 \rightarrow 6s6p$

de seulement quelques THz. Celui-ci peut donc habiller les états $6s^2$ et $6s6p$ et ainsi décaler leurs énergies respectives. Si c'est le cas, la mesure de la fréquence du deuxième photon $6s6p \rightarrow 6snl$ en sera affectée, il est donc primordial de s'assurer que cet effet est négligeable. Le déplacement lumineux en énergie du niveau excité sous l'action d'un laser est donné par :

$$\Delta E = \frac{\hbar\Omega^2}{4\delta} \quad (3.30)$$

où Ω est la fréquence de Rabi du laser et δ le désaccord laser par rapport à la transition. En prenant une intensité à 10 W/cm^2 et un désaccord $\delta = 2\pi \times 4 \text{ THz}$ (ce désaccord correspond à celui des niveaux $n = 30$, pour lesquels le déplacement devrait être maximal), le déplacement lumineux est estimé à $\Delta\nu = \Delta E/h = 4 \text{ kHz}$. Celui-ci est donc faible et même négligeable par rapport à la largeur du laser.

L'autre déplacement lumineux qu'il reste à évaluer est celui exercé par le laser de la première étape d'excitation sur la transition $6s6p \rightarrow 6snl$. Ici, l'intensité du laser n'est pas très grande mais compte tenu de la faible intensité de saturation de la transition vers l'état Rydberg, un effet est envisageable. Avec une puissance laser de 30 mW/cm^2 et un désaccord $\delta = -2\pi \times 4 \text{ THz}$, on trouve un déplacement lumineux très faible $\Delta\nu \ll 1 \text{ kHz}$ et donc largement négligeable. On peut faire de même pour le laser du ralentisseur Zeeman qui, on le rappelle, traverse le nuage. On trouve aussi un déplacement négligeable $\Delta\nu \ll 1 \text{ kHz}$.

Compensations des champs électriques de biais

Rappelons que les atomes de Rydberg sont extrêmement sensibles aux champs électriques statiques. Un faible champ de biais peut décaler fortement les niveaux d'énergie atomiques. Or l'enceinte expérimentale est, entre autre, constituée de matériaux isolants, notamment de céramiques qui servent à maintenir les électrodes. Celles-ci accumulent des charges, et induisent donc un champ électrique de biais au niveau des atomes. Ces champs doivent donc être compensés grâce aux électrodes prévues à cet effet. La procédure de mesure des champs de compensation est détaillée ci-après. Cette procédure est effectuée tous les jours afin de se prémunir contre les dérives éventuelles du champ de biais. Cela étant, il subsiste une erreur de compensation qui va provoquer une incertitude sur les niveaux d'énergie mesurés. Nous évaluerons cette incertitude.

Pour évaluer les champs de compensation on utilise le fait que, à champ électrique faible, l'effet Stark est quadratique. On a donc sur chaque axe :

$$\Delta E = \alpha(F - F_{\text{biais}})^2 \quad (3.31)$$

où F désigne le champs électrique statique appliqué et F_{biais} désigne le champs de biais, sur l'axe considéré. Expérimentalement, la fréquence de résonance est mesurée pour plusieurs valeurs du champ appliqué autour du champ nul. La fréquence de résonance est ensuite ajustée avec une fonction :

$$\nu(V) = \alpha'(V - V_0)^2 + \nu_0 \quad (3.32)$$

où V_0 s'identifie au voltage qu'il faut appliquer pour compenser le champ de biais. Le système d'électrodes de compensation est composé de quatre électrodes situées au dessus de la zone d'excitation et, de manière symétrique, quatre électrodes en dessous (figure 3.7). Celles-ci sont utilisées pour compenser les champs dans les directions Est-Ouest et

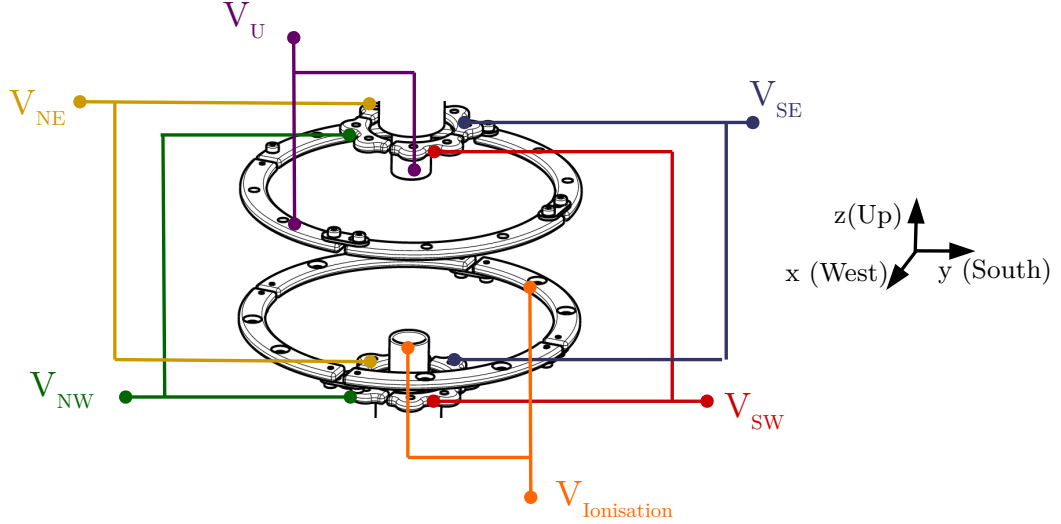


FIGURE 3.7 – Schéma détaillé des électrodes de compensation et des tensions appliquées sur chacune.

Nord-Sud. Les électrodes du dessus sont branchées en parallèle avec celles d'en dessous. Les tensions sont appliquées de manière symétrique afin d'assurer une bonne homogénéité du champ (*i.e.* $V_{NE} = -V_{SW}$ et $V_{NW} = -V_{SE}$). Le champ de compensation dans l'axe haut-bas est assuré par le cylindre et l'anneau situés à l'opposé du cylindre et de l'anneau d'ionisation.

Sur la figure 3.8 sont tracées les courbes d'ajustement pour les trois axes et pour un niveau particulièrement sensible au champ puisque c'est un n élevé. Les valeurs ajustées pour V_0 s'identifient au potentiel à appliquer sur l'électrode pour compenser le champ de biais. L'écart type ΔV_0 du paramètre ajusté V_0 représente l'erreur sur le potentiel de compensation. L'erreur type $\Delta \nu$ sur la fréquence est déduite de ΔV_0 par la relation $\Delta \nu = \alpha' \times \Delta V_0^2$. Cette erreur type vaut 70 kHz pour l'axe haut-bas et 150 kHz pour les axes Nord-Sud et Est-Ouest. L'incertitude totale due au champ électrique de biais sur la fréquence mesurée est donc estimée à :

$$\Delta \nu = \sqrt{\Delta \nu_{UD}^2 + \Delta \nu_{NS}^2 + \Delta \nu_{EW}^2} \approx 200 \text{ kHz} \quad (3.33)$$

Notons que la sensibilité au champ de l'énergie de l'état dépend fortement des nombres quantiques caractérisant l'état lui-même. On rappelle que la loi d'échelle de la polarisabilité est n^7 . L'incertitude due au champ sera donc un peu plus forte à $n = 80$ (≈ 350 kHz) mais beaucoup plus faible à $n=50$ (≈ 10 kHz). À $n = 80$, les états $6snd-^3D_2$ sont d'autant plus sensibles qu'ils sont très proches des états $6snp-^3P_1$ avec qui ils se couplent très bien. L'incertitude typique pour ces états n'a pas été caractérisée mais pourrait s'approcher du MHz.

Mesure de la fréquence

La mesure de la fréquence est effectuée avec un lambda-mètre commercial⁷. Celui-ci est calibré régulièrement sur une transition entre niveaux hyperfins de la raie D_2 du césium à 852 nm grâce à un laser asservi en absorption saturée provenant de l'expérience *Rydberg*

7. High Finesse WSU

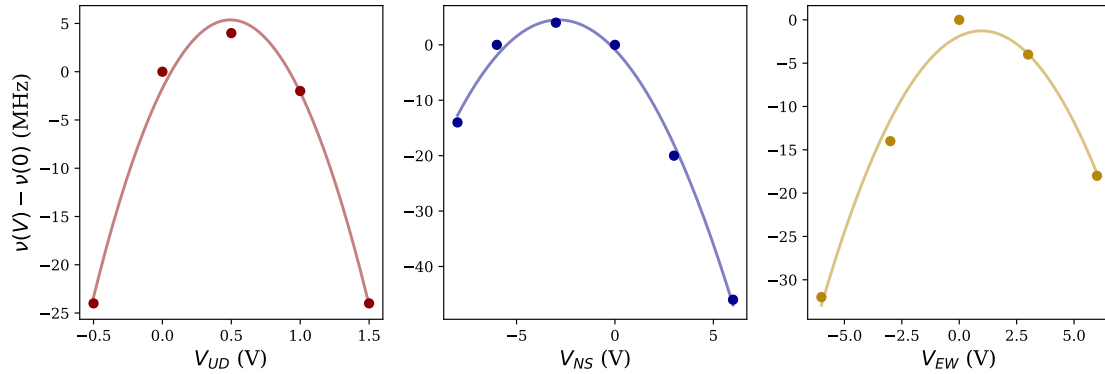


FIGURE 3.8 – Énergie relative du niveau Rydberg $6s75d - {}^1D_2$ (exprimé en fréquence) par rapport au potentiel appliqué sur les électrodes de l'axe haut-bas (À GAUCHE), de l'axe Nord-Sud (AU MILIEU), de l'axe Est-Ouest (À DROITE). Cercle plein : points expérimentaux. Ligne continue : ajustement avec la formule (3.32)

Cesium. La précision annoncée par le constructeur du lambda-mètre est de 10 MHz à 3σ lorsque la longueur d'onde mesurée est écartée de moins de 200 nm de la longueur d'onde de calibration. Dans la mesure où nous mesurons la fréquence du laser TiSa avant doublage, c'est à dire aux alentours de 380 THz (789 nm), nous respectons ces conditions. Pour obtenir la fréquence du laser réelle nous devons alors multiplier la fréquence par deux, l'erreur de 10 MHz est donc aussi doublée. L'incertitude de mesure à 1σ pour la mesure de la longueur d'onde est donc finalement donnée à 6.666 MHz.

Bilan des incertitudes

Sur le tableau 3.1 sont reportées toutes les incertitudes que nous avons prises en compte. Il est clair que l'incertitude dominante est celle de la mesure de la fréquence. On annonce donc une incertitude absolue arrondie à 7 MHz à σ .

Source de l'incertitude	Valeur
Light-shift de la transition $6s \rightarrow 6p$	10 kHz
Autres light-shifts	$\ll 1$ kHz
Champs électriques statiques de biais	< 500 kHz
Champ magnétique de biais	< 1000 kHz
Mesure de la longueur d'onde	6 666 kHz
Incertainitude sur l'énergie du niveau $6p$	330 kHz
Erreur statistique sur l'ajustement	150 kHz

TABLE 3.1 – Bilan des incertitudes sur la fréquence des niveaux Rydberg

3.2.4 Résultats et analyses MQDT

Nous avons mesuré les niveaux d'énergie des séries $6sns - ^1S_0$ et $6snd - ^1,3D_2$ de $n = 23$ à $n = 80$. Pour parfaire le modèle MQDT, nous avons inclus les données spectroscopiques de [70] pour $n < 23$. Bien que celles-ci soient moins précises (l'incertitude de mesure est évaluée à 3.6 GHz), elles sont nécessaires. En effet, la plupart des niveaux perturbateurs se situent dans cette zone et il est important de les inclure de manière fidèle dans le modèle car ils peuvent avoir une influence dans la zone d'intérêt ($n > 23$).

Analyse de la série $6sns - ^1S_0$

Aymar *et al.* [70] ont analysé la série $6sns$ pour des valeurs de n allant de 7 à 65. Leur modèle inclut quatre perturbateurs : deux sont identifiés comme des configurations électroniques $4f^{13}5d6s6p$ et les deux autres sont des configurations $6p^2$ mais de terme spectroscopique différent $-^3P_0$ pour l'un et 1S_0 pour l'autre. Ce dernier, situé entre $n = 11$ et $n = 12$ a un couplage très fort avec la série Rydberg et influence donc les niveaux jusqu'à des n élevés. Le perturbateur le plus haut en énergie, identifié comme une configuration $4f^{13}5d6s6p$, est situé entre $n = 18$ et $n = 19$ mais influence assez peu la série Rydberg. En effet, il ne se couple pas directement à la série Rydberg, mais uniquement au perturbateur $6p^2 - ^1S_0$. Son influence sur les niveaux Rydberg se produira uniquement par ce biais là.

Nos résultats sont présentés sous forme de graphe de Lu-Fano (figure 3.9). Aux quatre perturbateurs, nous avons jugé nécessaire d'ajouter un cinquième perturbateur. Celui-ci a la particularité d'être situé au delà de la limite de ionisation I_{6s} : c'est un état auto-ionisant. Cet état a été identifié comme ayant une configuration $4f^{13}5d6s6p$ et une valeur de moment angulaire $J = 0$ [77]. Il est situé à environ 42 THz au delà de la limite d'ionisation, il peut donc perturber les états de n élevés. Dans [70], les auteurs n'ont pas jugé nécessaire de l'ajouter à leur modèle. Ceci est dû au fait qu'avec leur incertitude expérimentale, les perturbations liées à cet état n'étaient pas visibles, ou imputées au bruit de mesure. Dans notre cas, la précision sur les valeurs mesurées pour les états n élevés est telle que l'ajout de cette voie a fortement amélioré l'ajustement de notre modèle. À notre connaissance, c'est la première fois qu'il est mis en évidence la nécessité d'ajouter un état perturbateur au delà de la limite d'ionisation. Les paramètres optimaux du modèle MQDT, *i.e.* les défauts quantiques propres μ_α et les angles de rotation $\theta_{\tilde{\alpha}\alpha}$ sont donnés dans le tableau 3.2. Dans notre modèle, la matrice de rotation V est factorisée de la sorte⁸ :

$$V = R_{12}(\theta_{12})R_{13}(\theta_{13})R_{14}(\theta_{14})R_{24}(\theta_{24})R_{25}(\theta_{25})R_{16}(\theta_{16}) \quad (3.34)$$

où $R_{\tilde{\alpha}\alpha}(\theta_{\tilde{\alpha}\alpha})$ désigne la matrice de rotation d'angle $\theta_{\tilde{\alpha}\alpha}$. La matrice $U_{i\alpha}$ s'obtient avec la relation (3.11) à partir des matrices de rotation V et des matrices de rotation $\bar{U}_{i\tilde{\alpha}}$ entre la base i et la base $\tilde{\alpha}$. En l'occurrence, seules les voies 2 et 5 ont une rotation entre elles :

$$\bar{U}_{25} = \begin{pmatrix} -\sqrt{2/3} & \sqrt{1/3} \\ \sqrt{1/3} & \sqrt{2/3} \end{pmatrix} \quad (3.35)$$

Sur la figure 3.9(a), on peut constater un excellent accord entre le modèle théorique et les mesures expérimentales des niveaux Rydberg. Sur la figure 3.9(b), on remarque

8. L'ordre des rotations doit absolument être respecté, un ordre des rotations différent donne un modèle MQDT différent

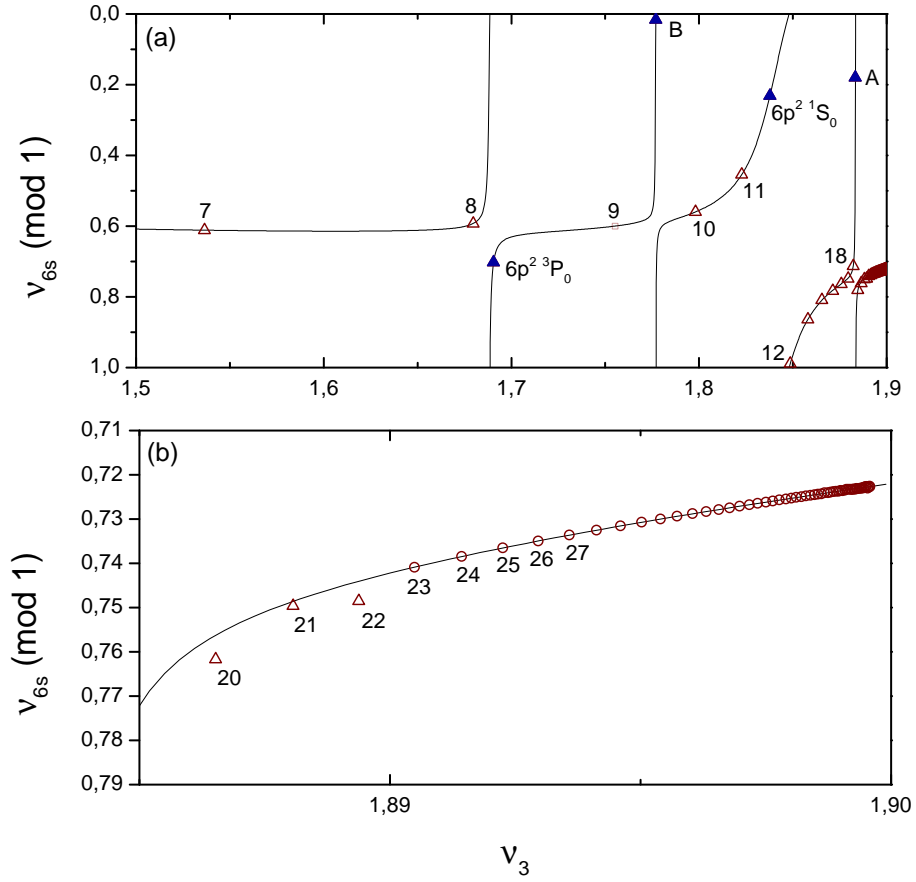


FIGURE 3.9 – Graphe de Lu Fano pour la série $6sns - {}^1S_0$. La figure (b) est un zoom de la figure (a) sur les niveaux Rydberg $n \geq 20$. Cercles vides rouges : points expérimentaux obtenus dans cette thèse. Triangles vides rouges : données de [70]. Triangle pleins bleus : perturbateurs (données de [70]). Traits pleins : modèle MQDT. Les nombres à côté des points correspondent au nombre quantique n pour la voie Rydberg. Le niveau $n = 9$ (carré rouge vide) n'a jamais été mesuré expérimentalement, ce point est placé au niveau de la valeur trouvée par le modèle.

Voie	1	2	3	4	5	6
$ i\rangle$	$6s_{1/2}ns_{1/2}$	$6p_{3/2}np_{3/2}$	$4f^{13}5d6s6p$ A	$4f^{13}5d6s6p$ B	$6p_{1/2}np_{1/2}$	$4f^{13}5d6s6p$ C
I_i (THz)	1512.2452048	2423.3840261	2517.2883175	2517.2883175	2323.5408461	2517.2883175
I_i (cm^{-1})	50443.07034	80835.390	83967.700	83967.700	77504.980	83967.700
$ \Psi_\alpha\rangle$	$6sns - {}^1S_0$	$6pnp - {}^1S_0$	A	B	$6pnp - {}^3P_0$	C
$\mu_\alpha^{(0)}$	0.35323434	0.1196387	0.20454437	0.29394394	0.25633645	0.14798851
$\mu_\alpha^{(1)}$	0.29767588					
$\theta_{\bar{\alpha}\alpha}$	$\theta_{12} = 0.29448285$	$\theta_{13} = -0.12627488$	$\theta_{14} = 0.14354695$	$\theta_{24} = 0.0846653$	$\theta_{25} = 0.14354695$	$\theta_{16} = 0.16677832$

TABLE 3.2 – Paramètres MQDT optimaux pour la série de Rydberg $6sns - {}^1S_0$.

la nette amélioration de la précision de mesure en comparant le bruit de nos mesures à $n > 23$ à celui des mesures $n < 23$ effectuées dans les années 1980. On remarque aussi qu'à cette échelle, le modèle et nos mesures sont toujours parfaitement en accord. En se restreignant à nos données spectroscopiques de $n = 23$ à $n = 80$, on calcule un écart-type des niveaux d'énergie théoriques aux niveaux expérimentaux de 2.47 MHz, compatible avec l'incertitude expérimentale. Ces mesures confirment la validité de la théorie MQDT pour la détermination des niveaux de Rydberg ($n > 25$) avec une précision de l'ordre du MHz.

Parmi les paramètres ajustables de notre modèle MQDT, nous avons inclus la limite d'ionisation I_{6s} de la configuration fondamentale du cœur ionique. Celle-ci avait été auparavant déterminée grâce à l'analyse MQDT de Aymar et al. [70] avec une précision à 3 GHz. Avec notre nouvelle spectroscopie de haute précision, la limite d'ionisation est maintenant ajustée par le modèle à $I_{6s} = 1512.2452049(70)$ THz (pour les spectroscopistes : $I_{6s} = 50443.07034(25)$ cm⁻¹).

Analyse des séries $nd - {}^1,3D_2$

Pour les séries $6snd - {}^1D_2$ et 3D_2 , nous avons aussi utilisé comme point de départ l'analyse MQDT réalisée par Aymar *et al.* dans [70]. Nous rappelons ici que ces deux séries sont analysées dans un même modèle dans la mesure où elles peuvent se coupler entre elles (c'est l'effet d'*intercombinaison*). Aux deux séries Rydberg, trois voies de perturbation sont ajoutées : les deux premières correspondent à des configurations électroniques $4f^{13}5d6snp$ et $6p^2(-{}^1D_2)$. Les états perturbateurs correspondants sont situés respectivement entre les niveaux $n = 8$ et $n = 9$ pour le premier et entre $n = 10$ et $n = 11$ pour le second. Le troisième perturbateur est lui situé plus haut en énergie : entre $n = 26$ et $n = 27$. Il correspond, lui aussi, à une configuration du cœur ionique $4f^{13}5d6snp$. Celui-ci est donc dans la zone accessible par notre laser et nous l'avons mesuré. Nous avons constaté que sa détection par auto-ionisation est difficile. Ceci est dû au fait que, par définition, cet état propre contient une grande part de la configuration du cœur ionique perturbatrice qui n'est pas résonante avec l'excitation du cœur $6s_{1/2} \rightarrow 6p_{1/2}$ que nous appliquons pour auto-ioniser. Il est probable qu'une part importante du signal obtenu pour cet état provienne d'ionisations par collisions de Penning⁹.

Les résultats obtenus sont tracés sous forme de graphe de Lu-Fano (figure 3.10). On peut constater un très bon accord entre modèle MQDT et valeurs expérimentales. Sur les états que nous avons mesurés, l'écart-type entre énergies expérimentales et énergie du modèle MQDT est ici calculé à 2.41 MHz pour la série singulet et 2.37 MHz pour la série triplet ce qui est remarquablement bon. La valeur de l'énergie d'ionisation est ajustée à $I_{6s} = 1512.2452055(70)$ THz ($I_{6s} = 50443.07037(25)$ cm⁻¹). Celle-ci est en excellent accord avec celle ajustée pour la série $6sns$, confirmant la cohérence globale de nos mesures. Les paramètres du modèle MQDT optimaux, *i.e.* les défauts quantiques propres μ_α et les angles de rotations $\theta_{\tilde{\alpha}\alpha}$ sont donnés dans le tableau 3.3. La matrice de rotation V est factorisée de la sorte :

$$V = R_{13}(\theta_{13})R_{14}(\theta_{14})R_{24}(\theta_{24})R_{15}(\theta_{15})R_{25}(\theta_{25}) \quad (3.36)$$

où $R_{\tilde{\alpha}\alpha}(\theta_{\tilde{\alpha}\alpha})$ désigne la matrice de rotation d'angle $\theta_{\tilde{\alpha}\alpha}$. La matrice $U_{i\alpha}$ s'obtient grâce à la relation (3.11) à partir de V et des matrices de rotations $U_{i\tilde{\alpha}}$ entre la base i et la base $\tilde{\alpha}$. En l'occurrence seules les voies 1 et 2 ont une rotation :

$$U_{12} = \begin{pmatrix} -\sqrt{3/5} & \sqrt{2/5} \\ \sqrt{2/5} & \sqrt{3/5} \end{pmatrix} \quad (3.37)$$

9. Collisions ionisantes entre atomes de Rydberg de type $\text{Yb}(nl) + \text{Yb}(nl) \rightarrow \text{Yb}^+(6s) + \text{Yb}(n'l')$

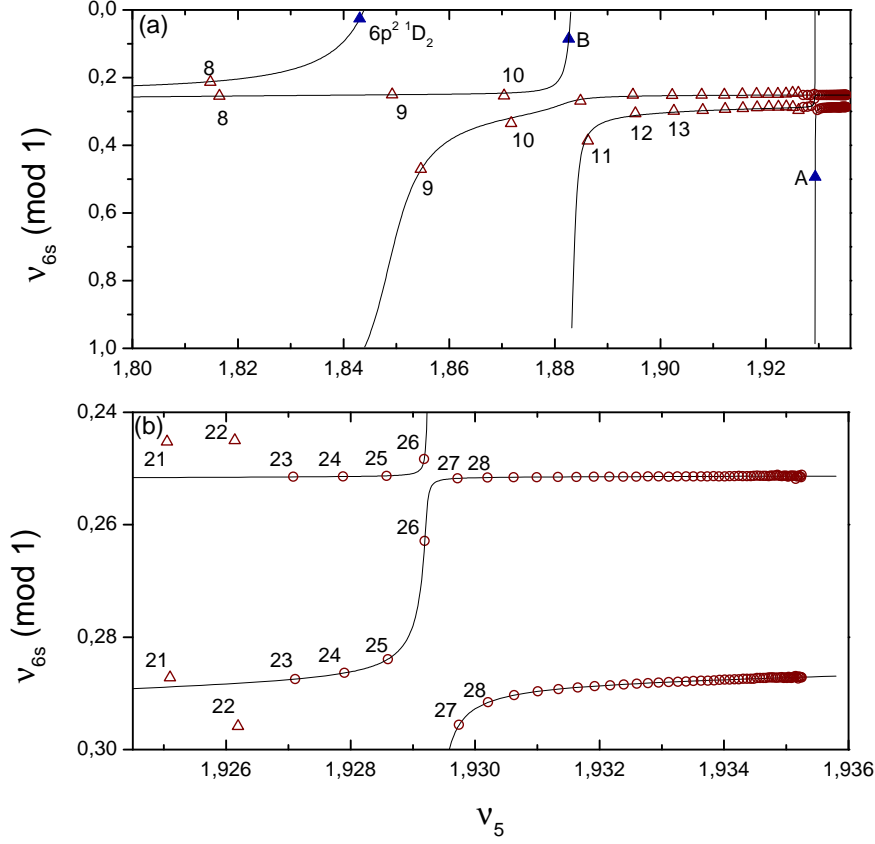


FIGURE 3.10 – Graphe de Lu Fano pour des séries $6snd - {}^1D_2$ et 3D_2 . La figure (b) est un zoom de la figure (a) sur les niveaux Rydberg $n > 20$. Cercles vides rouges : points expérimentaux obtenus dans cette thèse. Triangles vides rouges : données de [70]. Triangle pleins bleus : perturbateurs. Traits pleins : modèle MQDT. Les nombres à côté des points correspondent aux nombres quantiques n pour les voies Rydberg.

Voie	1	2	3	4	5
$ i\rangle$	$6s_{1/2}nd_{5/2}$	$6s_{1/2}nd_{3/2}$	$4f^{13}5d6snp$ A	$4f^{13}5d6snp$ B	$6pnp$
I_i (THz)	1512.2452055	1512.2452055	2517.2883175	2517.2883175	2390.1058641
I_i (cm^{-1})	50443.070375	50443.070375	83967.700	83967.700	79725.350
$ \Psi_\alpha\rangle$	$6snd - {}^1D_2$	$6pnd - {}^3D_2$	A	B	$6p^2 - {}^1D_2$
$\mu_\alpha^{(0)}$	0.73003131	0.75180935	0.19612041	0.23373112	0.15289923
$\mu_\alpha^{(1)}$	9.044×10^{-6}	0.062270711			
$\theta_{\hat{\alpha}\alpha}$	$\theta_{13} = -0.00522496$	$\theta_{14} = 0.039102698$	$\theta_{24} = -0.0056705800$	$\theta_{15} = 0.10798874$	$\theta_{25} = 0.068782035$

TABLE 3.3 – Paramètres MQDT pour l'étude des séries de Rydberg $6snd - {}^1D_2$ et 3D_2 . L'ordre des rotations est donné par la relation (3.36).

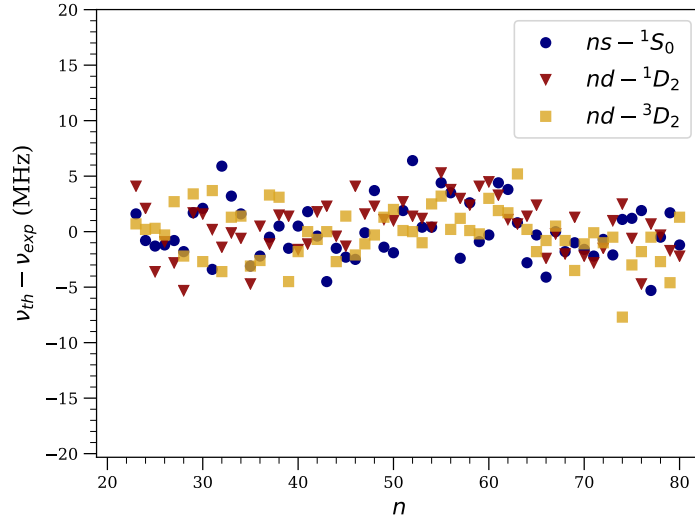


FIGURE 3.11 – Comparaison entre niveaux d'énergie ajustés par le modèle MQDT et niveaux d'énergie expérimentaux pour les trois séries analysées.

Bilan de l'analyse MQDT

Grâce à cette étude des séries $6sns - 1S_0$ et $6snd - 1,3D_2$, nous confirmons d'une part la qualité de nos mesures mais aussi le bon fonctionnement de l'analyse MQDT. Sur la figure 3.11, nous avons tracé la différence entre les fréquences mesurées et le modèle MQDT ajusté pour les trois séries Rydberg. L'écart-type de cette différence est très faible pour les trois séries (≈ 2.5 MHz!) ce qui confirme une très bonne reproductibilité de nos mesures. D'autre part, cela confirme aussi la validité de la théorie MQDT pour la détermination des énergies Rydberg à l'échelle du MHz. Notons que la théorie MQDT a déjà été confirmée à ce niveau de précision sur les niveaux Rydberg de gaz rares xénon [78] et krypton [79].

3.3 Spectroscopie micro-onde des séries $6snp$ et $6snf$

Les séries $6snp$ et $6pnf$ peuvent être mesurées optiquement grâce à la deuxième voie d'excitation passant par les niveaux $6s6p-^3P_1$ et $6s6d-^3D_2$. Cela étant, nous ne disposons pas encore du laser permettant la transition $6s6p-^3P_1 \rightarrow 6s6d-^3D_2$. Nous avons donc décidé de mesurer l'énergie des états $6snp$ et $6snf$ par micro-onde à partir des états $6sns$ et $6snd$. L'inconvénient de la spectroscopie micro-onde est que la plage de fréquences accessible limite la plage d'états que l'on peut atteindre. Nous nous sommes donc restreints aux états $n > 40$. Une analyse MQDT préliminaire de ces séries a été effectuée en combinant nos données et les données pour les états $n < 40$ obtenus par Aymar *et al.* dans [73]. Cette analyse sera présentée à la fin de cette section.

3.3.1 Dispositif expérimental micro-onde

Les états $6snp$ et $6snf$ sont accessibles par transfert micro-onde à un photon à partir des états $6sns$ et $6snd$. Le dispositif d'excitation optique de ces derniers a été présenté dans la dernière section, nous détaillerons donc uniquement la partie du dispositif consacrée à l'excitation micro-onde (figure 3.12).

Le système d'excitation micro-onde est composé d'un synthétiseur HP¹⁰, pouvant générer une onde de 1 GHz à 20 GHz et avec une puissance allant jusqu'à 10 dBm. Celle-ci est envoyée dans un module¹¹ pour être amplifiée et doublée en fréquence. Ce module

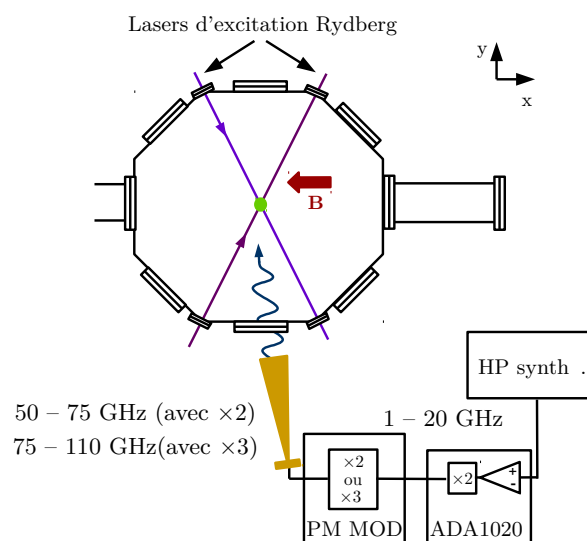


FIGURE 3.12 – Dispositif pour la spectroscopie micro-onde. L'excitation Rydberg des états $6sns$ et $6snd$ est réalisée optiquement. On transfère grâce à un dispositif micro-onde (bas de la figure) les atomes dans les états $6snp$ et $6snf$ accessibles. Le dispositif comporte un synthétiseur, un ampli/doubleur et un tripleur (ou un autre doubleur) pour atteindre les fréquences voulues. Un faible champ magnétique (≈ 1 Gauss) est appliqué pour séparer les sous-niveaux Zeeman des états excités.

10. HP 83731A/32A

11. Marki-Microwave ADA1020

accepte en entrée des fréquences allant de 10 GHz à 20 GHz, il délivre donc en sortie des fréquences allant de 20 GHz à 40 GHz. À la suite de ce module, nous envoyons la micro-onde, soit dans un module doubleur de fréquence¹², soit dans un module tripleur de fréquence¹³. Avec ce dispositif, on peut générer, au final, des fréquences comprises entre 50 GHz et 110 GHz. Après le dernier module, une antenne permet de diriger l'onde électromagnétique dans la direction du nuage atomique. La séquence temporelle typique est représentée sur la figure 3.14. Notons qu'on a choisi une durée d'excitation relativement élevée $5 \mu s$ de manière à ce que la largeur spectrale micro-onde soit de l'ordre de 200 kHz (limitée par transformée de Fourier).

Pour détecter un état excité par micro-onde, il faut pouvoir distinguer le signal correspondant à l'état excité par micro-onde de celui correspondant à l'état initial. Notre technique de détection, l'ionisation sélective en champ (voir sous-section 2.2.2) permet cette distinction. En effet, celle-ci permet la séparation temporelle et donc la distinction des signaux correspondant aux deux états d'énergie différente. Par des fenêtres d'intégration, on peut alors compter la population dans les deux états séparément (voir figure 3.13).

3.3.2 Analyse du signal et des spectres

Procédure d'analyse des signaux

Le laser d'excitation Rydberg (TiSa) est asservi en permanence sur le niveau de départ $6sns$ ou $6snd$. Le générateur micro-onde est programmé, et à chaque fréquence consigne, on prend 5 points de moyenne. À chaque point, on enregistre l'intégrale I_f du signal de

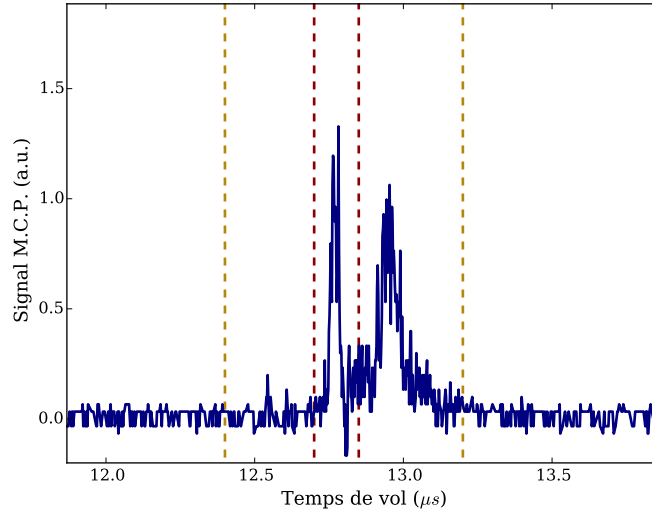


FIGURE 3.13 – Signal de temps de vol à résonance entre les états $54s - 1S_0$ et $55p - 1P_1$. La zone entre les lignes pointillées rouges correspond à la zone d'intégration pour le signal d'atomes dans l'état de Rydberg final I_f . La zone entre les lignes pointillées jaunes correspond à la zone d'intégration pour le signal d'atomes de Rydberg total I_t

12. Pacific Millimeter MODV2

13. Pacific Millimeter MODW3

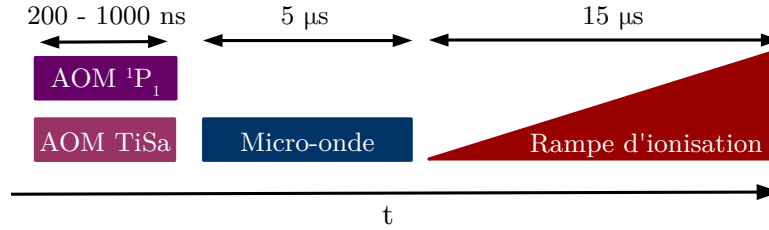


FIGURE 3.14 – Schéma de la séquence temporelle pour la spectroscopie micro-onde.

temps de vol sur la zone temporelle correspondant aux atomes dans l'état final ainsi que l'intégrale totale du signal I_t (voir figure 3.13). Le signal que l'on veut mesurer correspond au pourcentage d'atomes transférés, il est donné par :

$$S_t = \frac{I_f}{I_t} \quad (3.38)$$

Spectroscopie préliminaire

En premier lieu, nous avons fait des spectres larges et avec une forte puissance micro-onde. À partir des états 1S_0 , on distingue facilement les états 1P_1 . Ceux-ci ont des pics de résonance élargis par saturation et se situent à des énergies compatibles avec les niveaux mesurés par [73]. On distingue aussi de nombreux pics plus fins. Ceux-ci peuvent correspondre à des transitions normalement interdites par les règles de sélection en couplage LS mais autorisées par intercombinaison. Nous avons ainsi pu identifier le niveau 3P_1 . Sa position a été confirmée par les valeurs disponibles dans [73] et d'autre part, grâce à des mesures de son facteur de Landé (voir sous-section suivante). Les autres pics plus fins peuvent correspondre à des transitions à deux photons, ou encore des transitions vers les niveaux $^{3,1}P_1$ mais avec des harmoniques différentes.

À partir des états 1D_2 (voir figure 3.15), les pics sont encore plus nombreux. En effet, en plus des états 1P_1 et 3P_1 , il est a priori possible d'exciter les états 1F_3 et 3F_3 . Grâce aux données de [72, 73], nous savons que ces états ont des défauts quantiques de 1.25 (pour 1F_3) et 1.05 (pour 3F_3) à $n = 30$. Cependant, aux énergies correspondant à ces défauts quantiques, on distingue de nombreux pics. Pour identifier de manière sûre ces états, nous avons réalisé des mesures des facteurs de Landé. Notons que l'analyse exhaustive de tous les pics serait difficile à cause de la présence des transitions correspondant aux différentes harmoniques présentes. Pour l'identification des états par mesure du facteur de Landé, nous avons en général restreint notre analyse aux régions où l'état est attendu.

À partir des états 3D_2 , il est possible d'exciter efficacement les états 3P_1 , 3P_2 , 3F_2 et 3F_3 . On connaît déjà les positions des états 3P_1 et 3F_3 grâce aux mesures à partir de 1S_0 et 1D_2 . Les positions des états 3P_2 ont été mesurées dans [73] jusqu'à $n = 80$, il sera donc facile de trouver cet état et de le confirmer par mesure de facteur de Landé. En revanche, pour les états 3F_2 , aucune mesure n'est disponible.

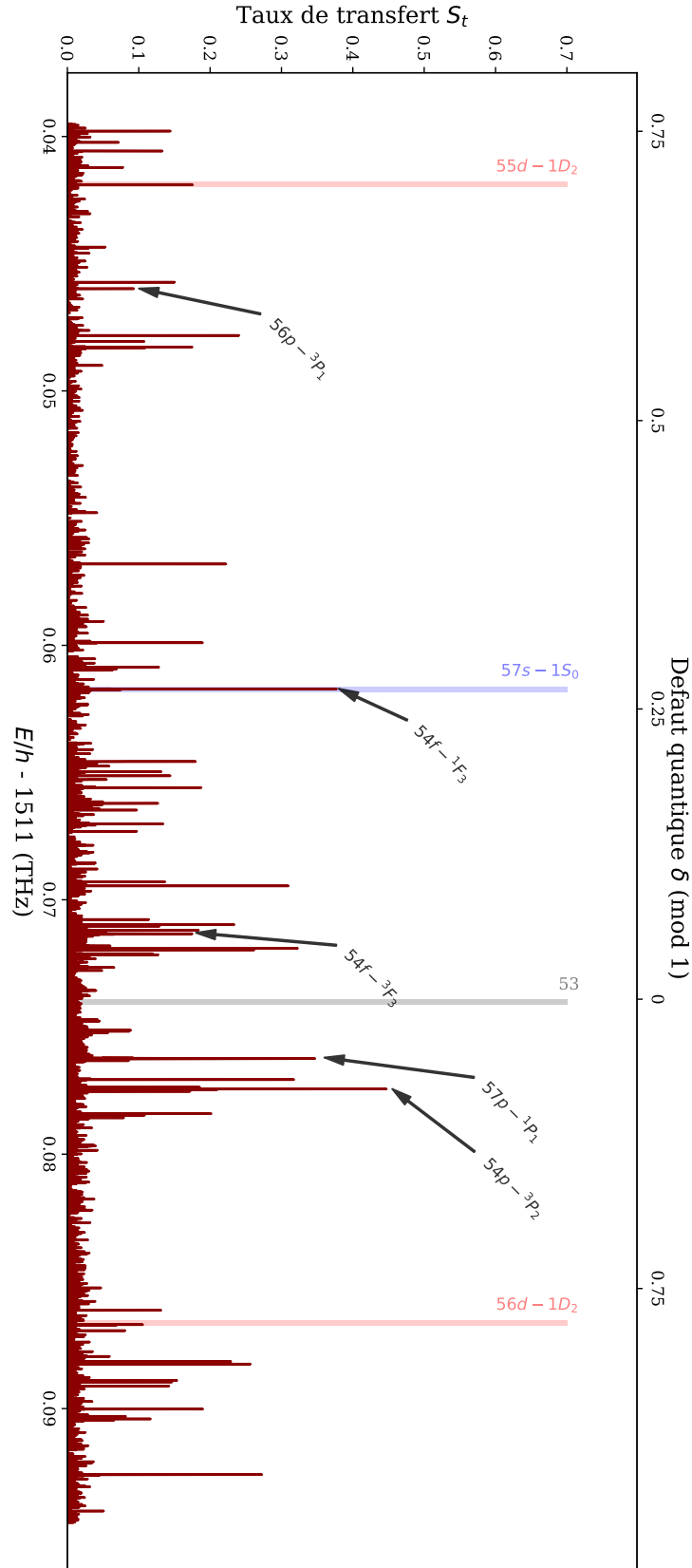


FIGURE 3.15 – Spectroscopie micro-onde large à partir de l'état $54d - {}^1D_2$. La courbe correspond au taux de transfert (equation (3.38)) en fonction de l'énergie totale. Les barres transparentes sont données comme repères, elles correspondent aux états $6sns - {}^1S_0$ (bleu) et $6snd - {}^1D_2$ (rouge) et aux états de la multiplicité (gris).

3.3.3 Identification des états par mesure du facteur de Landé

Le facteur de Landé

Le facteur de Landé g_L caractérise le déplacement en énergie ΔE d'un état, causé par un champ magnétique B , tel que $\Delta E = mg_L \mu_B B$ où μ_B est le magnéton de Bohr et m est le nombre quantique magnétique de l'état atomique considéré. Pour un état atomique $|L, S, J\rangle$ caractérisé par les nombres quantiques J , L et S , g_L est donné par :

$$g_L \approx 1 + \frac{J(J+1) - L(L+1) + S(S+1)}{2J(J+1)} \quad (3.39)$$

Sa mesure peut donc servir à identifier un état, puisqu'il dépend des nombres quantiques de celui-ci. Comme on peut le voir sur la table 3.4, les facteurs de Landé sont tous égaux à 1 pour les états singulets tandis qu'ils prennent des valeurs spécifiques pour les états triplets.

g_L	$S = 0$	$S = 1$		
	$J = L$	$J = L - 1$	$J = L$	$J = L + 1$
$L = 0$	•	•	•	2
$L = 1$	1	•	1.50	1.50
$L = 2$	1	0.50	1.17	1.33
$L = 3$	1	0.67	1.08	1.25
$L = 4$	1	0.75	1.05	1.20

TABLE 3.4 – Facteurs de Landé des états s , p , d , f et g

Dispositif

Pour mesurer les facteurs de Landé g_L , il faut réaliser l'excitation micro-onde sous champ magnétique. Ensuite, en mesurant l'écart de fréquence $\Delta\nu$ entre les pics $m_J = -1$ et $m_J = +1$, on remonte facilement à g_L . En pratique, étant donnée la difficulté à déterminer le champ magnétique appliqué, on mesure d'abord l'écart de fréquence $\Delta\nu^{ref}$ sur les niveaux 1P_1 . Pour ces états, on a par définition $g_L \equiv 1$. Ensuite, en divisant les écarts de fréquence $\Delta\nu$ pour les niveaux inconnus par l'écart de référence $\Delta\nu^{ref}$, on accède à leurs facteurs de Landé g_L .

Un champ magnétique de l'ordre de 1 Gauss est appliqué sur les atomes grâce à la poussée du laser de ralentissement Zeeman. En effet, par pression de radiation, le faisceau déplace la zone d'équilibre du nuage en dehors de la zone de champ nul où se situe le centre du piège magnéto-optique. L'état de Rydberg initial est excité avec une polarisation linéaire de manière à exciter majoritairement le sous-niveau Zeeman $m_{J_i} = 0$. L'antenne micro-onde est orientée de manière à ce que toutes les polarisations soient présentes (σ_+ , σ_- et π) et la puissance est réglée de manière à ne pas élargir les résonances. Après chaque mesure, les spectres sont analysés avec un ajustement à trois gaussiennes (une par sous-niveaux Zeeman m_{J_f} de l'état final) pour déduire l'écart $\Delta\nu$.

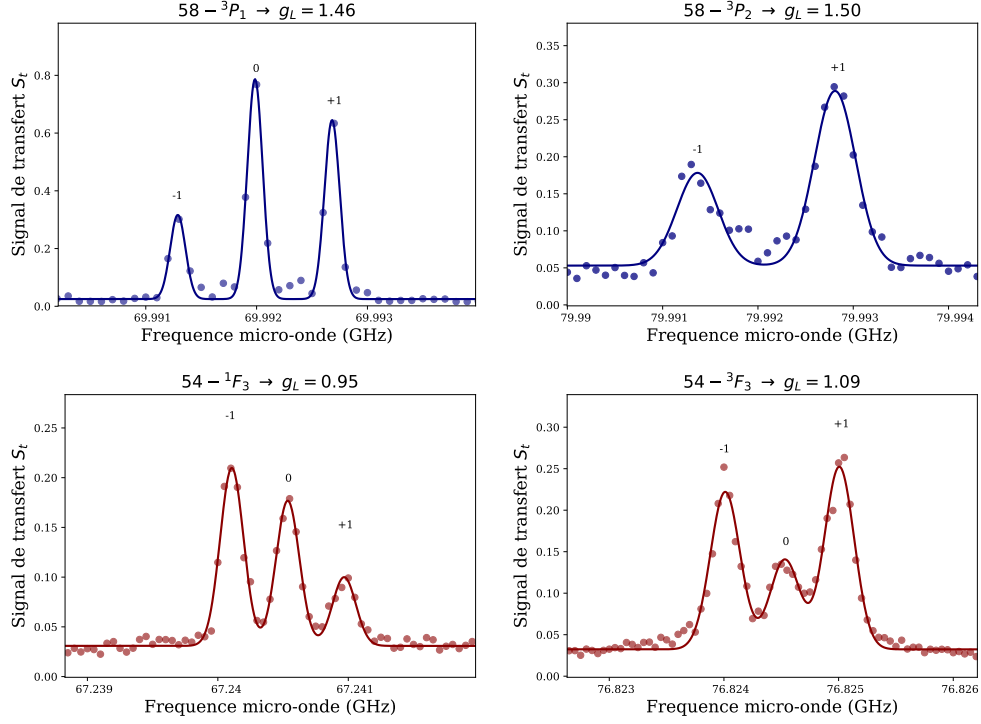


FIGURE 3.16 – Spectres micro-onde pour la mesure du facteur de Landé des états inconnus. L’excitation micro-onde est réalisée sous un champ magnétique ≈ 1 Gauss et avec une polarisation quelconque. Pour chaque spectre nous avons mesuré au préalable l’écart des sous-niveaux Zeeman $\Delta\nu^{ref}$ des états 1P_1 . En comparant l’écart mesuré pour l’état inconnu $\Delta\nu$ et la référence, on peut en déduire le facteur de Landé pour l’état inconnu $g_L = \frac{\Delta\nu}{\Delta\nu^{ref}}$.

Résultats

L’erreur de mesure du facteur de Landé est donnée par l’incertitude statistique sur la détermination de l’écart de fréquence entre les deux sous-niveaux Zeeman. Les ajustements nous donnent une incertitude typique de 20 kHz ce qui donne une incertitude sur la mesure du facteur de Landé à ≈ 0.01 . Sur la figure 3.16 sont représentés les spectres obtenus pour les quatre états que nous avons identifiés. Pour l’état 3P_1 , on mesure $g_L = 1.46$, ce qui est relativement proche de la prédiction théorique à 1.50. L’écart est probablement dû aux effets d’intercombinaison de cet état avec le singulet 1P_1 qui ont pour effet de réduire g_L . Il est aussi probable qu’une part de l’écart soit due à l’erreur expérimentale. Pour l’état 3P_2 , on mesure $g_L = 1.50$, ce qui est identique à la prédiction théorique. Notons que sur ce spectre, on n’excite pas le sous-niveau Zeeman $m_{J_f} = 0$. Ceci est dû au fait que le coefficient de Clebsch-Gordan d’une transition d’un état de moment cinétique total J_i de projection $m_{J_i} = 0$ vers un état de même moment cinétique total $J_f = J_i$ de projection $m_{J_f} = 0$ est strictement nul. Ceci confirme que cet état est 3P_2 . À partir des états 1D_2 , nous avons mesuré les facteurs de Landé pour les états qui se situent autour de la zone de défaut quantique 0.25 (mod 1). Parmi ceux-ci, nous avons identifié l’état 1F_3 : sa force d’oscillateur avec l’état 1D_2 apparaît comme la plus grande dans cette zone et d’autre part son facteur de Landé est mesuré à 0.95. L’écart avec la prédiction théorique est très probablement dû aux erreurs de mesures. Enfin, parmi les états qui correspondent à des états de défauts quantiques autour de 0.05 (mod 1), nous avons pu identifier l’état 3F_3 ,

avec un facteur de Landé mesuré à 1.09 – très proche de la prédiction théorique. Nous n'avons malheureusement pas pu identifier l'état 3F_2 .

3.3.4 Résultats et analyses MQDT

Nous avons mesuré les niveaux d'énergies des séries $6snp - {}^1P_1$ et $6snp - {}^3P_1$ de $n = 43$ à $n = 77$. Les énergies absolues des états sont obtenues en additionnant la valeur de la fréquence micro-onde à résonance et la valeur *mesurée* optiquement de l'énergie de l'état initial. Les valeurs des énergies sont rassemblées dans les tableaux 12 et 13 en annexe. Pour l'analyse de ces deux séries, on a inclus les états de n faibles avec les valeurs expérimentales issues de [73] qui vont nous aider à ajuster le modèle MQDT. Les résultats optimaux pour les paramètres MQDT seront présentés dans le paragraphe suivant. Nous avons aussi mesuré les niveaux d'énergie de la série $6snp - {}^3P_2$ de $n = 43$ à $n = 76$. Pour cette série, aucun perturbateur n'a d'influence à $n > 20$ [72, 73], c'est la raison pour laquelle une analyse MQDT n'est pas strictement nécessaire. Les valeurs mesurées sont rassemblées dans le tableau 14 en annexe. Pour finir, nous avons mesuré les niveaux de la série $6snf - {}^1F_3$ de $n = 47$ à $n = 74$ et les niveaux de la série $6snf - {}^3F_3$ de $n = 39$ à $n = 42$ puis de $n = 50$ à $n = 75$. L'analyse MQDT de ces deux séries sera présentée dans le dernier paragraphe et les valeurs d'énergie de ces niveaux sont rassemblées dans les tableaux 15 et 16 situés en annexe.

Discussion sur l'incertitude des mesures micro-onde

Pour réaliser l'analyse MQDT des séries obtenues par mesure micro-onde nous avons fait le choix d'ajouter aux fréquences micro-onde les valeurs *mesurées* des séries $6sns$ et $6snd$. Ceci implique que le bruit de mesure des énergies absolues des états finaux est dominé par le bruit de mesure des séries $6sns$ et $6snd$. En effet, pour la mesure de la transition micro-onde, où le bruit maximal devrait être dû à l'effet Stark résiduel, l'incertitude sera de l'ordre de 500 kHz ce qui est négligeable devant l'incertitude des mesures optiques ≈ 7 MHz. Pour illustrer ce point, j'ai tracé sur la figure 3.17 l'écart entre énergie finale expérimentale et énergie par le modèle MQDT pour la série $6snf - {}^1F_3$ en utilisant les valeurs mesurées (en carré bleu) et MQDT (en rond rouge) pour l'état initial $6snd - {}^1D_2$. On voit clairement que les mesures utilisant le modèle MQDT pour l'état initial sont beaucoup moins bruitées que celles utilisant les mesures optiques. L'utilisation des valeurs du modèle pour l'état initial nous affranchit du bruit optique, ce qui permet ainsi de voir directement le bruit micro-onde. On constate que celui-ci est beaucoup plus faible (≈ 500 kHz) que le bruit optique. Ceci confirme une bonne répétabilité de nos mesures micro-ondes, répétabilité qui est compatible avec notre incertitude expérimentale.

Mesure et analyse des séries $6snp - {}^{1,3}P_1$

Dans l'article [70], une analyse des séries $6snp - {}^{1,3}P_1$ a été effectuée. Dans celle-ci, les auteurs ont introduit quatre voies de perturbation. Les deux premières correspondent à des états de configuration $4f^{13}5d^26s$, localisés respectivement entre les niveaux $n = 12$ et $n = 13$ (perturbateur *A*) et entre les niveaux $n = 18$ et $n = 19$ (perturbateur *B*). Ces deux perturbateurs ont été observés et ne sont pas contestables, nous les avons donc inclus dans notre modèle. Précisons que, pour cette analyse, les données expérimentales utilisées étaient limitées à $n = 25$ pour les états singulet et $n = 49$ pour les états triplet. Les dérives observées à l'extrémité de chacune des deux séries ont conduit les auteurs à

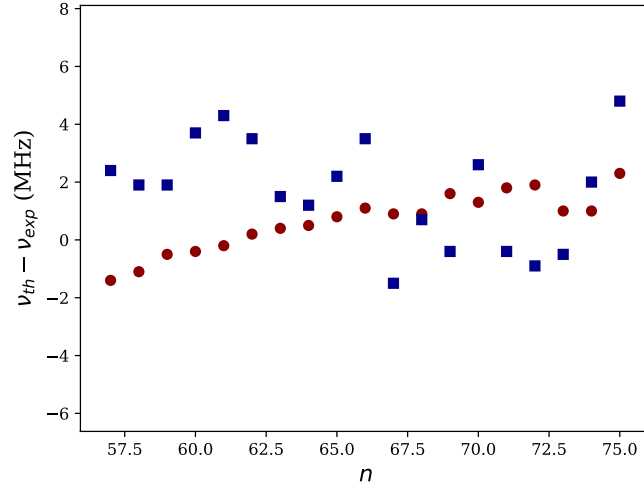


FIGURE 3.17 – Écart de fréquence entre les mesures expérimentales et le modèle MQDT pour la série $6snf - {}^1F_3$ en utilisant les valeurs mesurées (en carré bleu) et du modèle MQDT (rond rouge) pour l'état initial $6snf - {}^1D_2$

introduire deux autres voies de perturbation. La première d'entre elles correspond aussi à un état de configuration $4f^{13}5d^26s$ (perturbateur C) et perturbe très fortement la série $6snp - {}^3P_1$. Cet état est situé autour de $n = 45$, cependant son mélange avec les états de la série est tel, qu'il est impossible de discriminer l'état perturbateur des états de la série Rydberg. Le dernier perturbateur a été introduit pour expliquer la dérive observée des états $6snp - {}^1P_1$. Cependant, une étude ultérieure [73] effectuée sur des valeurs de n plus élevées a montré que cette dérive n'était pas présente. Ceci démontre que ce dernier perturbateur est inexistant ou qu'il ne se couple pas à la série Rydberg.

Pour notre analyse MQDT, nous avons uniquement pris en compte les trois premiers perturbateurs mentionnés A , B et C . Les résultats obtenus sont tracés sous forme de graphe de Lu-Fano (figure 3.18). On remarque un accord relativement bon entre nos données expérimentales et le modèle. Néanmoins, il est clair que le modèle peine à reproduire correctement les valeurs expérimentales entre $n = 20$ et $n = 40$. Ceci nous conduit à penser qu'il manque un perturbateur au modèle et paradoxalement, il est fort probable que celui-ci ne se situe pas dans la zone entre $n = 20$ et $n = 40$. En effet, comme notre incertitude expérimentale pour les grandes valeurs de n est très bonne, le modèle a tendance à privilégier un bon accord sur ces valeurs plutôt que sur les valeurs de n plus faibles où un écart en énergie se ressent moins sur le χ^2 . Ceci implique que le modèle ajuste le couplage et la position du perturbateur B (situé entre $n = 18$ et $n = 19$) de manière à favoriser l'accord avec les niveaux d'énergies de $n > 40$. Il est très probable, qu'une fois de plus, nous avons besoin d'introduire un nouveau perturbateur au modèle. En effet, en rajoutant un perturbateur plus proche des niveaux n élevés, le modèle pourra ajuster le perturbateur B pour favoriser l'accord dans la zone $n = 20$ à $n = 40$ et ajuster le nouveau perturbateur D pour favoriser l'accord des n élevés. Sur le tableau 3.5, sont reportés les paramètres MQDT que nous avons trouvés. L'ordre des rotation est le suivant :

$$V = R_{13}(\theta_{13})R_{14}(\theta_{14})R_{23}(\theta_{23})R_{24}(\theta_{24})R_{25}(\theta_{25}) \quad (3.40)$$

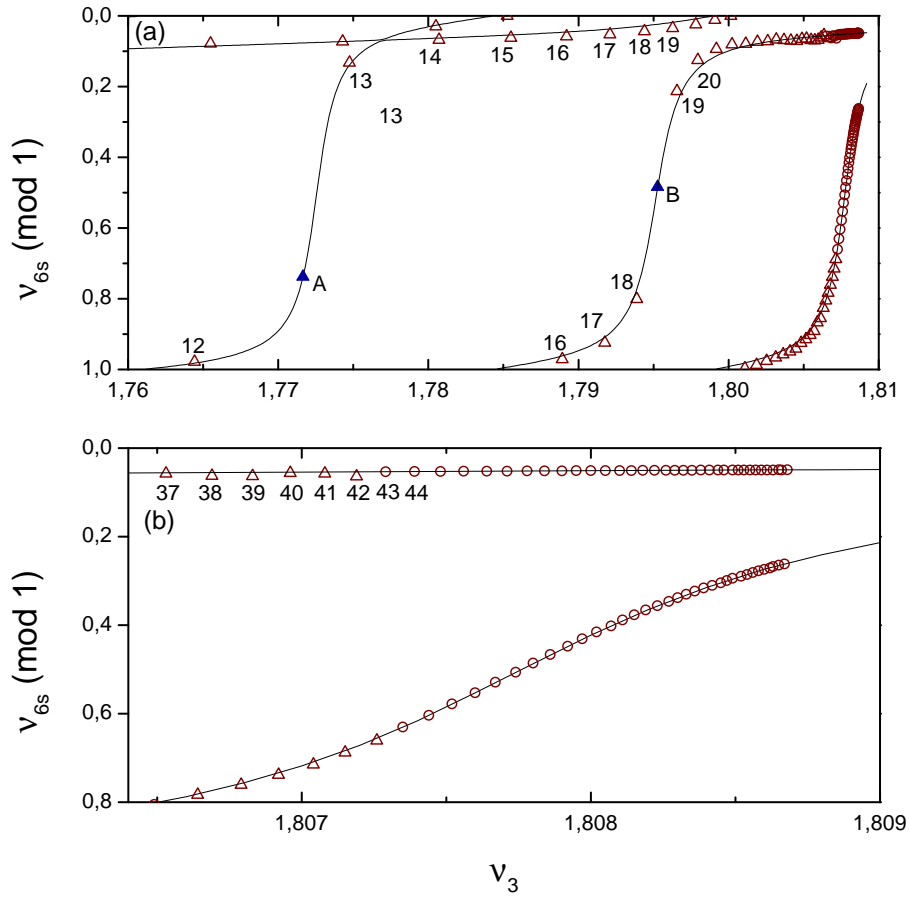


FIGURE 3.18 – Graphe de Lu Fano pour les séries $6snp-{}^{1,3}P_1$. La figure (b) est un zoom de la figure (a) sur les niveaux Rydberg $n \geq 37$. Cercles vides rouges : points expérimentaux obtenus dans cette thèse. Triangles vides rouges : données de [70]. Triangle pleins bleus : perturbateurs. Traits pleins : modèle MQDT. Les nombres à côté des points correspondent aux nombres quantiques n pour les voies Rydberg.

Voie	1	2	3	4	5
$ i\rangle$	$6s_{1/2}np_{3/2}$	$6s_{1/2}np_{1/2}$	$4f^{13}5d6snp$ A	$4f^{13}5d6snp$ B	$4f^{13}5d6snp$ C
I_i (THz)	1512.2451893	1512.2451893	2517.2883175	2517.2883175	2517.2883175
I_i (cm^{-1})	50443.06983	50443.06983	83967.7	83967.7	83967.7
$ \Psi_\alpha\rangle$	$6snp-{}^1P_1$	$6pnp-{}^3P_1$	A	B	C
$\mu_\alpha^{(0)}$	0.96077830	1.0088976	0.22855226	0.2062949	0.19354410
$\mu_\alpha^{(1)}$	3.4414776	-3.6570697			
$\theta_{\bar{\alpha}\alpha}$	$\theta_{14} = -0.05776681$	$\theta_{13} = -0.01518148$	$\theta_{24} = 0.07615890$	$\theta_{25} = 0.09056081$	$\theta_{23} = 0.08174668$

TABLE 3.5 – Paramètres MQDT pour l'étude des séries de Rydberg $6snp-{}^1P_1$ et 3P_1 .

Sur ce tableau, on constate que la limite d'ionisation des voies Rydberg est très différente de celles ajustées avec les séries $6sns$ et $6snd$. Ceci démontre une fois de plus qu'il manque une voie de perturbation. D'autre part, on remarque que le modèle a aussi ajusté des dépendances en énergie du défaut quantique propre $\mu_\alpha^{(1)}$ bien trop élevés et ceci pour arriver à reproduire la dérive des singulets à $n > 40$.

Pour conclure, le modèle obtenu est correct mais n'est pas optimal. À notre avis, l'introduction d'une voie de perturbation au delà de la limite d'ionisation est indispensable. Dans [77], les auteurs ont prédit un état de configuration électronique $4f^{14}5d6s6p$ de caractère majoritairement 1P_1 situé à ≈ 1511.37 THz, c'est à dire seulement quelques centaines de GHz au dessus de la limite d'ionisation. Cependant, l'erreur typique de ce type de calcul peut être de plusieurs centaines de GHz. Selon [70] et [73], cet état est le perturbateur C que nous avons déjà introduit et il est situé en dessous de la limite d'ionisation. Cette explication n'est pas satisfaisante à notre avis dans la mesure où C se couple, de fait, à la série 3P_1 et non pas à la série 1P_1 . C a donc nécessairement un caractère 3P_1 fort. Il y a donc une incohérence et il est probable que C ait été identifié à tort à l'état de configuration $4f^{14}5d6s6p$ précédemment mentionné. Une étude plus approfondie est en cours pour éclaircir ces points.

Mesure et analyse QDT de la série $6snp - ^3P_2$

Aymar *et al.* [73] ont mesuré les états de la série $np - ^3P_2$ à partir de $n = 18$ jusqu'à $n = 80$. Sur cet intervalle, aucun état perturbateur n'a pu être identifié. On note seulement une croissance très lente du défaut quantique avec n . Celle-ci est due, soit à un état loin en dessous de $n = 18$, soit à un état au delà de la limite d'ionisation. Ali *et al.* [72] ont trouvé

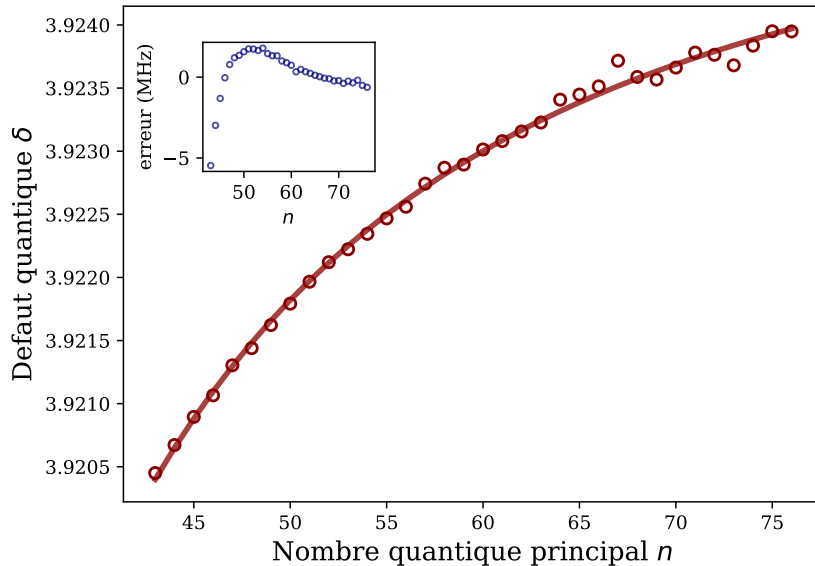


FIGURE 3.19 – Défauts quantiques mesurés pour la série $6snp - ^3P_2$ (cercles vides) et ajustement par la fonction de Ritz (3.41) (trait plein). En insert : erreur du modèle Ritz (en MHz) en prenant les valeurs de fréquence obtenues par la MQDT pour les niveaux initiaux $6snd - ^3D_2$ pour enlever le bruit de la mesure optique.

deux perturbateurs : un relativement fort entre $n = 12$ et $n = 13$ et un plus faible entre $n = 16$ et $n = 17$. Il est bien probable que la lente croissance du défaut quantique soit due à ces deux perturbateurs. Quoiqu'il en soit, leurs influences sur les fonctions d'onde et sur les énergies sont très faibles des états $n > 25$. On va donc se contenter d'ajuster les défauts quantiques avec une formule de Ritz (figure 3.19). Nous nous sommes restreints en l'occurrence à une formule de Ritz à l'ordre 2 :

$$\delta(n) = \delta^{(0)} + \frac{\delta^{(2)}}{(n - \delta^{(0)})^2} \quad \text{avec} \quad \begin{cases} \delta^{(0)} = 3.92545(3) \\ \delta^{(2)} = -7.71(7) \end{cases} \quad (3.41)$$

En premier lieu on remarque que le défaut quantique varie très peu avec n . Pour comparer le modèle Ritz et les mesures micro-onde, on a utilisé les valeurs d'énergie provenant du modèle MQDT pour l'état initial $6snd - {}^3D_2$ (en insert de la figure 3.19). Ceci permet de s'affranchir du bruit optique. On constate que le modèle de Ritz peine à reproduire les valeurs mesurées à mesure qu'on descend en n - et que, par là même, on se rapproche des perturbateurs. Cela étant, l'erreur du modèle à $n = 40$ est encore très faible (≈ 5 MHz). Si l'on se rapproche des perturbateurs, la formule de Ritz va devenir de plus en plus fautive et une analyse MQDT sera indispensable.

Mesure et analyse des séries $6snf - {}^{1,3}F_3$

L'analyse MQDT des séries $6snf - {}^1F_3$ et $6snf - {}^3F_3$ a été réalisée pour la première fois par Aymar *et al.* [73]. Dans ce travail, les mesures des niveaux Rydberg ont été effectuées uniquement à partir de $n = 16$. Une seule voie de perturbation a été introduite dans leur modèle ce qui suffisait pour décrire la série Rydberg dans la zone mesurée. Une étude ultérieure réalisée par Ali *et al.* [72] s'est concentrée sur les états $n < 20$, les auteurs ont trouvé trois autres perturbateurs.

Dans la mesure où notre expérience s'intéresse plutôt aux états $n > 25$, nous sommes partis du modèle de Aymar *et al.* Nous n'avons donc introduit qu'une seule voie de perturbation. Celle-ci correspond à une configuration $4f^{13}5d^26s$ et l'état perturbateur est situé entre les états $n = 23$ et $n = 24$ des séries Rydberg nf . La spectroscopie de [73] s'arrête à $n = 51$ pour la série triplet et $n = 31$ pour la série singulet. Notre spectroscopie reprend à $n = 47$ pour la série singulet et à $n = 50$ pour la série triplet. Nous avons donc un trou dans les données. Néanmoins, nous sommes assez convaincus qu'il n'y a pas de perturbateur dans le trou puisque les deux extrémités se raccordent bien. Au dessus de $n = 50$, la relative constance du défaut quantique des deux séries nous amène à penser qu'il n'y a pas de perturbateurs plus haut en énergie. Sur la figure 3.20 est représenté le diagramme de Lu-Fano. On remarque que l'accord entre données expérimentales et modèle théorique est très bon malgré l'intervalle manquant entre $n = 31$ et $n = 47$. On vérifie bien qu'il n'y a très probablement pas de perturbateur au dessus de $n = 25$. Sur le tableau 3.6 sont reportés les paramètres optimaux du modèle MQDT. La matrice de rotation entre les différentes voies est factorisée ainsi :

$$V = R_{13}(\theta_{13})R_{23}(\theta_{23}) \quad (3.42)$$

On remarque que l'énergie d'ionisation ajustée est compatible avec celle ajustée pour les séries $6sns$ et $6snd$. Cependant, la dépendance en énergie du défaut quantique propre des séries Rydberg $\mu_\alpha^{(1)}$ semble être surestimée par le modèle. Cela est dû au fait que l'on

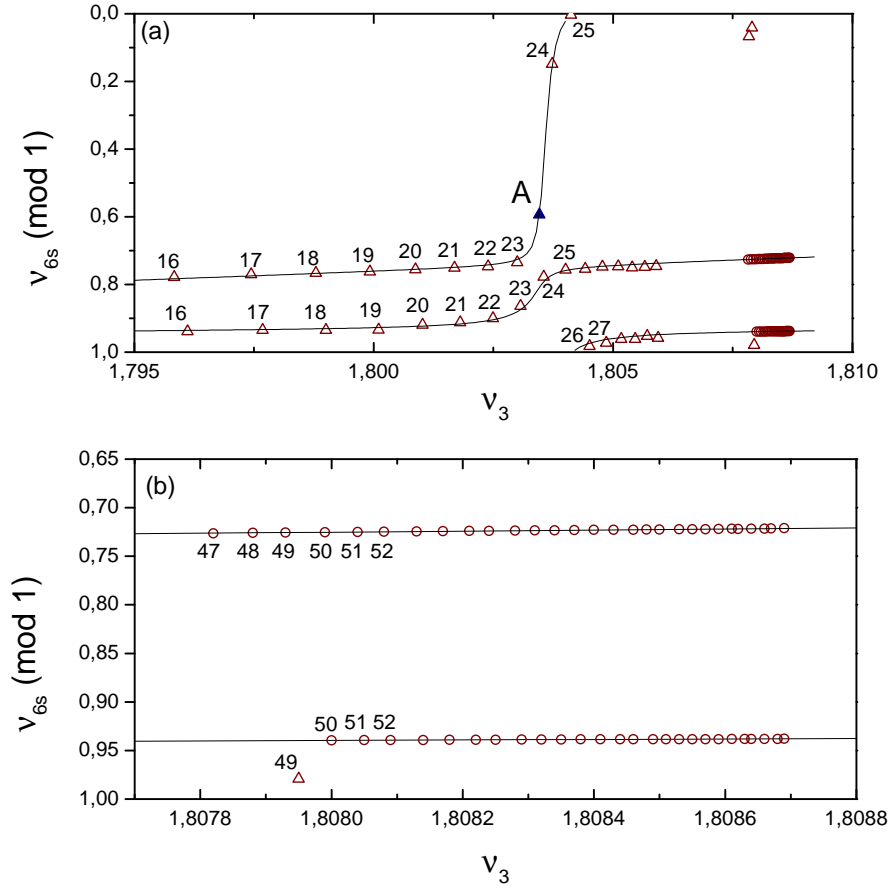


FIGURE 3.20 – Graphe de Lu Fano pour les séries $6snf - 1, 3F_3$. La figure (b) est un zoom de la figure (a) sur les niveaux Rydberg $n \geq 47$. Cercles vides rouges : points expérimentaux obtenus au cours de cette thèse. Triangles vides rouges : données de [70]. Triangle pleins bleus : perturbateurs. Traits pleins : modèle MQDT. Les nombres à côté des points correspondent aux nombres quantiques n pour les voies Rydberg.

Voie	1	2	3
$ i\rangle$	$6s_{1/2}nf_{7/2}$	$6s_{1/2}nf_{5/2}$	$4f^{13}5d^26s A$
I_i (THz)	1512.2452040	1512.2452040	2517.2883175
I_i (cm^{-1})	50443.07032	50443.07032	83967.7
$ \Psi_\alpha\rangle$	$6snp - 1F_3$	$6pnp - 3F_3$	A
$\mu_\alpha^{(0)}$	0.28527326	0.068866490	0.19651536
$\mu_\alpha^{(1)}$	-14.987802	-2.2383575	
$\theta_{\alpha\alpha}$	$\theta_{13} = -0.05776681$	$\theta_{23} = -0.01518148$	

TABLE 3.6 – Paramètres MQDT pour l'étude des séries de Rydberg $6snf - 1F_3$ et $3F_3$.

ne prend pas en compte les perturbateurs dans la zone $n < 20$. En effet, ces perturbateurs ont une influence autour de $n = 16$ et, dans une moindre mesure, au dessus. Le modèle ajuste donc la dépendance en énergie pour coller aux données expérimentales et ce faisant, prendre en compte l'influence de ces perturbateurs lointains. Cependant, cette forte dépendance en énergie n'est pas physiquement correcte. Nous devons donc, à l'avenir, prendre en compte les perturbateurs situés dans la zone $n < 20$.

Pour conclure, notre modèle MQDT est relativement fidèle aux données expérimentales. Cela étant, il nous semble que la grande dépendance en énergie du défaut quantique propre ajustée n'est pas physique. Pour améliorer le modèle nous devons donc ajouter les données spectroscopiques de [72] ainsi que les trois perturbateurs dans l'analyse MQDT. Cette étude est en cours.

Conclusion et perspectives

L'étude de la spectroscopie des états de Rydberg est un prérequis indispensable pour les expériences que nous voulons mener par la suite. Dans ce chapitre, j'ai présenté la théorie du défaut quantique à plusieurs voies (MQDT), théorie qui permet de comprendre la spectroscopie complexe de l'atome d'ytterbium. En effet, celle-ci permet de prendre en compte les perturbations dues aux états de différentes configurations du cœur ionique qui vont s'introduire dans les séries Rydberg. Nous avons développé un programme d'analyse qui prend en entrée les niveaux d'énergie mesurés et qui donne en sortie les paramètres MQDT nécessaires à la description complète d'une série Rydberg.

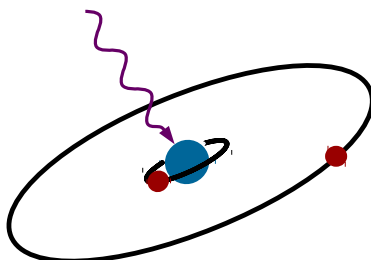
Nous avons mesuré les niveaux d'énergie des séries $6sns - ^1S_0$ et $6snd - ^{1,3}D_2$ en utilisant une excitation optique à partir d'un nuage d'atomes refroidis par laser. L'incertitude atteinte est de l'ordre du MHz : nous avons amélioré la précision de la spectroscopie de ces niveaux de quasiment trois ordres de grandeur. À l'aide de ces nouvelles données, nous avons réalisé une analyse MQDT de ces séries. Le modèle obtenu rend parfaitement compte des dérives des niveaux dues aux perturbateurs. En effet, l'écart-type entre modèle et expérience est d'environ 2.5 MHz, ce qui est très inférieur à l'incertitude expérimentale prévue. On a ainsi pu montrer que la théorie MQDT est valide avec ce niveau de précision sur un atome aussi complexe que l'ytterbium. Ces études feront l'objet d'une première publication. Celle-ci est en cours de rédaction et sera soumise dans quelques semaines.

À partir des niveaux $6sns - ^1S_0$ et $6snd - ^{1,3}D_2$ excités optiquement, et à l'aide d'un dispositif micro-onde, j'ai mesuré les séries $6snp - ^{1,3}P_1$, $6snp - ^3P_2$ et $6snf - ^{1,3}F_3$. Une analyse MQDT a ensuite été réalisée sur ces séries. Encore une fois, l'accord entre modèle et expérience est bon. Une étude plus approfondie de ces séries est cependant désirable pour arriver à un modèle MQDT optimal. Ces études sont encore en cours, elles feront l'objet d'une seconde publication.

L'étape suivante est le calcul des diagrammes Stark et des coefficients d'interaction. En effet, nous avons montré dans le premier chapitre à quel point le champ électrique est un outil indispensable pour la physique des atomes de Rydberg. Pour pouvoir utiliser cet outil, une connaissance de la spectroscopie en champ est indispensable. Ces calculs nécessitent la connaissance des niveaux d'énergies de toutes les séries de moment orbital faible $l \leq 3$. Il faudra donc, au préalable, compléter les séries manquantes. Le laser à 457 nm sera reçu dans les prochains mois. Celui-ci est l'élément indispensable qui nous manquait pour compléter la spectroscopie. La connaissance complète de la spectroscopie sera aussi importante pour les calculs des coefficients d'interaction. Un calcul de ces coefficients pour quelques séries singulets a été effectué par [80] avec les données disponibles en 2012. Celui-ci ne prenait pas en compte les mélanges singulet-triplet ni les mélanges avec les perturbateurs. Notre nouvelle spectroscopie pourrait permettre un calcul beaucoup plus précis de ces coefficients.

Chapitre 4

Manipulations optiques dans l'état de Rydberg : étude de l'excitation du cœur isolé dans l'ytterbium



Sommaire

4.1	L'excitation du cœur isolé	118
4.1.1	Le modèle à électrons indépendants	119
4.1.2	Calcul des déplacements d'énergie de niveaux du cœur ionique dans les états de Rydberg de grand moment orbital	120
4.1.3	Calcul des taux d'auto-ionisation	124
4.2	Étude expérimentale de l'excitation du cœur isolé dans l'ytterbium	127
4.2.1	Dispositif expérimental	127
4.2.2	Création des états de Rydberg de $l > 4$, technique du Stark-Switching	129
4.2.3	Spectre d'auto-ionisation par excitation optique du cœur isolé .	133
4.2.4	Étude de l'auto-ionisation des états de faible moment orbital .	136
4.2.5	Étude de l'auto-ionisation des états de grand moment orbital .	139
4.3	Perspectives : piégeage optique des atomes de Rydberg . . .	146
4.3.1	Force optique et polarisabilité dynamique des lasers	146
4.3.2	Le cas particulier des Rydberg, calcul des longueurs d'onde magiques	147
	Conclusion	151

Dans la section 1.2, j'ai présenté brièvement les propriétés des atomes de Rydberg à deux électrons actifs. Leur attrait principal est la possibilité de réaliser l'excitation du cœur isolé (ICE) grâce à la présence d'un deuxième électron de valence. Cette technique permettrait de manipuler l'atome une fois dans l'état de Rydberg. Par exemple cela rendrait possible l'imagerie des atomes, en utilisant la fluorescence résultant de l'excitation d'une transition du cœur ionique. Lorsque l'atome est doublement excité, il peut néanmoins auto-ioniser et par conséquent induire des pertes et des perturbations dans le nuage, ce que nous voulons à tout prix éviter. L'objectif de ce chapitre est d'étudier la possibilité de se prémunir de l'auto-ionisation en utilisant des états de Rydberg de grand moment orbital $l > 4$.

Dans ce chapitre, je reviendrai tout d'abord sur la technique ICE, en rentrant plus en profondeur dans l'aspect théorique, et notamment dans les calculs des taux d'auto-ionisation de l'ytterbium doublement excité. J'ai mesuré ces taux d'auto-ionisation pour différents états de Rydberg dans le but de vérifier ses lois d'évolution avec le nombre quantique principal n et le nombre quantique orbital l . Ces expériences seront l'objet de la deuxième partie de ce chapitre. Pour finir, je présenterai quelques calculs théoriques concernant la possibilité de piégeage par laser des atomes de Rydberg grâce à la polarisabilité dynamique du cœur ionique.

4.1 L'excitation du cœur isolé

L'excitation du cœur isolé (ICE) est une technique qui consiste à exciter de manière résonante le cœur ionique d'un atome de Rydberg divalent [16]. Dans une certaine mesure, elle requiert une indépendance du cœur par rapport à l'électron Rydberg. Celle-ci est assurée par le fait que cet électron est, la majorité du temps, très loin du cœur et l'influence très peu.

Si l'électron de valence de cœur ionique A^+ est envoyé vers un état très excité $n_1 \approx n_2$, on entre dans le régime des *doubles Rydberg*. Les corrélations entre les deux électrons sont alors très fortes, ce qui a été mis en évidence notamment dans des expériences réalisées à Orsay [21, 36] et à Amsterdam [37]. Ces corrélations peuvent entraîner un échange d'énergie entre les deux électrons et ceci a pour effet d'éjecter l'électron Rydberg : c'est le phénomène d'auto-ionisation.

En revanche, lorsque l'on excite l'électron de cœur vers un état peu énergétique (par exemple $6p_{1/2}$ pour l'ytterbium), le système se comporte comme un atome à électrons indépendants. Les interactions entre électrons de valence sont tout de même présentes mais elles peuvent être traitées comme des petites perturbations. En réduisant ces interactions au minimum, on peut atteindre un régime où l'atome n'auto-ionise plus. Pour ce faire, il faut minimiser la présence de l'électron Rydberg à proximité du cœur : cette condition est, a priori, remplie pour les états de moment orbital l élevé. Des mesures sur l'atome de baryum [17] ont vérifié la stabilité de ces états atomiques par rapport à l'auto-ionisation. On se propose ici de vérifier la faisabilité de l'excitation du cœur isolé non destructive sur l'atome d'ytterbium dans les états de Rydberg de grand moment orbital.

4.1.1 Le modèle à électrons indépendants

L'hamiltonien atomique

Lorsque l'électron de Rydberg est dans un état de moment orbital relativement élevé ($l_2 > 4$), l'hamiltonien de l'atome peut être décomposé en trois parties, correspondant respectivement à l'hamiltonien du cœur ionique indépendant H_1 , l'hamiltonien de l'électron Rydberg H_2 et l'hamiltonien d'interaction entre les deux électrons V_C :

$$H = H_1 + H_2 + V_C \quad (4.1)$$

H_1 est simplement l'hamiltonien du cœur ionique Yb^+ :

$$H_1 = -\frac{\Delta_1}{2} + V(r_1) + \xi(r_1) \vec{l}_1 \vec{s}_1 \quad (4.2)$$

Ses premiers niveaux d'énergies sont bien connus. En effet, cet ion est très utilisé dans certaines horloges à ions piégés ou dans des expériences d'information quantique. Notons que le couplage spin-orbite est déjà pris en compte avec le terme $\xi(r_1) \vec{l}_1 \vec{s}_1$. Les solutions de H_1 sont les fonctions d'onde de l'ion Yb^+ que l'on notera : $\psi_1 = R_{n_1, l_1}(r_1) \zeta_{l_1, j_1, m_1}(\theta_1, \phi_1)$ où R et ζ sont respectivement les parties radiale et angulaire.

Pour les états de Rydberg de moment orbital élevé $l > 4$, l'électron de Rydberg ne pénètre pas dans le cœur ionique. L'hamiltonien H_2 peut donc être approximé par celui de l'atome d'hydrogène :

$$H_2 = -\frac{\Delta_2}{2} - \frac{1}{r_2} \quad (4.3)$$

Ici, on ne prend pas en compte l'interaction spin-orbite. Cette approximation est motivée par le fait que l'écart spin-orbite est très faible pour les états de grand moment orbital. La solution est donc $\psi_2 = R_{n_2, l_2} Y_{l_2}^{m_2}$ où R et Y sont respectivement les parties radiale et angulaire de la fonction d'onde de l'hydrogène.

Les solutions de l'hamiltonien sans interaction inter-électronique $H_1 + H_2$ sont les produits des deux fonctions d'ondes ψ_1 et ψ_2 et l'énergie totale est la somme des énergies associées à ces fonctions d'ondes :

$$E^{(0)} = E_{n_1, l_1, j_1} - \frac{1}{2n_2^2} \quad (4.4)$$

Le dernier terme de l'hamiltonien total est le terme d'interaction entre les deux électrons de valence :

$$V_C = \frac{1}{r_{12}} - \frac{1}{r_2} \quad (4.5)$$

C'est ce terme qui est responsable du déplacement des niveaux d'énergie du cœur ionique par rapport à l'ion Yb^+ seul. D'autre part, lorsque l'atome sera dans une configuration excitée du cœur, ce terme va aussi permettre le couplage au continuum qui provoque l'auto-ionisation. Dans la suite, nous allons calculer de manière perturbative les déplacements d'énergie des niveaux ioniques et les taux d'auto-ionisation. Notons que ce traitement est réservé aux états de Rydberg de moment orbital élevé. Pour les niveaux de moment orbital faible ($l \leq 4$), une analyse avec théorie du défaut quantique à plusieurs voies est nécessaire [37].

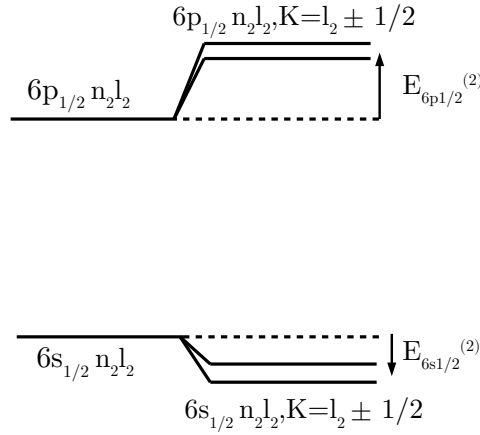


FIGURE 4.1 – Détails de la structure K sur la transition $6s_{1/2} \rightarrow 6p_{1/2}$

Le couplage $j_1 l_2$

Nous cherchons les fonctions propres de l'hamiltonien total. Pour ce faire il convient de trouver la base dans laquelle l'hamiltonien total H est diagonal. Les opérateurs de moments angulaires l_1, j_1 et l_2 associés aux électrons indépendants sont à priori des bons opérateurs et commutent avec les hamiltoniens H_1 et H_2 cependant ils ne commutent pas avec V_C . Il convient de trouver un couplage des moments cinétiques des deux électrons qui commute avec V_C . Il a été montré [21, 34] qu'un bon schéma de couplage est le couplage $j_1 l_2$ du moment cinétique total \vec{j}_1 du premier électron avec le moment orbital de l'électron Rydberg \vec{l}_2 tel que :

$$\vec{K} = \vec{j}_1 + \vec{l}_2 \quad (4.6)$$

V_C est diagonal dans la base des états $|l_1 j_1 l_2 K M\rangle$. Notons que dans ce schéma de couplage, on ne prend pas en compte l'interaction du spin du second électron s_2 avec les autres moments. Idéalement, il faudrait définir le moment cinétique total comme $\vec{J} = \vec{K} + \vec{s}_2$. Cependant, l'interaction du spin du Rydberg s_2 avec K est faible et il a été montré que le couplage $j_1 l_2$ est suffisant pour rendre compte des écarts d'énergie et des largeurs d'auto-ionisation observées [17, 34].

4.1.2 Calcul des déplacements d'énergie de niveaux du cœur ionique dans les états de Rydberg de grand moment orbital

Le modèle perturbatif

Au premier ordre, la correction à l'énergie peut se mettre sous la forme [21] :

$$E^{(1)} = J_d \pm K_e \quad (4.7)$$

où J_d et K_e sont respectivement l'intégrale directe et l'intégrale d'échange. Celles-ci se calculent en toute rigueur dans la base complète $|n_1 l_1 j_1 n_2 l_2 j_2 J M\rangle$. Elles ont pour expression [21] :

$$\begin{cases} J_d = \langle n_1 l_1 j_1 n_2 l_2 j_2 J M | V_c | n_1 l_1 j_1 n_2 l_2 j_2 J M \rangle \\ K_e = \langle n_1 l_1 j_1 n_2 l_2 j_2 J M | \frac{1}{r_{12}} | n_2 l_2 j_2 n_1 l_1 j_1 J M \rangle \end{cases} \quad (4.8)$$

L'intégrale d'échange est très faible par rapport à l'intégrale directe [21], ce qui peut se comprendre aisément si l'on considère le faible recouvrement des fonctions d'onde des

deux états électroniques. Ceci nous permet de négliger l'intégrale d'échange. Ainsi, la perturbation au premier ordre peut se mettre sous la forme :

$$E^{(1)} = \langle n_1 l_1 j_1 n_2 l_2 K M | V_c | n_1 l_1 j_1 n_2 l_2 K M \rangle \quad (4.9)$$

Au second ordre de la théorie des perturbations, la correction à l'énergie peut se mettre sous la forme :

$$E^{(2)} = \sum_{|\Psi_i\rangle} \frac{|\langle n_1 l_1 j_1 n_2 l_2 K M | V_c | \Psi_i \rangle|^2}{E_{n_1, l_1, j_1, l_2}^{(0)} - E_i^{(0)}} \quad (4.10)$$

où la somme tient sur tous les états $|\Psi_i\rangle \neq |n_1 l_1 j_1 n_2 l_2 K M\rangle$

Développement de V_C en série de puissances

L'opérateur $\frac{1}{r_{12}}$ peut être développé en fonction de r_1 et r_2 . Si on considère que l'on a $r_2 > r_1$ dans tout l'espace [21] :

$$\frac{1}{r_{12}} = \sum_{q=0}^{\infty} \frac{r_1^q}{r_2^{q+1}} C^{(q)}(\theta_1, \phi_1) C^{(q)}(\theta_2, \phi_2) \quad (4.11)$$

où les $C^{(q)}(\theta_i, \phi_i)$ sont les opérateurs tensoriels de rang q associés aux harmoniques sphériques [21]. Ainsi, en se limitant aux termes dipolaires et quadrupolaires¹, on peut développer l'hamiltonien de corrélations V_C entre les deux électrons :

$$\begin{aligned} V_C &= -\frac{1}{r_2} + \frac{1}{r_2} C^{(0)}(\theta_1, \phi_1) C^{(0)}(\theta_2, \phi_2) + \frac{r_1}{r_2^2} C^{(1)}(\theta_1, \phi_1) C^{(1)}(\theta_2, \phi_2) + \frac{r_1^2}{r_2^3} C^{(2)}(\theta_1, \phi_1) C^{(2)}(\theta_2, \phi_2) \\ &= \frac{r_1}{r_2^2} C^{(1)}(\theta_1, \phi_1) C^{(1)}(\theta_2, \phi_2) + \frac{r_1^2}{r_2^3} C^{(2)}(\theta_1, \phi_1) C^{(2)}(\theta_2, \phi_2) \end{aligned} \quad (4.12)$$

Calcul des corrections à l'ordre 1 et à l'ordre 2

À l'ordre 1, la correction à l'énergie peut se mettre sous la forme :

$$E^{(1)} = \langle n_1 l_1 n_2 l_2 | \frac{r_1}{r_2^2} | n_1 l_1 n_2 l_2 \rangle \times A^{(1)} + \langle n_1 l_1 n_2 l_2 | \frac{r_1^2}{r_2^3} | n_1 l_1 n_2 l_2 \rangle \times A^{(2)} \quad (4.13)$$

où les $|n_1 l_1 n_2 l_2\rangle$ sont les vecteurs représentant les parties radiales des fonctions d'onde à deux électrons. Les termes $A^{(q)}$ sont les intégrales angulaires qui peuvent s'exprimer en couplage $j_1 l_2$ par $A^{(q)} = \langle l_1 j_1 l_2 K M | C^{(q)}(1) C^{(q)}(2) | l_1 j_1 l_2 K M \rangle$. Pour les états $6s_{1/2}$ et $6p_{1/2}$, les intégrales angulaires $A^{(q)}$ sont nulles si $q = 1$ ou $q = 2$ [21]. La correction à l'énergie est donc nulle à l'ordre 1.

$$\boxed{E^{(1)} = 0} \quad (4.14)$$

À l'ordre 2, on va décomposer la correction en séparant la contribution des termes dipolaires et quadrupolaires :

$$E^{(2)} = E_{dip}^{(2)} + E_{quad}^{(2)} \quad (4.15)$$

1. Les termes quadrupolaires donnent des intégrales qui peuvent être encore du même ordre de grandeur que les termes dipolaires. Au delà les intégrales sont négligeables [23].

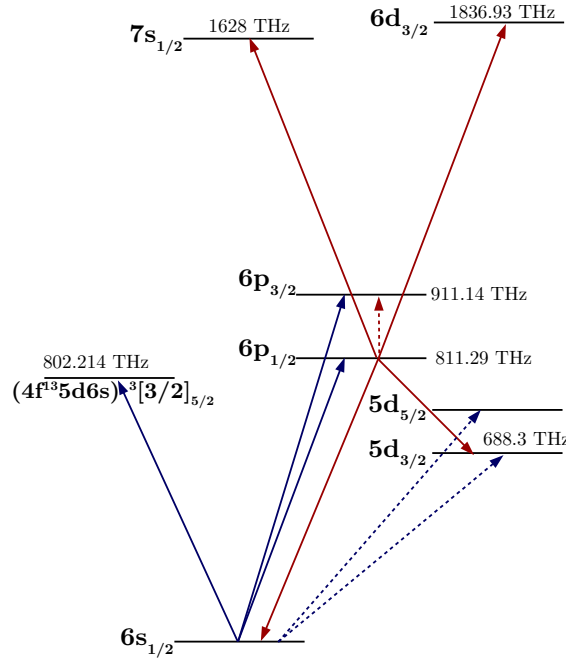


FIGURE 4.2 – Couplages possibles pour les états $6s_{1/2}nl$ (bleu) et $6p_{1/2}nl$ (rouge). En trait continu : par le terme dipolaire. En trait pointillé : par le terme quadrupolaire. Les énergies renseignées correspondent aux énergies de l'ion Yb^+ non perturbé.

Le terme dipolaire r_1 couple les états s uniquement aux états p . La contribution dipolaire de la correction de l'énergie de $6s_{1/2}$ peut donc être exprimée ainsi [21] :

$$E_{6s_{1/2}}^{(2,dip)} = \langle n_2 l_2 | \frac{1}{r_2^4} | n_2 l_2 \rangle \left(W_{p_{1/2}} \sum_{l'_2=l_2 \pm 1} (B_{p_{1/2}}^{(1)})^2 + W_{p_{3/2}} \sum_{l'_2=l_2 \pm 1} (B_{p_{3/2}}^{(1)})^2 \right) \quad (4.16)$$

avec :

$$\begin{cases} W_{p_{1/2}} = \frac{|\langle 6s|r|6p \rangle|^2}{E_{6s_{1/2}} - E_{6p_{1/2}}} + \frac{|\langle 6s|r|7p \rangle|^2}{E_{6s_{1/2}} - E_{7p_{1/2}}} + \dots \\ W_{p_{3/2}} = \frac{|\langle 6s|r|6p \rangle|^2}{E_{6s_{1/2}} - E_{6p_{3/2}}} + \frac{|\langle 6s|r|7p \rangle|^2}{E_{6s_{1/2}} - E_{7p_{3/2}}} + \dots \end{cases} \quad (4.17)$$

où les termes de type $\langle 6s|r|6p \rangle$ sont tout simplement les intégrales radiales des fonctions d'onde du cœur $\int_0^\infty u_{6s}(r_1)r_1 u_{6p}(r_1)dr$ avec $u(r) = r \times R(r)$. Le terme angulaire de type $B_{p_{1/2}}$ correspond au terme angulaire de couplage entre un état $s_{1/2}l_2K$ et un état $p_{1/2}l'_2K'$ qui sera détaillé plus loin dans l'équation (4.20). Notons que dans les dénominateurs de (4.17), on a négligé l'énergie de liaison des Rydberg (*i.e.* $E_{\text{Yb } 6p_{1/2}nl} \approx E_{\text{Yb}^+ 6p_{1/2}}$).

Le terme dipolaire couple les états $p_{1/2}$ seulement aux états $s_{1/2}$ et $d_{3/2}$. La correction pour $6p_{1/2}$ est donc :

$$E_{6p_{1/2}}^{(2,dip)} = \langle n_2 l_2 | \frac{1}{r_2^4} | n_2 l_2 \rangle \left(W_{s_{1/2}} \sum_{l'_2=l_2 \pm 1} (B_{s_{1/2}}^{(1)})^2 + W_{d_{3/2}} \sum_{l'_2=l_2 \pm 1} (B_{d_{3/2}}^{(1)})^2 \right) \quad (4.18)$$

avec :

$$\begin{cases} W_{s_{1/2}} = \frac{|\langle 6p|r|6s \rangle|^2}{E_{6p_{1/2}} - E_{6s_{1/2}}} + \frac{|\langle 6p|r|7s \rangle|^2}{E_{6p_{1/2}} - E_{7s_{1/2}}} + \dots \\ W_{d_{3/2}} = \frac{|\langle 6p|r|5d \rangle|^2}{E_{6p_{1/2}} - E_{5d_{3/2}}} + \frac{|\langle 6p|r|5d \rangle|^2}{E_{6p_{1/2}} - E_{6d_{3/2}}} + \dots \end{cases} \quad (4.19)$$

Forme explicite du facteur angulaire

Dans le développement de V_C , on a fait intervenir les opérateurs $C^q(\theta, \phi)$. Ceux-ci sont des opérateurs tensoriels scalaires [21] de rang q qui apparaissent dans la décomposition des moments angulaires et nous ont permis de découpler les composantes des fonctions d'onde de chaque électron. Dans les relations (4.16) et (4.18), on a fait apparaître des facteurs $B^{(q)}$. Ces derniers sont des intégrales sur les parties angulaires des fonctions d'onde qui ont pour expression [21] :

$$\begin{aligned} B^q &= \langle l_1 j_1 l_2 K M | C^{(q)}(1) C^{(q)}(2) | l'_1 j'_1 l'_2 K' M' \rangle \\ &= (-1)^\alpha \delta_{K, K'} \delta_{M, M'} (2l_1 + 1)(2l_2 + 1)(2j_1 + 1)(2l'_1 + 1)(2l'_2 + 1)(2j'_1 + 1) \\ &\times \begin{Bmatrix} j_1 & l_2 & K \\ l'_2 & j'_1 & q \end{Bmatrix} \begin{Bmatrix} j_1 & q & j'_1 \\ l'_1 & 1/2 & l_1 \end{Bmatrix} \begin{pmatrix} l_1 & q & l'_1 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} l_2 & q & l'_2 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \end{aligned} \quad (4.20)$$

où α est un exposant que l'on n'explicitera pas dans la mesure où l'on prend le carré de $B^{(q)}$ dans les formules (4.16) et (4.18). Les termes entre crochets sont les coefficients $6j$ et les termes entre parenthèses sont des coefficients $3j$.

Résultats

Les écarts aux énergies de l'ion ytterbium dus à l'électron Rydberg ont été calculés pour un nombre quantique principal $n_2 = 40$ et un moment orbital l_2 de 5 à 10 (tableau 4.1). Les intégrales radiales sur l'électron de Rydberg sont calculées en utilisant la méthode de Numerov [23], tandis que les intégrales sur l'électron de valence sont calculées à partir des niveaux d'énergie et des temps de vie [65, 81]. Dans ces calculs, nous

l_2	K	$E_{6s_{1/2}n_2l_2}^{(2,dip)}$ (MHZ)	$E_{6p_{1/2}n_2l_2}^{(2,dip)}$ (MHZ)	$E_{6p_{1/2}n_2l_2}^{(2,dip)} - E_{6s_{1/2}n_2l_2}^{(2,dip)}$ (MHZ)
5	4.5	-750	1847	2597
	5.5	-750	2334	3084
6	5.5	-320	835	1155
	6.5	-320	1027	1348
7	6.5	-155	411	566
	7.5	-155	503	658
8	7.5	-82	219	301
	8.5	-82	268	350
9	8.5	-46	135	171
	9.5	-46	153	200
10	9.5	-28	75	103
	10.5	-28	92	120

TABLE 4.1 – Déplacements calculés des niveaux du cœur ionique $6s_{1/2}$ et $6p_{1/2}$ dans les états de Rydberg $n_2 = 40$ de grand moment orbital l_2 .

avons uniquement pris en compte les contributions des états les plus proches en énergie. Dans le calcul de $E_{6s_{1/2}}^{(2,dip)}$, nous avons donc négligé les contributions de l'état $7p$ et des états suivants ($8p, 9p\dots$) puisqu'elles devraient être faibles devant les contributions des états $6p_{1/2}$ et $6p_{3/2}$. Nous avons aussi négligé la contribution de l'état $4f^{13}5d6s^3[3/2]_{3/2}$ puisque l'élément de matrice dipolaire entre cet état et l'état $6s_{1/2}$ devrait être environ trois fois plus faible que l'élément de matrice $\langle 6s | r | 6p \rangle$. Dans le calcul de $E_{6p_{1/2}}^{(2,dip)}$, pour les mêmes raisons, nous avons uniquement pris en compte les contributions des états les plus proches en énergie : $6s$, $5d$, $7s$ et $6d$. Nous avons donc négligé les contributions des états dont l'énergie est supérieure à celle de l'état $6d_{3/2}$.

On remarque une nette décroissance des écarts d'énergie avec l_2 : l'influence de l'électron Rydberg décroît puisque la barrière centrifuge l'éloigne de plus en plus du cœur. De plus l'écart entre les états $K = l_2 - 1/2$ et $K = l_2 + 1/2$ décroît lui-aussi très fortement. Ceci est aussi prévisible : l'interaction provoquant la levée de dégénérescence de ces niveaux décroît aussi avec l_2 . Notons que nous n'avons pas pris en compte les contributions quadrupolaires. Ces calculs seront testés expérimentalement dans la section suivante.

4.1.3 Calcul des taux d'auto-ionisation

Pour pouvoir réaliser l'imagerie des Rydberg par excitation du cœur ionique de manière non destructive, on veut réaliser des cycles absorption-émission spontanée sur la transition du cœur ionique $6s_{1/2} - 6p_{1/2}$ en conservant l'état de Rydberg. Il faut donc limiter au maximum le taux d'auto-ionisation et le rendre négligeable devant le taux de désexcitation radiative. Comme nous l'avons mis en évidence dans la section 1.2, le taux d'auto-ionisation devrait fortement diminuer avec le moment orbital l_2 de l'électron Rydberg. On se propose de réaliser le calcul des taux en fonction de l_2 dans le cas de l'ytterbium. L'objectif est de trouver le moment orbital l_2 à partir duquel le taux d'auto-ionisation Γ_a est négligeable devant le taux de désexcitation spontanée radiative Γ_r de la transition du cœur ionique.

Le modèle perturbatif

L'hamiltonien de couplage V_C peut être considéré comme une perturbation constante qui va coupler les états propres de l'hamiltonien $H_1 + H_2$. En l'occurrence, comme on va utiliser la transition $6s_{1/2} \rightarrow 6p_{1/2}$ pour l'excitation du cœur, l'état auto-ionisant sera l'état $6p_{1/2}n_2l_2$. V_C peut coupler cet état aux différents continus des autres configurations du cœur Yb^+ et le taux de transition vers le continuum est donné par la règle d'or de Fermi :

$$\Gamma_a = 2\pi \sum_f |\langle f | V_C | 6p_{1/2}n_2l_2, K \rangle|^2 \quad (4.21)$$

où f désigne les états du continuum qui peuvent se coupler à l'état $|6p_{1/2}n_2l_2K\rangle$ par V_C . Notons que, dans cette formule, les états du continuum doivent être normalisés par unité d'énergie (voir paragraphe suivant). En l'occurrence, seules les séries $6s_{1/2}\epsilon l'_2$ et $5d_{3/2}\epsilon l'_2$ peuvent se coupler à $6p_{1/2}n_2l_2$ par le terme dipolaire de (4.12). À priori, aucune contribution quadrupolaire devrait exister puisque tous les continus pouvant se coupler à $6p_{1/2}n_2l_2$ par le terme quadrupolaire sont situés au dessus en énergie. Le taux d'auto-

ionisation peut donc s'écrire :

$$\Gamma_a = 2\pi \sum_{l'_2=l_2\pm 1} \left(\left| \langle 6s_{1/2}\epsilon_s l'_2 K | \frac{r_1}{r_2} C^{(1)}(\theta_1, \phi_1) C^{(1)}(\theta_2, \phi_2) | 6p_{1/2} n_2 l_2 K \rangle \right|^2 \right. \\ \left. + \left| \langle 5d_{3/2}, \epsilon_d l'_2 K | \frac{r_1}{r_2} C^{(1)}(\theta_1, \phi_1) C^{(1)}(\theta_2, \phi_2) | 6p_{1/2} n_2 l_2 K \rangle \right|^2 \right) \quad (4.22)$$

où $\epsilon_s \approx E_{6p_{1/2}}$ et $\epsilon_d \approx E_{6p_{1/2}} - E_{5d_{3/2}}$ sont les énergies que l'électron éjecté va emporter sous forme d'énergie cinétique. Notons que pour ce calcul, nous avons négligé la contribution de l'auto-ionisation vers le continuum $4f^{13}5d6s^3[3/2]_{5/2} \epsilon l'_2$. En toute rigueur, celui-ci ne peut pas se coupler avec $6p_{1/2} n l$ par un opérateur à deux électrons comme l'opérateur V_C (il faut changer l'état de trois électrons pour passer de l'un état à l'autre). Par conséquent, le couplage va être à un ordre supérieur et donc il devrait être faible. Cependant, la proximité en énergie des états $6p_{1/2}$ et $4f^{13}5d6s^3[3/2]_{5/2}$ (≈ 10 THz) pourrait le favoriser. Nous ne sommes malheureusement pas en mesure d'évaluer ce couplage.

Remarque sur le calcul des fonctions d'onde du continuum

Les intégrales radiales sur l'électron Rydberg qui interviennent dans (4.22) peuvent s'exprimer :

$$\langle \epsilon l'_2 | 1/r^2 | n_2 l_2 \rangle = \int u_{\epsilon l'_2}(r) \frac{1}{r^2} u_{n_2 l_2}(r) dr \quad (4.23)$$

où les fonctions $u(r) = r \times R(r)$ peuvent être calculées par la méthode de Numerov (voir [23]). Pour utiliser Numerov, il est nécessaire de commencer l'itération dans une

l_2	K	$\Gamma_a/2\pi$ (MHz)
4	3.5	11040
	4.5	5628
5	4.5	5374
	5.5	2286
6	5.5	2119
	6.5	837
7	6.5	681
	7.5	260
8	7.5	180.9
	8.5	67.9
9	8.5	39.9
	9.5	14.7
10	9.5	7.4
	10.5	2.7
11	4.5	1.2
	5.5	0.42
12	4.5	0.16
	5.5	0.05

TABLE 4.2 – Valeurs théoriques du taux d'auto-ionisation des états $6p_{1/2} 40l_2$, $K = l_2 \pm 1/2$ pour l'ytterbium.

région où la fonction d'onde est nulle. La fonction d'onde du continuum ayant une extension spatiale infinie, il n'est pas possible de commencer l'itération à partir de l'"extérieur" (comme indiqué dans la méthode de [23]). Nous avons donc choisi de commencer l'itération des fonctions d'onde au niveau du cœur $r_i = l_2(l_2 + 1)/20$ où la fonction d'onde est encore quasi nulle. On arrête l'itération après le point de retour classique de la fonction d'onde Rydberg $r_o = 2n_2(n_2 + 3)$.

D'autre part, il est indispensable de normaliser correctement les fonctions d'onde. Pour les états liés, le facteur de normalisation est trivial : il est obtenu en intégrant le carré de la fonction d'onde calculée. La fonction d'onde radiale normalisée est donc obtenue en calculant :

$$u_i^{norm} = \frac{u_i}{\sqrt{\sum_i (u_i)^2}} \quad (4.24)$$

Pour les fonctions d'onde du continuum, la normalisation est délicate puisque leur extension est infinie. On doit alors normaliser la fonction d'onde par unité d'énergie. Pour un électron libre d'énergie ϵ , la fonction d'onde normalisée par unité d'énergie peut s'écrire [23] :

$$u(r) = \sqrt{\frac{2}{\pi k}} \sin(kr) \quad (4.25)$$

où $k = \sqrt{2\epsilon}$. Dans notre cas, la fonction du continuum n'est pas rigoureusement sinusoïdale puisque l'électron est soumis au potentiel du cœur. L'astuce est de se placer à un maximum local de la fonction d'onde $u_{i_{max}}$, la fonction d'onde normalisée est alors donnée par :

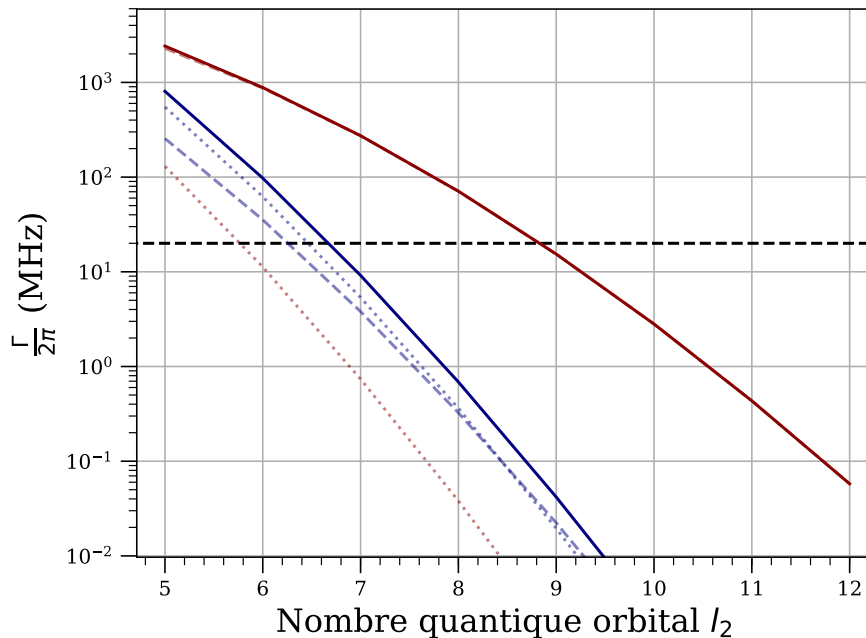


FIGURE 4.3 – Taux d'auto-ionisation théoriques pour les états $6p_{1/2}40l_2$, $K = l_2 + 1/2$ pour l'ytterbium (rouge) et pour le baryum (bleu). Les lignes pointillées marquent les contributions de l'auto-ionisation vers le continuum $6s_{1/2}\epsilon l'_2$, les tirets marquent les contributions vers $5d_{3/2}\epsilon l'_2$. On remarque que dans le cas de l'ytterbium, la contribution vers $5d_{3/2}\epsilon l'_2$ domine très nettement à cause de la proximité en énergie des niveaux $6p_{1/2}$ et $5d_{1/2}$. La ligne pointillée noire à 20 MHz marque le taux de désexcitation radiative du niveau $6p_{1/2}$.

$$u_i^{norm} = \sqrt{\frac{2}{\pi k_{i_{max}}} \frac{u_i}{u_{i_{max}}}} \quad (4.26)$$

où $k_{i_{max}} = \sqrt{2\epsilon + 2/r_{i_{max}} - l(l+1)/r_{i_{max}}^2}$ est la valeur de k au point i_{max} . On se ramène ainsi à la normalisation adaptée tout en conservant la bonne forme à r faible. À r grand, l'amplitude de cette fonction d'onde doit être similaire à celle la fonction d'onde de l'électron libre (4.25), ce qui est facilement vérifiable.

Résultats pour l'ytterbium et comparaison avec le cas du baryum

Les taux d'auto-ionisation ont été calculés pour les états $n = 40$ et de $l_2 = 4$ à $l_2 = 12$. Les résultats sont rassemblés sur le tableau 4.2 et sur la figure 4.3. On peut voir que le taux d'auto-ionisation chute rapidement avec le nombre quantique orbital et descend relativement vite en dessous du taux de désexcitation radiative. La contribution principale provient du couplage vers le continuum de l'état $5d_{3/2}$. Ceci s'explique par le fait que l'écart d'énergie entre l'état initial $6p_{1/2}$ et cet état est beaucoup plus faible que l'écart avec l'état $6s_{1/2}$, ce qui favorise le recouvrement entre la fonction d'onde du continuum et la fonction d'onde Rydberg. On remarque aussi que l'auto-ionisation est deux fois plus rapide pour les états $K = l_2 - 1/2$ que pour les états $K = l_2 + 1/2$. Cette différence provient des facteurs angulaires. Pour réaliser l'imagerie des atomes Rydberg, il serait confortable de pouvoir effectuer de l'ordre de la centaine de cycles absorption-émission spontanée avant d'auto-ioniser. Par conséquent, il faut que le taux d'auto-ionisation soit au moins cent fois plus faible que le taux de désexcitation radiative de la transition ($\Gamma_r \approx 2\pi \times 20$ MHz). Ce régime est atteint, pour l'ytterbium, à partir de $l_2 = 12$.

Sur la figure 4.3, j'ai aussi tracé les taux d'auto-ionisation calculés pour le baryum. Dans la mesure où l'état $5d_{3/2}$ y est beaucoup plus bas en énergie, l'auto-ionisation est beaucoup plus faible. En effet, la fonction du continuum va osciller très rapidement ce qui amoindrit l'intégrale de recouvrement. La dépendance en l_2 y est alors beaucoup plus forte...

4.2 Étude expérimentale de l'excitation du cœur isolé dans l'ytterbium

4.2.1 Dispositif expérimental

Le laser à 369 nm

La transition de l'ion Yb^+ que nous utilisons pour l'excitation du cœur isolé est la transition $6s_{1/2} \rightarrow 6p_{1/2}$ à ≈ 369.5 nm. Le laser utilisé est une diode à cavité étendue² délivrant une puissance maximale de 15 mW. Ce type de laser a l'intérêt d'être très fin spectralement (sa largeur spectrale est d'environ 500 kHz) et relativement stable. Pour balayer sa fréquence sur de petits intervalles (1-5 GHz), on varie la tension de la cale piezo-électrique de la cavité étendue. À l'issue de ce premier scan, on ajuste le courant de la diode pour effectuer un saut de mode. En réalisant cette démarche plusieurs fois, on peut scanner sur ≈ 40 GHz de manière reproductible. Cependant, cela a une influence notable sur la puissance en sortie du laser. Aux extrémités de l'intervalle de fréquence,

2. Moglabs ECDL

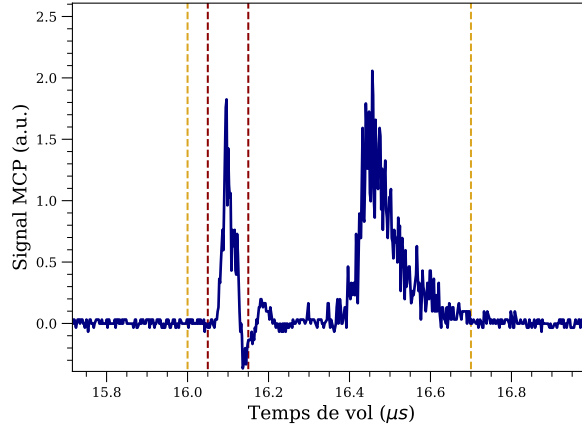


FIGURE 4.5 – Signal de temps de vol pour les atomes de Rydberg auto-ionisés. Le premier pic à $16.1 \mu\text{s}$ correspond aux atomes de Rydberg auto-ionisés et le second aux atomes de Rydberg ionisés en champ. L'intervalle délimité par les lignes pointillées rouges est la zone d'intégration du signal d'atomes de Rydberg auto-ionisés I_a et l'intervalle délimité par les lignes pointillées jaunes est la zone d'intégration du signal d'atomes de Rydberg total I_t .

est sensiblement plus étroit que le signal correspondant aux atomes de Rydberg ionisés en champ (figure 4.5). On peut alors intégrer le signal d'atomes auto-ionisés I_a et celui des atomes ionisés en champ I_c distinctement. Le signal que l'on observe sera alors la proportion d'atomes auto-ionisés S_a , *i.e.* :

$$S_a = \frac{I_a}{I_a + I_c} = \frac{I_a}{I_t} \quad (4.27)$$

4.2.2 Création des états de Rydberg de $l > 4$, technique du Stark-Switching

Principe général

Les états de moment orbital élevé ne sont pas accessibles par une excitation classique à deux photons. En effet, l'état intermédiaire après le premier photon étant un état p , les règles de sélection impliquent que l'on ne peut exciter que des états s ou d .

Pour exciter les états $l > 4$, nous avons donc utilisé la méthode du *Stark Switching* (voir figure 4.6). Cette technique est basée sur le fait que l'application d'un champ électrique mélange les états de moments orbitaux différents. Ainsi, les états propres en champ sont des combinaisons linéaires des états de différents moments orbitaux hors champ. Plus on applique un champ fort, plus grande sera la proportion d'états s et d dans les états propres en champ nk correspondant aux états de grand moment orbital. Ceci va permettre l'excitation de ces derniers par excitation à deux photons. Une fois l'état nk excité en champ, il convient de redescendre à champ électrique nul pour obtenir l'état pur correspondant nl . Toute la difficulté de cette technique repose sur ce débranchement du champ : il faut éviter que l'état ne se mélange aux états voisins par transfert diabatique. Nous reviendrons sur ce point dans un deuxième paragraphe.

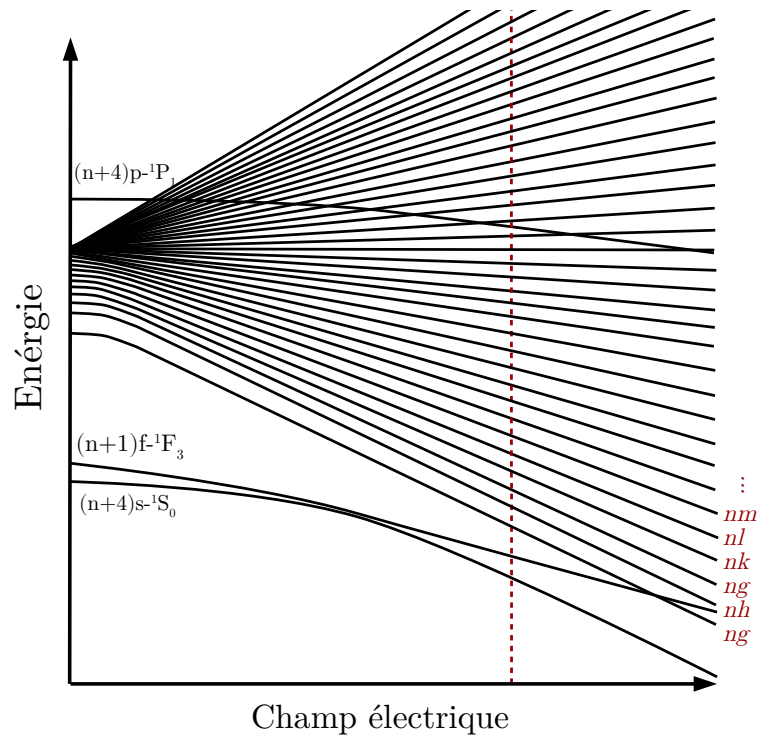


FIGURE 4.6 – Diagramme Stark (schéma approximatif) dans l'ytterbium autour de $n = 40$. La ligne pointillée rouge marque le champ optimal.

Comportement des états en champ et optimum du champ électrique

Il convient tout d'abord de trouver le champ électrique optimal. Dans le chapitre 1, on a vu que le défaut quantique des états de moment orbital $l > 4$ est très faible et ce parce que la barrière centrifuge empêche la pénétration de l'électron Rydberg dans le cœur ionique. Cela implique que ces états sont très proches en énergie et sont répartis en ordre de l croissant puisque le défaut quantique suit une loi en $\approx l^{-5}$. Lorsque l'on applique un champ, la proximité des états implique que l'effet Stark va rapidement être linéaire. On voit alors apparaître une structure en éventail (figure 4.6). Comme chaque état l repousse ses voisins $l \pm 1$, l'ordre des états en champ est préservé : à un champ électrique donné, l'état de plus basse énergie de l'éventail correspond à l'état g à champ nul, l'état suivant correspond à h à champ nul et ainsi de suite. Comme on l'a évoqué précédemment, plus le champ est grand plus l'excitation des états de l'éventail est autorisée. Cependant si on augmente trop le champ, les états aux extrémités de l'éventail risquent de croiser les états de $l_2 \leq 4$ et cela peut compliquer la redescente en champ. Dans l'ytterbium (figure 4.6), les états $6s(n+4)s-1S_0$ et $6s(n+1)f-1F_3$ croisent les états du bas de l'éventail à un champ d'environ 15 V/cm (à $n = 40$). Nous choisissons donc un champ sensiblement inférieur à ce champ de croisement de manière à éviter des transferts éventuels.

Sur la figure 4.7, je présente le spectre obtenu au champ optimal. Par sécurité, on choisit un champ tel que l'écart entre le premier état de la multiplicité ng et l'état $(n+4)s$ soit supérieur à l'écart entre deux états adjacents de celle-ci. On remarque aussi une structure dans les états de la multiplicité. À chaque l , on peut différencier trois pics : ceux-ci correspondent très probablement aux sous-niveaux Zeeman mais nous ne sommes pas encore en mesure de les identifier. Par conséquent, pour chaque l nous avons simplement

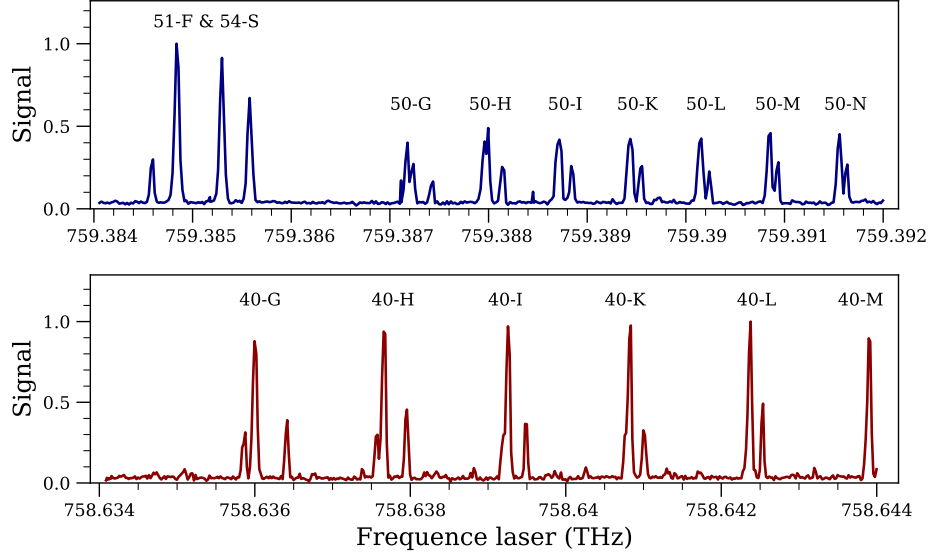


FIGURE 4.7 – EN HAUT : spectre d'excitation Rydberg sur le début de la multiplicité $n = 50$ à un champ électrique de 5.1 V/cm. EN BAS : spectre sur le début de la multiplicité $n = 40$ à un champ électrique de 13.9 V/cm.

choisi d'exciter l'état dont l'excitation est la plus efficace (l'état "du milieu"). Par la suite, on nommera cet état par la lettre correspondant à son nombre quantique orbital l (par exemple pour $n = 40$ et $l = 6$: 40 - I).

L'extinction du champ

Une fois l'excitation effectuée, le champ électrique doit être éteint pour obtenir un état de moment orbital l pur. Toute la difficulté de l'extinction intervient lorsque l'on approche de champ nul. En effet, l'écart d'énergie entre les états de la multiplicité est alors tellement faible que les atomes peuvent effectuer des transferts vers les états voisins et ceci à cause de la variation de champ lors du débranchement. Pour éviter ces transferts, il convient d'éteindre le champ adiabatiquement, c'est à dire de manière assez lente pour que l'atome reste dans son état propre $|l\rangle$.

Une condition suffisante pour l'adiabaticité est que le temps caractéristique de descente du champ doit être inférieur à l'inverse de l'écart d'énergie, *i.e.* :

$$\tau \gg \frac{1}{\omega_{ll}} \quad (4.28)$$

On doit donc déterminer l'écart d'énergie entre deux états adjacents ω_{ll} pour choisir un temps caractéristique τ acceptable expérimentalement. Le défaut quantique des états g a été mesuré à $\delta_g \approx 0.025$ [83]. En appliquant la loi d'évolution du défaut quantique (équation (1.19)) avec le moment orbital l et en négligeant la contribution quadrupolaire en $1/l^9$, le défaut quantique des états de l élevés peut être approximé par :

$$\delta_l \approx 0.025 \times \left(\frac{4}{l}\right)^5 \quad (4.29)$$

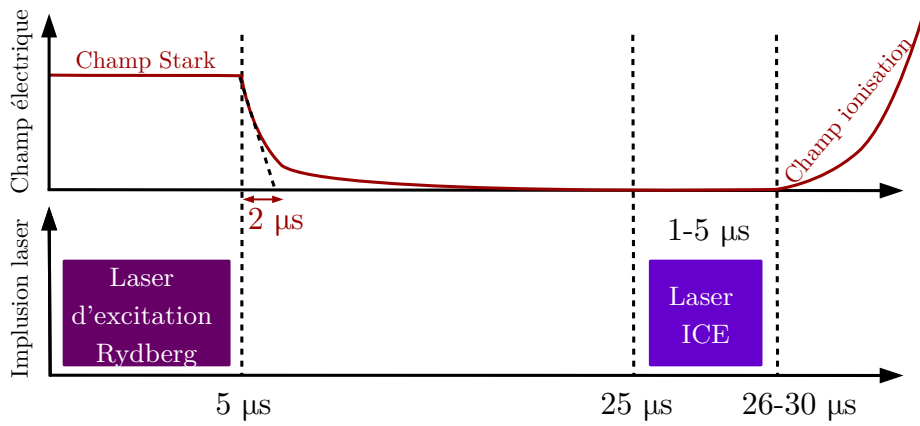


FIGURE 4.8 – Séquence temporelle pour la méthode de Stark-switching. Pour étudier l'excitation du cœur ionique des états de grand moment orbital à $n = 40$, on réalise l'excitation laser pendant $5 \mu s$ sous un champ d'environ 13.9 V/cm , le champ est alors éteint avec un temps caractéristique de descente de $2 \mu s$. $20 \mu s$ plus tard, on applique l'impulsion d'excitation du cœur ionique à 369 nm avec une durée d'impulsion variable. La rampe de champ électrique va ensuite nous permettre de diriger les atomes auto-ionisés et d'ioniser les atomes de Rydberg restants. Le MCP récolte les atomes auto-ionisés et un peu plus tard, les atomes ionisés par champ. Le signal MCP typique est représenté sur la figure 4.5

À $n = 40$, l'écart entre les niveaux $l = 8$ et $l = 9$ est d'environ 40 MHz ³. En choisissant un temps caractéristique $\tau = 2 \mu s$, on obtient $\tau \omega_{l,l} \approx 500$. On satisfait amplement la relation (4.28).

L'autre difficulté de la technique de Stark-Switching réside dans le fait que, après débranchement, le champ électrique doit être le plus faible possible. En effet le moindre champ résiduel mélange l'état visé avec ses voisins ce qui affecte sa pureté. Le déplacement en énergie de l'état visé dû au champ résiduel doit donc être petit devant l'écart d'énergie entre états voisins à champ nul. En d'autres termes, il faut s'assurer de ne plus être dans la zone linéaire de l'effet Stark. Dans la zone linéaire, on peut écrire le déplacement en énergie au champ comme $\Delta E_l = \alpha_l F$. À $n = 40$ et pour l'état à l'extrémité de la multiplicité ($l = 4$), on obtient $\alpha_{l=4} = -2.15 \text{ GHz/(V/cm)}$. Le champ appliqué durant l'excitation étant de 13.5 V/cm , il faut laisser décroître le champ pendant $10 \times \tau = 20 \mu s$. Le champ après débranchement est alors $\approx 0.2 \text{ mV/cm}$ et le déplacement correspondant $\approx 0.50 \text{ MHz}$ est très inférieur à l'écart d'énergie entre niveaux adjacents. Les états de Rydberg à $n = 40$ ayant une durée de vie d'environ $80 \mu s$ [30], le temps passé à éteindre le champ ne devrait pas provoquer trop de pertes par émission spontanée des atomes.

3. Dans la section précédente nous avons calculé un écart entre les niveaux $l = 8$ et $l = 9$ de 36 MHz qui doit être plus proche de la réalité, l'équation (4.29) étant une approximation assez grossière.

4.2.3 Spectre d'auto-ionisation par excitation optique du cœur isolé

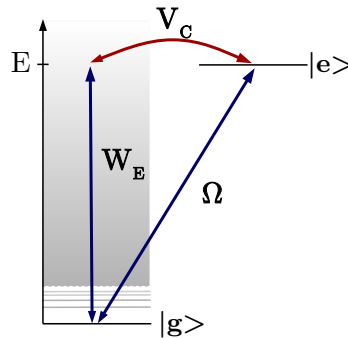


FIGURE 4.9 – Schéma des niveaux en jeu dans le processus d'auto-ionisation. L'interférence entre l'excitation du continuum direct (élément de matrice W_E) et l'excitation de l'état auto-ionisant (fréquence de Rabi Ω) implique un spectre en profil de Fano.

La résonance de Fano

La forme asymétrique des spectres d'auto-ionisation est un résultat très connu et a notamment été observée dans les spectres de collisions inélastiques d'électrons sur l'atome d'hélium. L'explication théorique de cette asymétrie a été proposée par Ugo Fano dans l'un des articles les plus cités en physique atomique [84].

Prenons un atome à deux niveaux : le premier niveau que l'on va noter $|g\rangle$, et un deuxième niveau $|e\rangle$ dont l'énergie E_e est plus grande que l'énergie d'ionisation de la configuration de l'état $|g\rangle$. Lorsque l'on envoie un laser autour de la résonance $g \rightarrow e$, l'atome peut être excité vers $|e\rangle$ puis va rapidement ioniser à cause du couplage V_c entre les configurations : c'est le phénomène d'auto-ionisation. D'autre part, le laser peut aussi exciter directement le continuum $\int dE |E, g\rangle$ de la configuration correspondant à l'état $|g\rangle$: c'est le phénomène de photo-ionisation. L'asymétrie des spectres d'ionisation

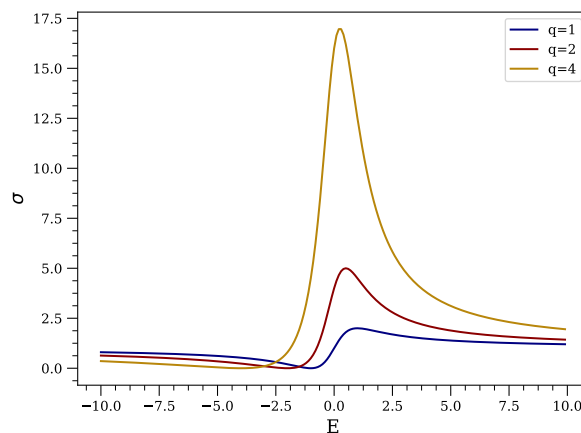


FIGURE 4.10 – Section efficace d'ionisation en fonction de l'énergie (formule (4.30)). On remarque que l'asymétrie du spectre augmente lorsque q diminue.

s'explique par un phénomène d'interférence entre le couplage au continuum par photo-ionisation et le couplage au continuum par auto-ionisation. La phase relative entre les deux dépend fortement de l'énergie de l'excitation, ce qui mène à une interférence destructive d'un côté de la résonance de l'état discret et constructive de l'autre côté. La section efficace d'ionisation peut s'écrire [84] :

$$\sigma = \frac{(q\Gamma_a/2 + (E - E_f))^2}{(\Gamma_a/2)^2 + (E - E_f)^2} \quad (4.30)$$

où le paramètre d'asymétrie est contenu dans $q = \frac{\Omega}{2\pi V_c W_E}$. Ω est la fréquence de Rabi de l'excitation laser vers l'état discret $|e\rangle$, W_E est l'élément de matrice correspondant à la photo-ionisation directe et $\Gamma_a = 2\pi|V_c|^2$ est le taux d'auto-ionisation de l'état $|f\rangle$. Sur la figure 4.10, j'ai tracé σ pour différentes valeurs du paramètre q . On remarque que l'asymétrie diminue lorsque q augmente. Lorsque $q \gg 1$, le spectre est une lorentzienne.

Formule temporelle pour la résonance de Fano

Dans notre situation expérimentale, l'excitation de l'état auto-ionisant $6p_{1/2}nl$ est réalisée par laser à partir de l'état $6s_{1/2}nl$. Lorsque les atomes sont transférés vers $6p_{1/2}nl$, ils vont rapidement auto-ioniser et ceci va impliquer une déplétion des atomes dans notre nuage. À résonance et avec une durée d'impulsion τ trop longue, la proportion d'atomes auto-ionisés sature à 100%. Dans ce régime, les spectres peuvent être considérablement élargis. Il convient donc de trouver une formule analytique qui prend en compte cet élargissement par la durée d'impulsion. En suivant la démarche de [84], on peut trouver que la proportion d'atomes ionisés peut se mettre sous la forme [85] :

$$S_a = 1 - \exp\left(-2\pi|W_E|^2\tau \frac{(q + \frac{\delta'}{\Gamma_a/2})^2}{1 + (\frac{\delta'}{\Gamma_a/2})^2}\right) \quad (4.31)$$

où $\delta' = \delta - \delta_0$ est le désaccord laser par rapport à la résonance de l'état discret. δ_0 est ici le désaccord de l'état discret par rapport au niveau de l'ion Yb^+ . Notons que pour un temps faible, par un développement limité de l'exponentielle, on retrouve le profil de Fano de l'équation (4.30).

Le cas des atomes de Rydberg d'ytterbium de grand moment orbital

En réalité, la probabilité de photo-ionisation est très faible parce que notre laser excite très loin dans le continuum. Dans nos conditions expérimentales, le taux de photo-ionisation dû au laser à 369 nm est de $\Gamma_p \approx 1 \times 10^{-4} \text{s}^{-1}$. Celui-ci est donc très faible devant le taux de couplage à l'état discret Ω lorsque le laser est proche de résonance (de l'ordre du 10^6s^{-1}). Le couplage V_C entre l'état discret $6p_{1/2}nl$ et le continuum $6s_{1/2}\epsilon l'$ a été calculé précédemment et nous savons que son carré est de l'ordre du GHz. On peut donc évaluer l'ordre de grandeur du facteur q dans notre cas.

$$q \approx \frac{\Omega}{\sqrt{\Gamma_a \Gamma_p}} \approx 1 \times 10^4 \quad (4.32)$$

Dans ces conditions, la fonction de Fano tend vers une fonction lorentzienne et le profil n'est pas asymétrique.

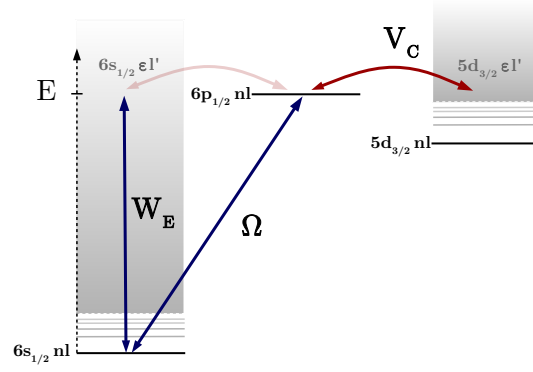


FIGURE 4.11 – Schéma des niveaux en jeu dans l'excitation ICE $6s_{1/2} \rightarrow 6p_{1/2}$ pour l'ytterbium. Ici on ne devrait avoir aucune interférence Fano. Le signal d'ions sera principalement dominé par l'auto-ionisation vers $5d_{3/2}\epsilon l'$.

D'autre part, on a montré dans la section 4.1.3 que, à partir de $6p_{1/2}nl$, le couplage le plus fort est vers le continuum $5d_{3/2}\epsilon l$ du cœur. Or l'excitation directe par photo-ionisation laser de ce continuum n'est pas possible à partir de l'état initial $6s_{1/2}nl$ puisque cela impliquerait un changement de moment $\Delta l_1 = 2$ pour l'atome⁴. Par conséquent, aucune interférence de type Fano ne sera possible lors de l'excitation du cœur isolé $6s_{1/2}nl \rightarrow 6p_{1/2}nl$. En gardant la forme exponentielle dépendante du temps et en réalisant l'approximation $\Omega \gg W_E$, on retrouve la formule familière :

$$S_a = 1 - \exp \left(-\Gamma_a \tau \frac{(\Omega/2)^2}{(\Gamma_a/2)^2 + \delta'^2} \right) \quad (4.33)$$

Aux temps courts, on trouve donc une lorentzienne :

$$S_a \approx \Gamma_a \tau \frac{(\Omega/2)^2}{(\Gamma_a/2)^2 + \delta'^2} \quad (4.34)$$

Pour des durées d'impulsion ICE courtes, nous nous attendons donc à trouver un spectre d'auto-ionisation avec une forme lorentzienne.

Élargissement par déplétion et extrapolation de la largeur à temps nul

À partir d'un ajustement des spectres avec la fonction lorentzienne définie par (4.34), on peut remonter au taux d'auto-ionisation puisque celui-ci s'identifie à la largeur à mi-hauteur. Cependant, comme nous l'avons déjà évoqué, une durée d'impulsion trop longue peut élargir le spectre et peut entraîner une erreur sur l'ajustement du taux d'auto-ionisation. Pour déduire une valeur plus fidèle de la largeur, on mesure les spectres à différentes durées d'impulsion, typiquement de $\tau = 1 \mu s$ à $5 \mu s$. On extrapole ensuite le taux à $\tau = 0$ en faisant un ajustement linéaire du taux d'auto-ionisation par rapport à la durée d'impulsion (voir figure 4.12). L'erreur relative obtenue pour la largeur extrapolée à champ nul est typiquement de 10 % (erreur statistique du fit).

4. L'excitation directe $6s_{1/2}nl \rightarrow 5d_{1/2}\epsilon l'$ est envisageable avec un photon laser et grâce au terme de couplage de l'hamiltonien $1/r^{12}$ qui peut transférer aussi un moment cinétique. Cela étant, nous estimons que ce type de couplage est négligeable devant les autres.

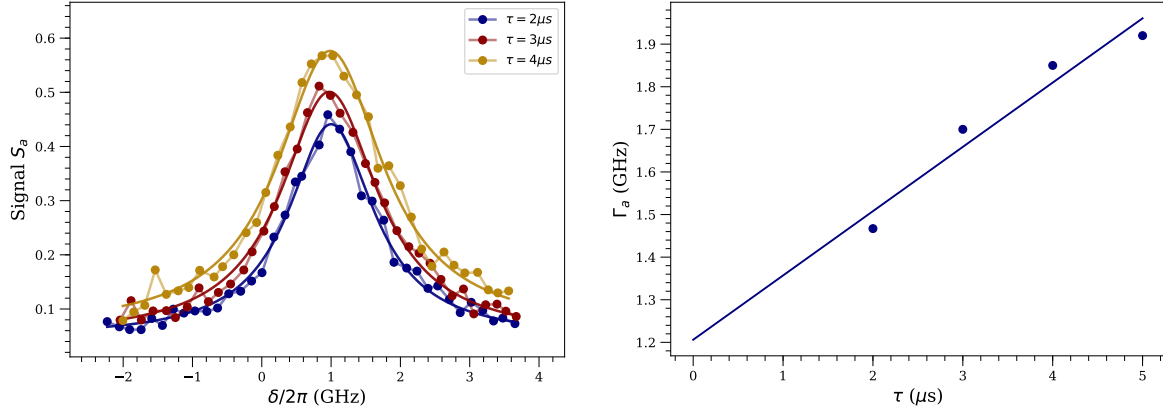


FIGURE 4.12 – À GAUCHE : spectre pour différentes durées d’impulsion du laser ICE. On remarque l’élargissement avec le temps dû à la déplétion des atomes. À DROITE : Largeur en fonction de la durée d’impulsion et ajustement linéaire pour l’extrapolation à temps nul. Ces spectres sont pris sur l’état 40-I.

4.2.4 Étude de l’auto-ionisation des états de faible moment orbital

Mesures préliminaires

Nous avons réalisé une première étude de l’auto-ionisation par excitation du cœur isolé pour les états de faible moment orbital accessibles optiquement $70s^{-1}S_0$ et $70d^{-1}D_2$. Puis, grâce à la méthode de Stark-Switching, nous avons fait des mesures des états $70p^{-1}P_1$ et $70f^{-1}F_3$. Pour toutes ces mesures, les polarisations des faisceaux Rydberg et ICE sont telles que les trois transitions $J_g \rightarrow J_e$ sont possibles lors de l’excitation du cœur⁵. Le déplacement énergétique par rapport à la transition de l’ion devrait être sensiblement différent pour chacune d’entre elle mais nous n’avons jamais pu observer la séparation des sous-niveaux J_e . On en déduit donc que l’écart de déplacement de ces sous-niveaux est faible devant la largeur des pics. On devrait, en revanche, observer un élargissement du spectre dû à la présence de cette structure. Cela étant, les mesures effectuées nous donnent un bon ordre de grandeur des déplacements et des largeurs pour chacun des états Rydberg nl visés.

États	$\Gamma_a/2\pi$ (GHz)	$\delta_0/2\pi$ (GHz)
$70s^{-1}S_0$	1.41	-4.29
$70p^{-1}P_1$	3.29	2.45
$70d^{-1}D_2$	4.14	-0.91
$70f^{-1}F_3$	4.70	2.71

TABLE 4.3 – Données sur les taux d’auto-ionisation $\Gamma_a/2\pi$ et les déplacements énergétiques $\delta_0/2\pi$ par rapport à la transition $6s_{1/2} \rightarrow 6p_{1/2}$ pour les états de moment orbital faible. Attention, l’extrapolation à durée d’impulsion nulle n’a pas été réalisée pour ces états. Les taux $\Gamma_a/2\pi$ réels devraient être sensiblement plus petits.

5. Pour les états de l faible, la dégénérescence des différents niveaux de la structure fine J devrait être levée.

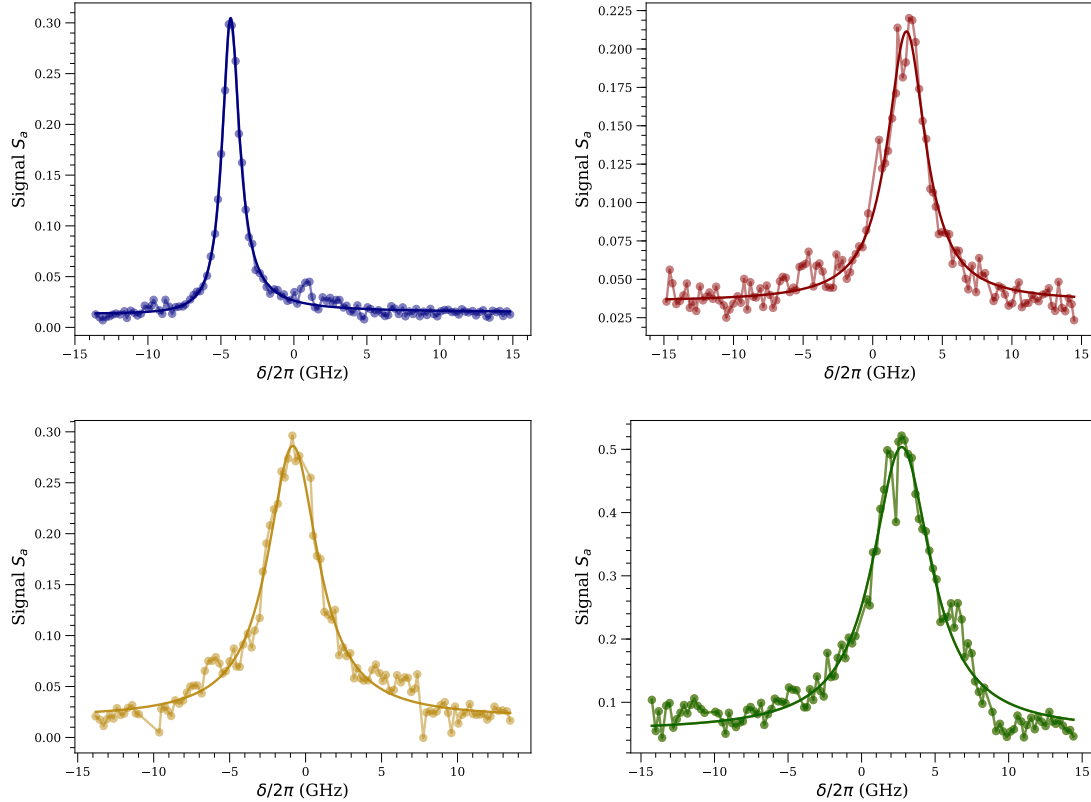


FIGURE 4.13 – Spectres d’auto-ionisation sur les états $70s - ^1S_0$ (bleu), $70p - ^1P_1$ (rouge), $70d - ^1D_2$ (jaune) et $70f - ^1F_3$ (vert). δ est le désaccord du laser par rapport à la transition de l’ion Yb^+ . Un point est ici une moyenne sur 10 points de mesure. Le trait continu est l’ajustement avec une fonction lorentzienne. La durée d’impulsion utilisée pour ces spectres est de $5\mu\text{s}$, et la polarisation du laser ICE est principalement π .

Les résultats sont rassemblés sur la figure 4.13 et sur la table 4.3. Pour tous ces états de Rydberg, la fonction d’onde radiale pénètre le cœur, il en résulte que les interactions entre électron de Rydberg et électron du cœur ionique sont très fortes. En conséquence, le taux d’auto-ionisation est particulièrement fort. Inversement, le temps de vie est très faible, il est de 110 ps pour les états $70s - ^1S_0$ et descend jusqu’à 34 ps pour les états $70f - ^1F_3$. Notons aussi que la loi selon laquelle l’auto-ionisation chute avec le moment orbital de l’électron Rydberg n’est pas encore valable. En effet, l’efficacité de l’auto-ionisation dépend des formes relatives des fonctions d’ondes de Rydberg dans le cœur puisque l’auto-ionisation est liée au recouvrement de la fonction d’onde de l’état auto-ionisant $6pnl$ avec celle du continuum. Or dans le cas des états de faible moment orbital, ce recouvrement n’est pas nécessairement monotone et décroissant avec l .

Les interactions électroniques se font aussi ressentir dans le déplacement énergétique de la raie par rapport à la raie de l’ion $6s_{1/2} \rightarrow 6p_{1/2}$. On remarque ici que ces déplacements énergétiques sont très grands : ils sont de l’ordre de grandeur de l’écart entre deux multiplicités. Notons qu’à partir de ces mesures, on peut déduire le défaut quantique (modulo 1) de la série Rydberg considérée dans la configuration excitée du cœur ionique $6p_{1/2}$.

Dépendance en n du taux d'auto-ionisation

La dépendance du taux d'auto-ionisation avec n a été calculée au chapitre 1 (équations (1.64) et (1.65)). Cette dépendance est essentiellement due à la normalisation des fonctions d'onde radiales Rydberg qui est proportionnelle à $1/n^{3/2}$. Par conséquent, la loi d'échelle pour le taux d'auto-ionisation est :

$$\Gamma_a \propto \frac{1}{n^{*3}} \quad (4.35)$$

Les mesures des taux d'auto-ionisation ont été effectuées sur les états $nd - ^1D_2$ de $n = 50$ à $n = 80$. Comme pour les mesures précédentes, les conditions expérimentales sur la polarisation des faisceaux n'étaient pas optimales : tous les états de la structure fine J_e sont donc excités et en conséquence, chaque transition possible contribue au spectre. Dans la mesure où les états J_e ont des énergies sensiblement différentes, le spectre total est très probablement élargi. Cependant, comme les écarts d'énergie entre niveaux de la structure fine ont aussi une loi d'échelle en n^{-3} , cet élargissement devrait être proportionnellement le même pour tous les n . Par conséquent, l'élargissement ne devrait pas affecter la loi d'échelle mesurée.

Les résultats sont reportés sur la figure 4.14. On constate que le taux suit bien une loi de puissance avec le nombre quantique principal. L'ajustement donne :

$$\Gamma_a \propto \frac{1}{n^{*3.05 \pm 0.18}} \quad (4.36)$$

ce qui est conforme à la théorie (équation 4.35). Notons que cette dépendance du taux d'auto-ionisation avec le nombre quantique orbital n peut, à priori, nous aider à atteindre un état non-auto-ionisant. Mais ceci est sans compter sur le fait que pour pouvoir respecter les conditions d'adiabaticité du Stark-Switching, il est nécessaire d'avoir un écart d'énergie assez grand entre les états de la multiplicité. Or l'échelle d'énergie varie aussi en $1/n^3$. Ainsi, si l'on augmente n , on va à la fois obtenir le premier état non-auto-ionisant à un nombre quantique orbital l plus faible mais en même temps on va limiter notre capacité à atteindre cet état. D'autre part, l'effet Stark – on rappelle que la polarisabilité évolue en n^7 – va aussi gêner si l'on augmente trop n .

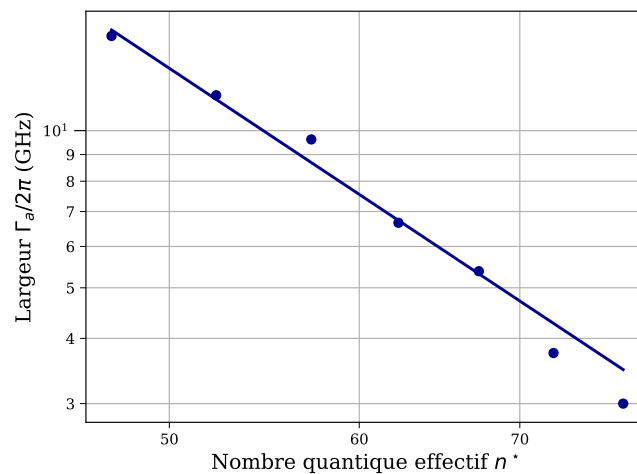


FIGURE 4.14 – Largeur du spectre ICE pour les états $nd - ^1D_2$. Cercles : mesures. Trait continu : ajustement avec une loi de puissance $1/n^{*3.05}$

4.2.5 Étude de l'auto-ionisation des états de grand moment orbital

Présentation des spectres

Les spectres d'auto-ionisation que je vais présenter ici ont été pris sur les états H ($l = 5$), I ($l = 6$), K ($l = 7$), L ($l = 8$) et M ($l = 9$) à $n = 40$ et sont représentés sur la figure 4.15. Les conditions expérimentales ont été précisées dans le paragraphe sur le Stark-Switching et résumées sur la figure 4.8.

En premier lieu, on remarque que l'on retrouve qualitativement les résultats prévus. En effet, le centre des résonances se rapproche de la transition de l'ion Yb^+ en augmentant l comme prévu par la théorie (tableau 4.1). D'autre part la largeur semble diminuer distinctement avec l ce qui est conforme aux calculs théoriques. On reviendra sur ces résultats par la suite. En regardant attentivement les spectres des états L et M , on distingue nettement une asymétrie des spectres : la lorentzienne peine à ajuster les points expérimentaux. Cette asymétrie est explicable par des biais expérimentaux que nous allons essayer de clarifier dans le prochain paragraphe.

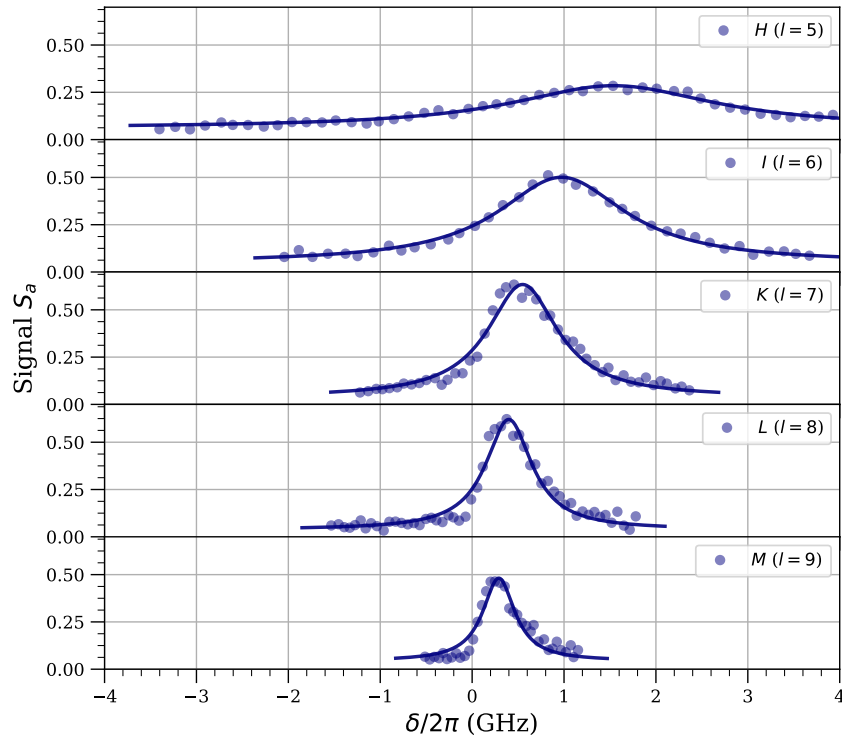


FIGURE 4.15 – Spectre d'auto-ionisation des états de Rydberg 40 – L . δ est le désaccord du laser par rapport à la transition de l'ion Yb^+ seul. Cercle : points expérimentaux moyennés (1 point \approx 10 mesures). Trait continu : ajustement avec une lorentzienne. La durée d'impulsion ICE est de $3 \mu\text{s}$ pour tous les spectres. On remarque que les largeurs diminuent avec l , comme prévu théoriquement. On distingue aussi une asymétrie qui semble augmenter avec l .

Analyse de l'asymétrie des spectres pour les états de grand moment orbital

L'asymétrie des spectres des états L et M ne peut pas être expliquée par un mécanisme de Fano. J'ai montré dans la section précédente que la photo-ionisation est tellement faible que l'interférence est négligeable. En d'autres termes, on a $q \gg 1$. Néanmoins, on voit apparaître une asymétrie dans le spectre de K et incontestablement dans les spectres de L et M . Nous avons donc analysé ces spectres avec une formule de type Fano⁶ afin de quantifier l'asymétrie en fonction des paramètres expérimentaux.

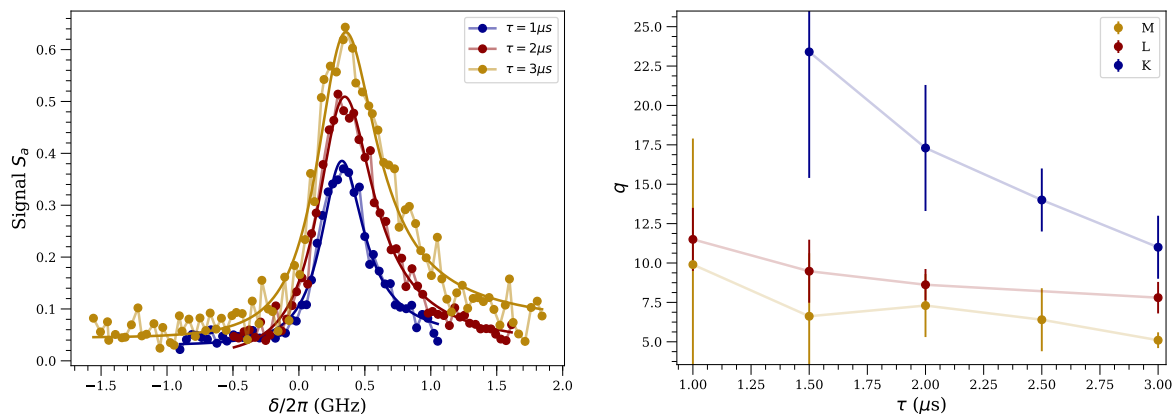


FIGURE 4.16 – À GAUCHE : spectre de l'état $40 - L$ ($l = 8$) (points) pour différentes durées d'impulsion τ et ajustement avec un profil de Fano (trait plein). On remarque l'augmentation de l'asymétrie avec la durée d'impulsion. À DROITE : Dépendance du paramètre d'asymétrie q avec τ pour les états K , L et M . Le paramètre q diminue nettement avec τ , ce qui confirme l'augmentation de l'asymétrie.

Sur la figure 4.16, on peut voir que le paramètre q diminue nettement avec la durée d'impulsion pour les trois états testés. Rappelons que l'augmentation de la durée d'impulsion augmente le nombre d'ions créés dans le nuage de Rydberg par auto-ionisation. D'autre part, nous avons constaté que l'asymétrie augmente aussi avec le délai entre le début de la descente adiabatique du champ et l'impulsion laser d'auto-ionisation. Sur le niveau $40 - L$ et à tout autre paramètre égal, en prenant une durée d'attente de $15\mu s$ on obtient un facteur $q = 15(3)$, à $20\mu s$ on obtient $q = 9.1(5)$ et à $40\mu s$ on obtient $q = 5.5(6)$. Or en augmentant cette durée d'attente, le nombre d'ions présents a aussi augmenté – à cause des collisions de Penning – ce qui est confirmé par l'augmentation de l'offset du spectre avec la durée d'attente (à $40\mu s$ il y a environ 4 fois plus d'ions présents qu'à $15\mu s$). Ceci nous mène à la conclusion que l'asymétrie est corrélée avec le nombre d'ions créés dans le nuage.

Quand un ion est créé dans le nuage, il va induire localement un champ électrique et il semble clair que l'asymétrie des spectres ICE est liée à ce champ. Nous proposons deux possibilités pour expliquer le lien entre l'asymétrie et la présence des ions dans le nuage :

6. Attention, l'utilisation de cette forme de raie est juste utilisée comme un *outil*. En aucun cas une interférence de type Fano n'est en jeu ici.

Hypothèse 1 : Mélange inhomogène des états par champ électrique Par auto-ionisation, des ions sont créés dans le nuage. Il convient d'évaluer si, avec la densité d'atomes de Rydberg que nous avons dans le nuage, le champ crée par un ion peut effectivement affecter la pureté de l'état de l'atome de Rydberg voisin.

La densité typique que nous avons dans le nuage est de 5×10^6 atomes/cm³. Ceci implique que la distance moyenne entre atomes est de $35 \mu\text{m}$. Si un ion est créé dans le nuage, le champ qui va s'appliquer sur l'atome de Rydberg voisin sera donc de 0.015 V/cm. Notons que nous avons évalué le champ à distance moyenne mais en réalité, environ la moitié des paires d'atomes peut être plus proche. Ce champ paraît faible mais il suffit à rentrer dans la zone linéaire de l'effet Stark pour les états de l élevé. Ainsi, les atomes voisins de l'ion vont se retrouver dans des superpositions des états $6s_{1/2}nl$ et $6s_{1/2}n(l \pm 1)$ de type $|6s_{1/2}n\tilde{l}\rangle = a|6s_{1/2}nl\rangle + b|6s_{1/2}n(l-1)\rangle + c|6s_{1/2}n(l+1)\rangle$. Dans la mesure où la distribution spatiale des atomes est très inhomogène, le poids de chaque état dans l'état $|6s_{1/2}n\tilde{l}\rangle$ varie d'un atome à l'autre. Et comme chaque état $|6s_{1/2}n\tilde{l}\rangle$ a un spectre ICE différent, la somme des spectres ICE que nous observons peut être très asymétrique.

Notons que l'effet Stark augmente avec l puisque l'écart d'énergie entre les niveaux à champ nul diminue avec l . Cet effet de mélange devrait donc affecter plus fortement les états de l élevé. Or c'est précisément ce que nous voyons : l'asymétrie est peu présente sur les états H et I , elle est visible sur K et elle est très forte sur L et M .

Hypothèse 2 : Transferts diabatiques Lorsqu'un ion **a** est créé par auto-ionisation, il va induire très rapidement un champ électrique aux alentours puisque l'électron est très mobile et s'éloigne vite (figure 4.17). Un atome de Rydberg **b** dans l'état $6s_{1/2}nl$ se situant à proximité peut alors ressentir brusquement le champ de l'ion et ceci peut induire son transfert diabatique vers un des états voisins $6s_{1/2}n(l \pm 1)$. Ce processus peut se créer à de multiples reprises dans le nuage, si bien qu'au fur et à mesure que des ions sont créés, une proportion non négligeable d'atomes sera transférée dans les états $6s_{1/2}n(l \pm 1)$. Comme le spectre ICE de chacun de ces états possède une largeur et une fréquence centrale différentes, le spectre final, qui est la somme de ces spectres, sera asymétrique.

En premier lieu, vérifions les temps caractéristiques de montée du champ pour l'atome au voisinage de l'ion. L'énergie cinétique emportée par l'électron au moment de l'auto-ionisation est approximativement égale à la différence d'énergie entre les états du cœur ioniques $6p_{1/2}$ et $5d_{3/2}$, *i.e.* $E_K = E_{6p_{1/2}} - E_{5d_{3/2}} \approx 0.5$ eV. La vitesse de l'électron est donc $\approx 4.2 \times 10^5$ m/s. On peut considérer que lorsque l'électron s'est éloigné de $100 \mu\text{m}$, le champ atteint déjà la valeur de celui de l'ion seul (ceci est motivé par le fait que la distance typique entre les atomes dans le nuage est d'environ 20 - 50 μm). Le temps de montée typique du champ est alors d'environ 100 ps. Ceci est extrêmement rapide. Si l'amplitude du champ est suffisante, un transfert diabatique est très probable.

Nous avons déjà évalué le champ électrique crée par un ion sur un atome de Rydberg voisin : celui-ci devrait être proche de 0.015 V/cm et permet de sortir de la zone quadratique de l'effet Stark. Le transfert de l'atome vers un état $6s_{1/2}n(l \pm 1)$ est donc probable.

Ce mécanisme de transfert diabatique peut malheureusement affecter les spectres. Notons que, comme l'autre mécanisme, ce mécanisme est critique pour les valeurs de l grandes puisque la probabilité de transfert diabatique est d'autant plus élevée que l'écart entre les états $6s_{1/2}nl$ et $6s_{1/2}n(l \pm 1)$ est petit. Ceci expliquerait aussi le fait que l'asymétrie semble augmenter avec l .

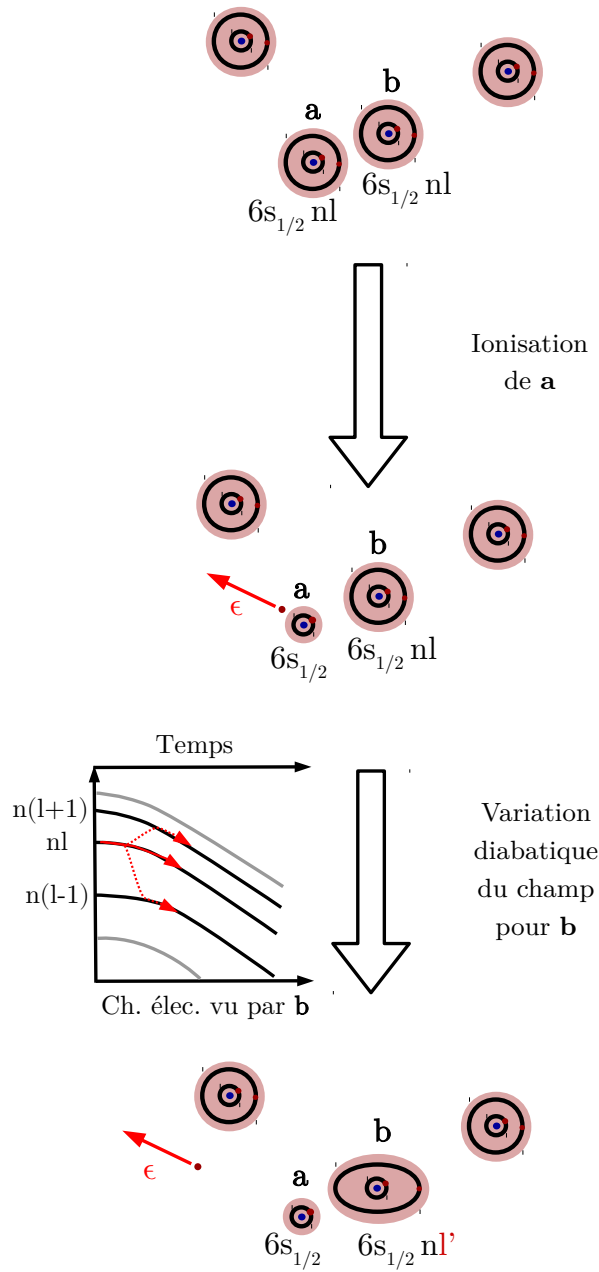


FIGURE 4.17 – Schéma du mécanisme du transfert diabatique (hypothèse 2) d'un état $6s_{1/2}nl$ vers un état $6s_{1/2}n(l \pm 1)$ par création d'ion dans le nuage

À priori, il sera possible de déterminer expérimentalement lequel des deux mécanismes est principalement en jeu dans notre expérience. En effet, il suffit de réaliser une spectroscopie micro-onde autour de la transition $6s_{1/2}nl \rightarrow 6s_{1/2}(n+1)(l \pm 1)$ juste après la phase d'excitation du cœur isolé. L'idée étant que si les atomes sont dans la multiplicité suivante, il seront séparables par ionisation sélective.

Le résultat de cette spectroscopie pourra nous éclairer. Si l'on obtient deux pics, seules les transitions $6s_{1/2}nl \rightarrow 6s_{1/2}(n+1)(l \pm 1)$ ont lieu : il n'y a donc pas de transfert diabatique et l'hypothèse 1 est confirmée. Si l'on obtient plus de deux pics, cela signifie que d'autres transitions ayant pour états initiaux $6s_{1/2}n(l \pm 1)$ ont eu lieu : on confirme alors l'hypothèse 2.

Discussion sur les erreurs expérimentales

Une évaluation de l'erreur due à ces effets de charge sur les paramètres mesurés serait spéculative car il est très difficile de quantifier les mélanges Stark ou les proportions d'atomes transférés vers les états $l \pm 1$. Cela étant, l'extrapolation à durée d'impulsion nulle devrait considérablement réduire ces effets de charges puisque, à temps nul, la proportion d'ions créés est négligeable. Par conséquent, nous garderons les mesures des états L et M dans l'analyse des résultats.

Concernant l'incertitude sur le déplacement en énergie de la transition, elle est dominée par l'incertitude sur la connaissance de la fréquence de transition $6s_{1/2} \rightarrow 6p_{1/2}$ qui est d'environ 100 MHz. Une autre erreur majeure de notre mesure est due au fait que nous ne savons pas quel état K nous créons lors de l'excitation Rydberg. Comme on peut le voir sur le tableau 4.1, l'écart entre les deux états K est de l'ordre de 100 MHz pour H et diminue rapidement avec le moment orbital. À titre indicatif, nous donnerons donc une incertitude à 100 MHz mais celle-ci pourrait être sensiblement plus élevée.

Concernant l'incertitude sur la largeur, elle sera dominée par l'erreur que nous faisons en extrapolant à temps nul. Il est difficile de la quantifier et encore une fois, une évaluation serait spéculative. Par conséquent, nous ne donnerons pas de barres d'erreur pour ces mesures.

Analyse des déplacements d'énergie

Les résultats pour les déplacements d'énergie sont rassemblés sur la figure 4.18. Notons que pour les états dont le spectre est très asymétrique (L et M), nous avons pris la fréquence du maximum du spectre au lieu de la valeur de la fréquence centrale ajustée par le modèle lorentzien. Le décalage mesuré par rapport à la transition de l'ion correspond au décalage calculé théoriquement que l'on a rapporté dans le tableau 4.18 :

$$\Delta E = (E_{6p_{1/2}nl} - E_{6s_{1/2}nl}) - (E_{6p_{1/2}} - E_{6s_{1/2}}) = E_{6p_{1/2}n_2l_2}^{(2,dip)} - E_{6s_{1/2}n_2l_2}^{(2,dip)} \quad (4.37)$$

Rappelons que ces calculs théoriques sont fait sans variables d'ajustement. Leur incertitude est difficilement évaluable. Il est néanmoins clair que le fait d'avoir négligé les contributions quadrupolaires va induire une erreur conséquente. Parmi elles, la contribution principale est celle de l'état $6p_{3/2}$ qui se situe environ 100 THz au dessus de l'état $6p_{1/2}$. Pour se faire une idée de l'erreur typique que cela peut induire, on peut étudier le cas du baryum où la contribution quadrupolaire a été calculée pour l'état $6p_{1/2}$ [21]. Pour l'état I , celle-ci vaut 30 % du shift total, puis elle baisse rapidement avec l : pour

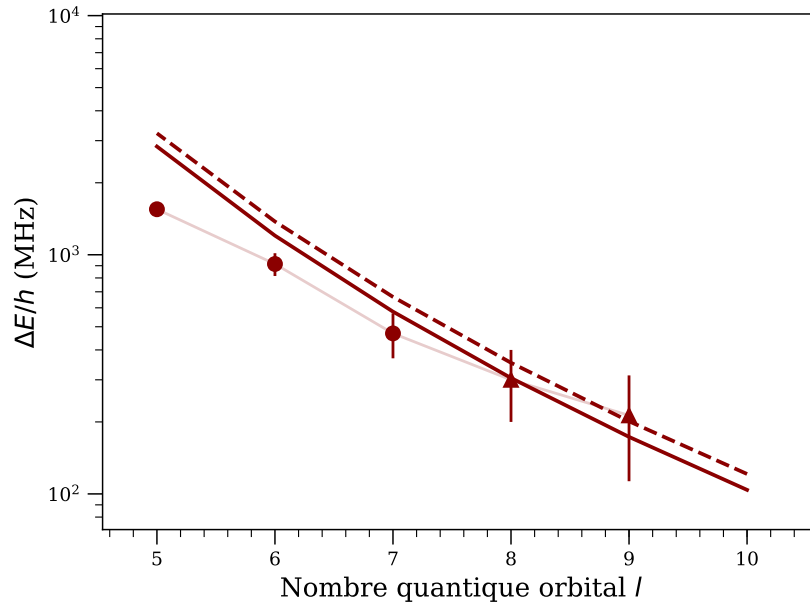


FIGURE 4.18 – Décalage en énergie de la transition $6s_{1/2}nl \rightarrow 6p_{1/2}nl$ par rapport à la transition de l'ion Yb^+ . En trait continu, théorie pour $K = l - 1/2$. En trait pointillé : théorie pour $K = l + 1/2$. Points : mesures expérimentales.

l'état L elle vaut seulement 8 %. La diminution plus rapide du terme quadrupolaire par rapport au terme dipolaire est due au fait que l'intégrale sur l'électron Rydberg $\langle 1/r^6 \rangle$ décroît plus vite avec l que $\langle 1/r^4 \rangle$. Globalement, on s'attend donc à avoir une erreur aux alentours de quelques dizaines de % à l faible.

Au premier regard, on vérifie que nos résultats expérimentaux satisfont qualitativement la théorie. On remarque cependant que les mesures pour H et I sont éloignées – au delà de l'incertitude expérimentale – de la courbe théorique. On reconnaît l'erreur que l'on avait prévue sur les l faibles. Notons que comme l'état $6p_{3/2}$ est au dessus en énergie, il va effectivement faire diminuer l'énergie de $6p_{1/2}nl$, rapprochant ainsi la courbe théorique des points expérimentaux. L'inclusion du terme quadrupolaire est possible mais nous ne sommes pas en mesure de calculer l'élément de matrice $\langle 6p | r^2 | 6p \rangle$ de manière précise.

Même si les résultats ne sont pas excellents, l'accord entre théorie et expérience est relativement bon. Cette étude nous confirme que le calcul perturbatif à partir du modèle à électrons indépendants reste tout à fait valable pour l'ytterbium.

Analyse des taux d'auto-ionisation

Les taux d'auto-ionisation que nous avons mesurés sont reportés sur la figure 4.19. On constate que les mesures reproduisent qualitativement les résultats théoriques : d'une part l'ordre de grandeur est correct, et d'autre part la tendance décroissante est vérifiée. On remarque cependant que la pente expérimentale est plus faible que celle théorique. Nous ne sommes pas en mesure d'expliquer cette différence de manière certaine, mais nous allons donner quelques pistes de réflexion :

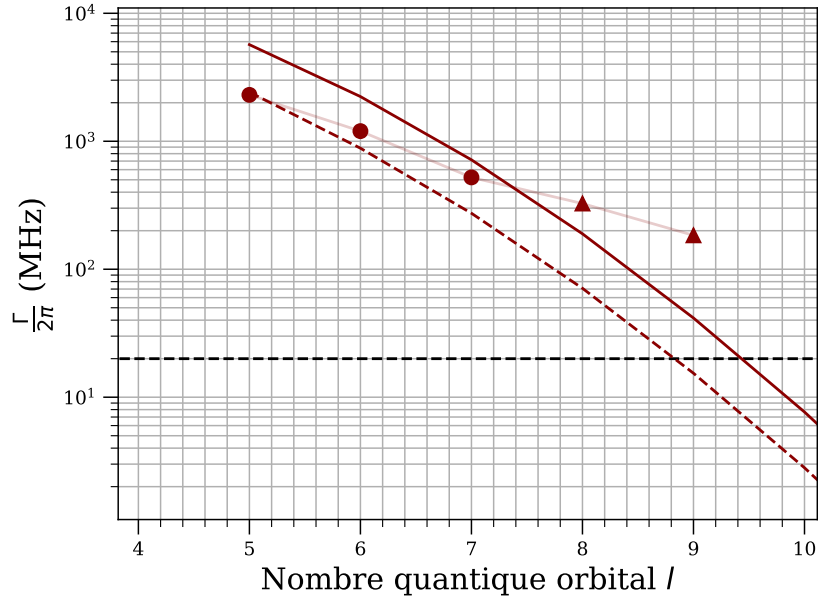


FIGURE 4.19 – Taux d'auto-ionisation mesurés et théoriques des états $6p_{1/2}nl$. En ligne continue : théorie pour $K = l - 1/2$. En ligne pointillée : théorie pour $K = l + 1/2$. Points : mesures expérimentales. La ligne pointillée noire marque le taux de décroissance radiative de l'état $6p_{1/2}$.

- L'erreur pourrait être expérimentale. Si malgré l'extrapolation à temps nul, les effets de charges sont toujours présents, les spectres mesurés pourraient être fortement élargis. Comme nous l'avons vu précédemment, ces effets de charges augmentent fortement avec l . Ceci pourrait expliquer la faible décroissance de la largeur, et donc du taux d'auto-ionisation.
- L'erreur pourrait être théorique. Dans le calcul des taux d'auto-ionisation, nous avons fait l'approximation que la fonction d'onde radiale pour l'électron Rydberg est une fonction hydrogénoïde. Les éléments de matrice $\langle nl | r^{-2} | \epsilon l' \rangle$ sont très sensibles à la valeur de la fonction d'onde à r faible, c'est-à-dire à proximité du cœur ionique. Or nous savons, de fait, que l'approximation des fonctions d'onde hydrogénoïdes est mauvaise dans cette zone. Cette approximation pourrait donc être limitante dans le calcul des taux d'auto-ionisation. D'autre part, nous avons négligé la contribution du couplage avec le continuum $4f^{13}5d6s^3[3/2]_{5/2} \epsilon l'$ qui est à un ordre supérieur (opérateur à trois électrons) mais qui pourrait être non négligeable. Une dernière éventualité est que la série $6p_{1/2}nl$ soit perturbée à $n = 40$ par un état plus fortement auto-ionisant que $6p_{1/2}nl$.

Pour conclure, cette étude a permis de montrer une chose importante : la dépendance du taux d'auto-ionisation avec le moment orbital est beaucoup moins favorable sur l'ytterbium que sur le baryum. Dans l'ytterbium, l'état $5d_{3/2}$ est proche de l'état $6p_{1/2}$ et ceci favorise l'auto-ionisation vers le continuum $5d_{3/2}\epsilon l'$. La dépendance en l est alors beaucoup plus faible. Par conséquent, le premier état $6p_{1/2}nl$ dont le taux d'auto-ionisation est négligeable devant le taux de désexcitation radiative possède un moment orbital l relativement grand $l \geq 12$. Ce résultat est confirmé par l'expérience. Cette étude a aussi montré

la difficulté de travailler avec ces états de grand moment orbital à cause des perturbations très fortes provoquées par les charges dans le nuage. Par conséquent, nous envisageons d'utiliser des états circulaires $n, l = n - 1, m = l$, qui présentent l'avantage de ne pas se mélanger aux autres états en champ électrique. L'excitation de ces états circulaires [39] est difficile à mettre en place mais devrait être réalisable avec notre dispositif expérimental.

4.3 Perspectives : piégeage optique des atomes de Rydberg

La transition du cœur isolé devrait permettre le piégeage optique des atomes dans l'état de Rydberg. Le principe du piège optique par force dipolaire repose sur l'utilisation d'un laser désaccordé par rapport à une transition atomique. Suivant le signe de ce désaccord, les atomes vont subir un potentiel piégeant ou anti-piégeant dans les zones de forte intensité laser. Cette technique joue un rôle majeur en physique des atomes ultra-froids puisqu'elle permet un contrôle de la distribution spatiale des atomes. Par exemple, les pièges optiques harmoniques sont couramment utilisés dans les dispositifs pour former des condensats de Bose-Einstein. Les réseaux optiques, pièges dipolaires périodiques, sont aussi très intéressants dans la mesure où ils permettent de reconstituer artificiellement les structures périodiques de la physique de la matière condensée (matrices cristallines). Ces techniques de piégeage optique sont fondamentales pour le développement de la simulation quantique. Notre technique de piégeage par polarisabilité du cœur ionique induite par laser est donc très intéressante dans la mesure où elle permettrait le piégeage des atomes de Rydberg de manière très efficace .

Dans cette section, nous présenterons brièvement la technique de piège optique par force dipolaire. On reprendra, pour ce faire, l'exposé situé dans l'article de revue [86]. On reviendra ensuite sur les particularités que présentent les atomes de Rydberg par rapport aux états fondamentaux pour le piégeage optique.

4.3.1 Force optique et polarisabilité dynamique des lasers

Le piège dipolaire est basé sur la force dipolaire exercée sur un nuage atomique par un laser loin de résonance par rapport à une ou plusieurs des transitions de l'atome. Le champ électrique du laser \vec{E} induit un moment dipolaire atomique \vec{p} qui va osciller à la pulsation laser ω_L et qui a pour expression :

$$\vec{p} = \alpha_i(\omega_L)\vec{E}(\vec{r}) \quad (4.38)$$

où α_i est la polarisabilité dynamique de l'atome dans l'état atomique i et dépend fortement de la pulsation laser (ou plus précisément de son écart aux résonances atomiques). Le dipôle atomique induit interagit avec le champ laser, ce qui crée un potentiel pour l'atome qui a pour expression [86] :

$$U_{dip} = -\frac{1}{2}\langle\vec{p}\vec{E}\rangle = -\frac{1}{2\epsilon_0 c} \text{Re}[\alpha_i(\omega_L)] I(\vec{r}) \quad (4.39)$$

où \vec{p} est le moment dipolaire électrique induit par le laser. Ainsi le laser va exercer une force sur les atomes, donnée par $\vec{F}_{dip} = -\vec{\nabla}U_{dip}$. La polarisabilité α_i atomique peut être

calculée en considérant un atome soumis à un laser loin de résonance de manière semi-classique. Celle-ci a pour expression [86] :

$$\alpha_i(\omega_L) = \sum_f 6\pi\epsilon_0 c^3 \frac{\Gamma_{fi}/\omega_{if}^2}{\omega_{if}^2 - \omega_L^2 - i(\omega_L^3/\omega_{if}^2)\Gamma} \quad (4.40)$$

où l'on a pris en compte les contributions de tous les niveaux finaux f à la polarisabilité totale de l'atome dans le niveau i . Si l'on considère que le laser est très loin de résonance ($\delta \gg \Gamma$), la partie réelle peut alors se mettre sous la forme :

$$\boxed{\text{Re}[\alpha_i(\omega_L)] = \sum_f \frac{3\pi\epsilon_0 c^3}{\omega_{if}^3} \left(\frac{\Gamma_{fi}}{\omega_{if} + \omega_L} + \frac{\Gamma_{fi}}{\omega_{if} - \omega_L} \right)} \quad (4.41)$$

4.3.2 Le cas particulier des Rydberg, calcul des longueurs d'onde magiques

Pour évaluer les avantages et les inconvénients de notre technique et calculer les longueurs d'onde magiques, nous nous sommes inspirés de l'article de l'équipe de Matt Jones à Durham [18] qui traite le cas du strontium.

La polarisabilité des niveaux du cœur ionique

Le piégeage des atomes de Rydberg à deux électrons de valence repose sur la polarisabilité dynamique du cœur ionique. En d'autre terme, l'effet de piégeage prédominant sera dû au désaccord laser par rapport aux transitions du cœur ionique. Tout l'intérêt de notre technique réside dans le fait que le potentiel de piégeage peut être très fort tout en étant loin de résonance puisque la largeur des niveaux ioniques (et donc la force des transitions) est grande. En effet, celle-ci est comparable aux largeurs des premiers niveaux excités des atomes alcalins. Par exemple, la largeur du premier niveau excité ($6p_{1/2}$) est de $2\pi \times 20$ MHz. Ainsi le piégeage s'appliquera de manière efficace. D'autre part, le piégeage s'appliquera de manière quasi-identique pour n'importe quel niveau Rydberg ce qui est un atout considérable si l'on veut étudier des mécanismes de transfert. Notons que l'auto-ionisation n'est pas un problème ici, puisque l'on excite pas directement un niveau auto-ionisant. Par conséquent, cette technique de piégeage pourra s'appliquer sur n'importe quel état de Rydberg : elle n'est pas réservée strictement aux états de grand moment orbital.

La force pondéromotrice

La polarisabilité du cœur ionique n'est pas la seule contribution. En effet, il faut aussi tenir compte de la force pondéromotrice du laser sur l'électron Rydberg. Le potentiel pondéromoteur d'un laser sur un électron libre s'écrit :

$$U_p = -\frac{\alpha_p}{2} E^2(\vec{r}) \quad (4.42)$$

avec $\alpha_p = -\frac{e^2}{2m_e\omega_L^2}$ la polarisabilité pour un électron libre. Ce potentiel va s'appliquer sur l'électron Rydberg et va donc être transféré par inertie sur l'atome. La contribution à la polarisabilité totale évolue en $1/\omega_L^2$ et sera donc importante pour les grandes longueurs d'onde. Dans notre cas, les longueurs d'onde qui vont nous intéresser seront relativement courtes $\lambda < 600$ nm, la force pondéromotrice sera donc négligeable devant la force dipolaire.

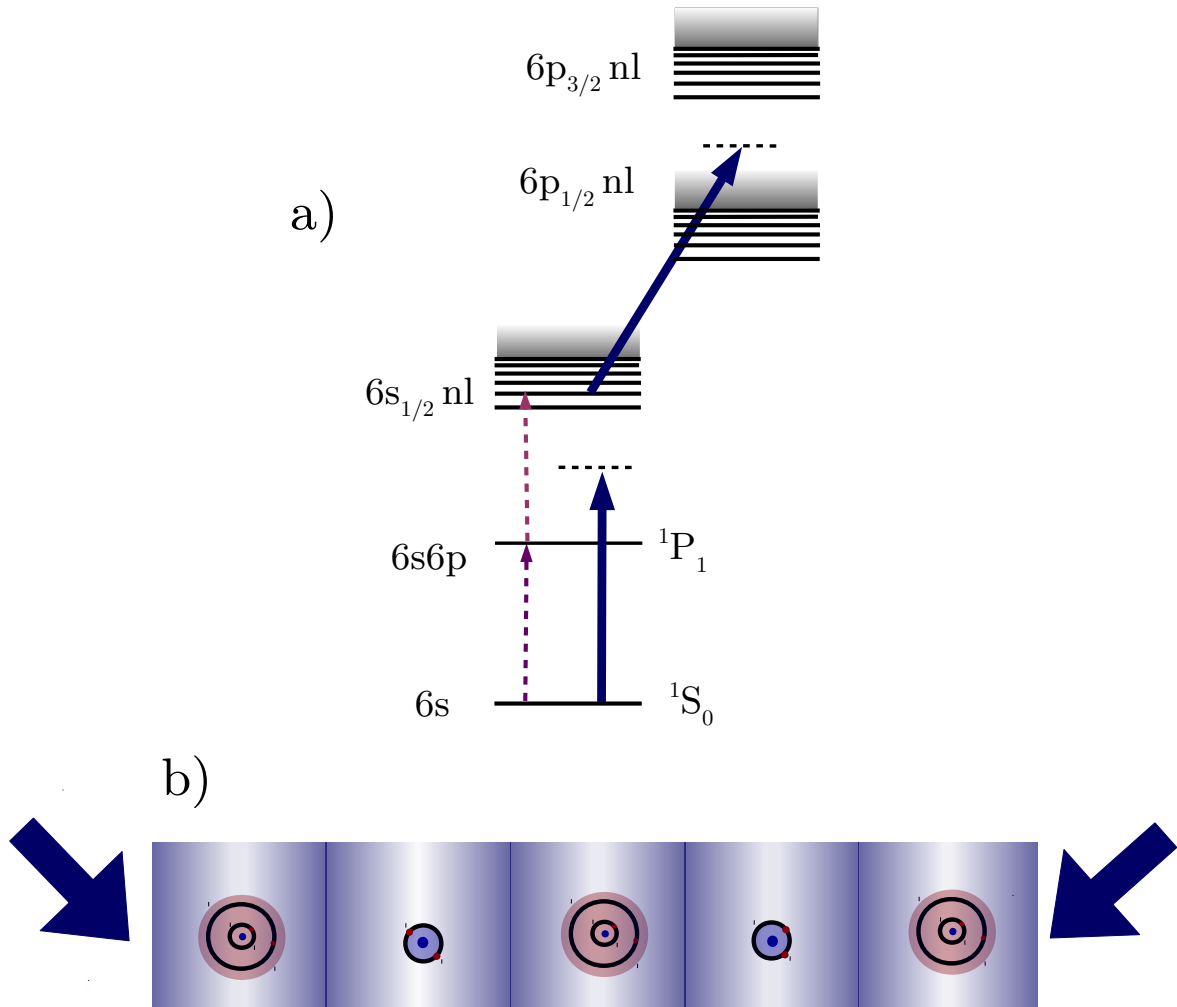


FIGURE 4.20 – EN HAUT : Schéma des niveaux en jeu pour le piégeage des atomes de Rydberg en longueur d'onde magique. EN BAS : Réseau optique 1D d'atomes piégés en longueur d'onde magique. La profondeur de piège est la même pour les atomes dans l'état fondamental et pour les atomes dans l'état de Rydberg.

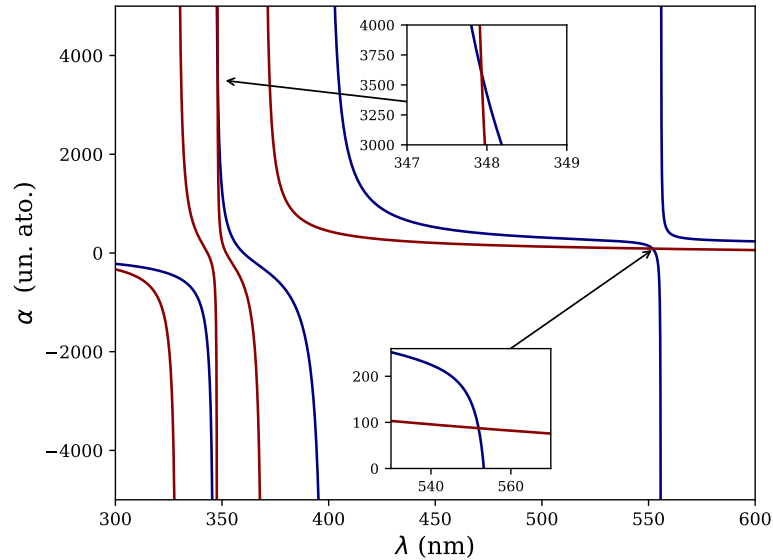


FIGURE 4.21 – Polarisabilité dynamique α_i pour l'ytterbium Yb dans l'état fondamental $6s^2 \ ^1S_0$, en bleu. En rouge, polarisabilité dynamique de l'Yb dans un état de Rydberg, c'est à dire la somme de la polarisabilité du cœur ionique Yb^+ dans l'état fondamental $6s_{1/2}$ et de la polarisabilité due à la force pondéromotrice. On distingue deux longueurs d'onde magiques (longueurs d'onde pour lesquels les polarisabilités sont égales).

Longueur d'onde magique

Il peut être intéressant de trouver une *longueur d'onde magique* de piégeage, pour laquelle la polarisabilité de l'atome dans l'état fondamental et dans l'état de Rydberg est la même. Ceci permettrait de piéger l'atome à la même profondeur dans les deux états, ce qui est indispensable si l'on veut réaliser des expériences d'habillage Rydberg puisqu'il faut alors créer des superpositions cohérentes des deux états. Nous avons donc calculé la polarisabilité pour l'atome d'ytterbium dans l'état fondamental et dans l'état de Rydberg. Les résultats sont reportés sur la figure 4.21.

Les longueurs d'onde magiques sont celles pour lesquelles on a une intersection entre les polarisabilités des deux états :

- 551.9 nm
- 347.9(5) nm

Cette dernière est la plus intéressante puisque la polarisabilité correspondante est très grande, cela permettrait donc de piéger très efficacement les atomes. Notons aussi que cette longueur d'onde serait piégeante (par opposition à anti-piégeante) ce qui est indispensable pour réaliser des pinces optiques. L'incertitude sur la largeur des niveaux $4f^{13}5d6s^{(2)}$ de l'atome et de l'ion est très grande et limite la précision sur la connaissance de la longueur d'onde magique. L'incertitude a été évaluée en faisant varier la largeur du niveau $4f^{13}5d6s^{(2)}$ de l'ion et de l'atome du simple au double et en regardant l'impact que cela produit sur la position de la longueur d'onde magique. Idéalement, il faudrait réaliser une mesure expérimentale pour la déterminer précisément.

À cette longueur d'onde, un laser puissant et fin spectralement est un véritable défi technologique. Nous sommes donc en discussion avec des compagnies laser pour évaluer

les possibilités offertes. Il est probable que le choix se porte sur un laser autour de 1043 nm qui sera triplé en fréquence.

Piège à 532 nm ?

Les laser YAG doublés à 532 nm sont très utilisés et ont l'avantage d'offrir une grande puissance (10-25 W!). Bien que ce ne soit pas une longueur d'onde magique, un piège à cette longueur d'onde présente certains avantages. En plus des grandes puissances disponibles, il offrirait aussi la possibilité d'exciter sélectivement les atomes dans le piège optique. En effet, le laser piégeant a pour effet d'induire un déplacement lumineux de la résonance Rydberg. On peut voir dans l'insert de la figure 4.21 que la polarisabilité, et donc le déplacement lumineux, est deux fois plus forte sur l'état fondamental que sur l'état Rydberg. Ainsi, en piégeant préalablement les atomes dans l'état fondamental, la longueur d'onde d'excitation Rydberg pourra être ajustée pour exciter uniquement les atomes dans le piège sans exciter les autres atomes. Un piège à cette longueur d'onde offre donc des perspectives intéressantes.

Effets indésirables dus au laser piégeant

Le laser piégeant induit des pertes des atomes dans l'état de Rydberg. Il convient donc d'évaluer les différents processus de pertes qu'il pourrait induire. Pour évaluer ces effets, on se place dans le cas d'un piège dipolaire à 347.8 nm avec un waist de 50 μm , une puissance laser de 10 W⁷ et des atomes dans l'état de Rydberg 40s. Notons que dans ces conditions, on piège les atomes très profondément (≈ 2 mK). Les effets pris en compte ici sont :

- La *photo-ionisation* induite par le laser piégeant. En effet, pour piéger efficacement les atomes, il faut en général focaliser le laser de manière à obtenir une intensité forte. Dans les conditions mentionnées plus haut, le taux de photo-ionisation est de $\Gamma_{PI} = 572s^{-1}$ ce qui est très faible devant le taux de désexcitation radiative spontanée de l'atome. Ce faible taux de photo-ionisation est expliqué par le fait qu'à 347.8 nm, on arrive très loin dans le continuum ! Par ailleurs, il est peu dépendant de l mais très dépendant de n : il suit une loi en n^{-3} . À $n = 20$, on atteint $\Gamma_{PI} = 4274s^{-1}$, ce qui est toujours très faible. Cet effet ne devrait donc pas nous limiter.
- L'*auto-ionisation*. En effet, lorsque l'on applique le laser piégeant, on habille l'état de Rydberg $6snl$ par laser. Celui-ci contient alors une portion des états excités du cœur ionique. Or ces états sont très probablement auto-ionisants. En l'occurrence, à la longueur d'onde magique de 347.9 nm, l'état Rydberg est principalement mélangé avec l'état $4f^{13}5d6snl'$. Une vision équivalente est de considérer que l'atome dans l'état piégé va en moyenne absorber des photons du laser piégeant est donc se retrouver dans l'état excité. Comme l'état excité $4f^{13}5d6snl'$ auto-ionise très rapidement, le taux d'auto-ionisation effectif s'identifie au taux d'absorption [86] :

$$\Gamma_a^{(eff)} = \frac{1}{\hbar\epsilon_0 c} \text{Im}[\alpha] I \quad (4.43)$$

Pour le piège à 347.9 nm et avec les conditions d'intensité précédemment citées, on trouve un taux d'auto-ionisation égal à $1607 s^{-1}$. En l'occurrence, il devrait dépendre

7. On prend volontairement une grande puissance pour maximiser les effets indésirables. Dans la réalité et avec les technologies laser actuelles, une puissance de 5 W serait déjà très bien.

de l . En effet, pour les états de grand moment orbital, le taux d'auto-ionisation peut être très inférieur à ce taux d'absorption, et le taux de pertes $\Gamma_a^{(eff)}$ sera "limité" par le taux d'auto-ionisation. Dans tous les cas, on constate que cet effet est encore une fois négligeable devant la désexcitation radiative spontanée.

- La *désexcitation radiative* du niveau Rydberg induite par le laser. Cet effet devrait être très faible puisque le laser sera très désaccordé par rapport aux transitions possibles. Pour l'état $40s - ^1S_0$ et à la longueur d'onde magique de 347.8 nm, on sera à 100 THz de la transition $6s40s - ^1S_0 \rightarrow 6s6p - ^1P_1$ et donc l'effet sera une fois de plus négligeable devant la désexcitation spontanée.

Tous ces effets indésirables sont négligeables devant la désexcitation spontanée qui est de toute façon la limite ultime pour la durée des expériences. Le piégeage des atomes de Rydberg offre donc des perspectives intéressantes pour le futur de l'expérience.

Conclusion

Dans ce chapitre, nous nous sommes concentrés sur la technique de l'excitation du cœur isolé des atomes divalents dans le but d'introduire une nouvelle approche pour la manipulation des atomes dans l'état de Rydberg.

Nous avons utilisé un modèle à électrons indépendants pour décrire les états de Rydberg de grand moment orbital de l'ytterbium. À partir de ce modèle et en utilisant une méthode perturbative, nous avons calculé les décalages en énergie des transitions du cœur ionique par rapport à l'ion Yb^+ indépendant. L'excitation du cœur conduit à l'auto-ionisation de l'atome. Ceci est dû au couplage entre l'électron Rydberg et l'électron du cœur ionique. À l'aide d'une méthode perturbative, nous avons aussi calculé le taux d'auto-ionisation Γ_a pour les états de grand moment orbital à $n = 40$. Nous avons montré que la dépendance de Γ_a avec l est plus lente sur l'ytterbium que sur l'atome de baryum. Cependant, à partir de $l = 12$, l'auto-ionisation est négligeable devant le temps de vie radiatif : l'imagerie des Rydberg par fluorescence du cœur ionique serait envisageable en utilisant cet état et tous les états de $l > 12$.

L'étude expérimentale de l'excitation du cœur isolé de l'ytterbium a été réalisée sur les états de grand moment orbital de $l = 5$ à $l = 9$ à $n = 40$. La transition du cœur ionique utilisé est $6s_{1/2} \rightarrow 6p_{1/2}$ à 369 nm. L'accord entre théorie et expérience est qualitativement bon : on retrouve bien la décroissance du taux d'auto-ionisation avec l . Pour les états $l = 8$ et $l = 9$, une asymétrie des spectres est constatée et celle-ci est corrélée au nombre d'ions créés dans le nuage. Ce phénomène est expliqué par le fait qu'à chaque apparition d'un ion dans le nuage, le champ induit par l'ion perturbe les atomes voisins et peut provoquer des transferts diabatiques ou des mélanges Stark de l'état $6snl$. Nous avons ainsi mis en évidence la difficulté de travailler avec ces états de grand moment orbital dans des nuages d'atomes froids. Une étude plus poussée vers des états de plus grand moment orbital ($l > 12$) devra être réalisée car il est très probable que la baisse de l'auto-ionisation amène finalement à la diminution de ces effets de charges. Par ailleurs, en derniers recours, les états circulaires $n, l = n - 1, m = l$ restent de très bons candidats pour l'imagerie par fluorescence du cœur. En effet, ces états ne sont assurément pas auto-ionisants et d'autre part, ils ne se couplent pas aux autres états en champ électrique. Ainsi, si l'on réalise les expériences en champ électrique, on pourra conserver un état l pur et les quelques ionisations qui pourront se produire n'induiront pas de transferts puisque les écarts énergétiques avec les états voisins seront grands.

Pour finir, nous avons présenté quelques considérations théoriques sur la possibilité de piéger efficacement des atomes de Rydberg en jouant sur la polarisabilité dynamique du cœur ionique. Nous avons notamment mis en évidence l'existence de longueurs d'onde magiques. Cette technique de piégeage ouvre de nouvelles perspectives expérimentales et pourrait permettre la réalisation d'expériences de matière froide en interaction longue portée dans des réseaux optiques.

Conclusion générale

Dans le premier chapitre, j'ai présenté quelques éléments indispensables à la compréhension de la physique des atomes de Rydberg. Dans ce chapitre, nous avons rappelé deux éléments essentiels qu'apportent ces atomes très excités : le premier élément tient dans les interactions fortes et longue portée que présentent ces atomes. Celles-ci permettent d'induire des corrélations quantiques dans le gaz atomique. Le second élément est l'accordabilité. En effet, la possibilité d'accorder les niveaux d'énergie des états de Rydberg par application d'un champ électrique présente un intérêt considérable, puisque cela permet d'influer sur les propriétés d'interaction. Ces deux éléments sont très attrayants pour le domaine de la simulation quantique avec des atomes ultra-froids. Cependant, transposer les techniques habituelles de piégeage et d'imagerie que l'on utilise dans ce domaine de recherche aux atomes de Rydberg est un défi expérimental. Notre approche consiste à utiliser un atome à deux électrons de valence : l'ytterbium. L'apport des atomes divalents se manifeste par la présence des transitions du cœur ionique. Celles-ci peuvent être utilisées pour piéger et imager les atomes dans l'état de Rydberg.

Dans le second chapitre, j'ai rapporté les avancées obtenues pendant ma thèse sur le montage du dispositif expérimental. Celui-ci est composé des éléments typiques d'une expérience d'optique atomique. Le jet atomique est décéléré dans un ralentisseur Zeeman, puis collimaté dans une mélasse 2D à la suite de laquelle les atomes sont chargés dans un piège magnéto-optique 3D (MOT). Avec ce dispositif, nous chargeons des nuages d'atomes froids comportant $10^6 - 10^7$ atomes de manière très stable. Cela étant, à cause de problèmes liés à la pression résiduelle dans la chambre, la séquence expérimentale de refroidissement et de piégeage n'a pas pu être optimisée. Ceci méritera, à l'avenir, un travail approfondi pour atteindre les performances obtenues par d'autres équipes travaillant sur l'ytterbium [35, 64]. Dans ce chapitre, j'ai aussi présenté la partie du dispositif spécifique aux atomes de Rydberg. Celle-ci est montée dans l'enceinte du MOT 3D. Elle est constituée d'un système d'électrodes complet et d'un MCP permettant la détection des atomes de Rydberg par ionisation. De plus, un système de lentilles sous vide et de nombreux accès optiques nous permettrons, à l'avenir, de piéger les atomes de Rydberg par laser et de les imager par fluorescence du cœur ionique.

Le troisième chapitre est consacré au travail expérimental réalisé sur la spectroscopie de l'ytterbium, prérequis indispensable pour mener à bien les expériences d'atomes de Rydberg. La structure de niveaux des atomes divalents est plus complexe que celle des alcalins à cause des interactions entre électrons de valence. Dans cette étude, nous nous intéressons principalement aux séries Rydberg de la configuration fondamentale $4f^{14}6s$ du cœur ionique. À cause des corrélations électroniques, ces séries peuvent se coupler à des séries correspondant à des configurations excitées du cœur. Ceci va mener à des perturbations des niveaux d'énergie des séries Rydberg. Le cadre théorique dans lequel

on se place pour décrire la spectroscopie est la théorie du défaut quantique à plusieurs voies (MQDT). Au cours de la thèse d'Alexandre Zuliani, un programme implémentant cette théorie a été réalisé. Grâce à ce programme MQDT et à l'aide de nouvelles mesures spectroscopiques, nous avons entrepris une analyse complète des séries Rydberg. Les mesures de spectroscopie optiques ont été réalisées sur les séries $6sns - ^1S_0$, $6snd - ^1D_2$ et $6snd - ^3D_2$ de $n = 23$ à $n = 80$. Après analyse MQDT, on obtient un accord très bon entre mesures expérimentales et modèle MQDT, vérifiant ainsi la validité de la théorie MQDT à ce niveau de précision (de l'ordre de quelques MHz) et en outre une très bonne répétabilité des mesures effectuées. De plus, sur la série $6sns - ^1S_0$, nous avons mis en évidence la nécessité d'inclure un état perturbateur au dessus de la limite d'ionisation pour arriver au modèle optimal. Notons aussi que cette étude a permis d'obtenir une nouvelle mesure de la limite d'ionisation I_{6s} de l'ytterbium 174. Des mesures micro-onde des séries $6snp - ^1P_1$, $6snp - ^3P_1$, $6snp - ^3P_2$, $6snf - ^1F_3$ et $6snf - ^3F_3$ de $n = 40$ à $n = 75$ ont ensuite été présentées. Une analyse MQDT a été réalisée et on trouve un bon accord entre modèle MQDT et mesures expérimentales. Des améliorations sont en cours pour atteindre l'optimum. Toutes ces mesures spectroscopiques seront à compléter par les mesures des séries manquantes grâce à une deuxième voie d'excitation passant par l'état $6s6d - ^3D_2$. À terme, la connaissance complète de la spectroscopie permettra le calcul des diagrammes Stark et des coefficients d'interaction pour les niveaux Rydberg de l'ytterbium.

Le quatrième et dernier chapitre est consacré à l'étude de l'excitation du cœur isolé pour les états de Rydberg de grand moment orbital de l'ytterbium. Ces états sont, a priori, peu auto-ionisants et sont donc de bons candidats pour la réalisation de l'imagerie par fluorescence du cœur ionique. Un calcul théorique des déplacements en énergie de la transition $6s_{1/2} \rightarrow 6p_{1/2}$ et des taux d'auto-ionisation de l'état $6p_{1/2}$ a été réalisé. La décroissance du taux d'auto-ionisation avec le nombre quantique orbital a été mise en évidence mais elle s'avère être particulièrement faible à cause de la proximité en énergie de l'état $5d_{3/2}$, qui rend le couplage des états $6p_{1/2}nl$ avec le continuum $5d_{3/2}\epsilon l'$ très fort. Des mesures expérimentales réalisées sur les états $l = 5 - 9$ ont confirmé cette tendance. De plus, ces mesures ont montré la difficulté de travailler avec ce type d'états dans des nuages atomiques denses. Nous n'excluons pas la possibilité de pouvoir imager les atomes de Rydberg par fluorescence du cœur ionique mais il est néanmoins probable que cette technique requière de travailler avec des états de Rydberg circulaires. Nous considérons donc les possibilités de création de ce type d'état avec notre dispositif expérimental. Une dernière sous-partie a été consacrée aux possibilités de piégeage des atomes de Rydberg divalents par force optique dipolaire en utilisant la polarisabilité dynamique du cœur ionique. Cette technique de piégeage offre des perspectives nouvelles pour l'étude des systèmes de particules en interaction forte et longue portée.

Annexes

.1 Constantes

.1.1 L'atome Yb 174

Grandeur	Expression	Valeur	Référence
Masse	M	173.9388621(26) a.u.	
Constante de Rydberg	R	$1.0973731568508 \times 10^{-7} \text{ m}^{-1}$	CODATA
Constante de Rydberg corrigée en masse	$\tilde{R} = \frac{m_e M}{m_e + M} R$	$1.0973697221 \times 10^{-7} \text{ m}^{-1}$	
Première limite d'ionisation	I_{6s}	1512.245205(7) THz	Cette thèse

TABLE 1 – Grandeurs générales de l'atome Yb 174

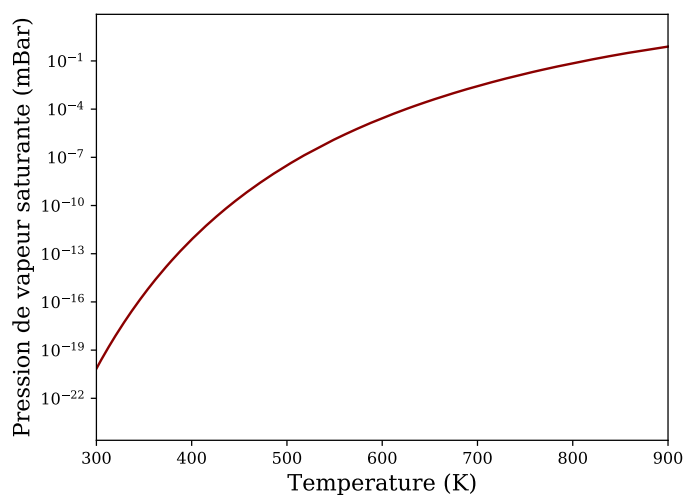


FIGURE 1 – Pression de vapeur saturante pour l'atome d'ytterbium en fonction de la température (données issues de [87])

Grandeur	Expression	Valeur	Référence
Fréquence	ν	751.526 533 49(33)THz	[75]
Largeur à mi-hauteur	$\Gamma/2\pi$	28.9 MHz	[42]
Intensité de saturation	$I_s = \pi h c \Gamma / 3 \lambda^3$	60 mW/cm ²	
Section efficace d'absorption à résonance	$\sigma_0 = 3 \lambda^2 / 2 \pi$	$7.5 \times 10^{-14} \text{ m}^2$	
Température de refroidissement Doppler	$T_D = \hbar \Gamma / 2 k b$	670 μ K	
Vitesse de recul	$v_r = \hbar k / M$	5.5 mm/s	
Fréquence de recul	$\omega_r / 2 \pi = \hbar k^2 / 4 \pi M$	7.5 kHz	
Température de recul	$T_r = \frac{3 \hbar \omega_r}{2 k b}$	54 nK	
Facteur de Landé	g_L	1.035	[42]

TABLE 2 – Grandeurs utiles sur la transition $6s^2 - ^1S_0 \rightarrow 6s6p - ^1P_1$ de l'atome Yb 174

Grandeur	Expression	Valeur	Référence
Fréquence	ν	539.386 600 7(2) THz	[88]
Largeur à mi-hauteur	$\Gamma/2\pi$	180 kHz	[42]
Intensité de saturation	$I_s = \pi h c \Gamma / 3 \lambda^3$	0.14 mW/cm ²	
Section efficace d'absorption à résonance	$\sigma_0 = 3 \lambda^2 / 2 \pi$	$1.5 \times 10^{-13} \text{ m}^2$	
Température de refroidissement Doppler	$T_D = \hbar \Gamma / 2 k_b$	4.3 μ K	
Vitesse de recul	$v_r = \hbar k / M$	4.1 mm/s	
Fréquence de recul	$\omega_r / 2 \pi = \hbar k^2 / 4 \pi M$	3.8 kHz	
Température de recul	$T_r = \frac{3 \hbar \omega_r}{2 k_b}$	27 nK	
Facteur de Landé	g_L	1.493	[42]

TABLE 3 – Grandeurs utiles sur la transition $6s^2 - ^1S_0 \rightarrow 6s6p - ^3P_1$ de l'atome Yb 174

Isotope	Shift (MHz)
176	-508.89(9)
173 5/2	-250.78(33)
174	0
172	531.11(9)
173 7/2	589.75(24)
171 3/2	835.19(20)
171 1/2	1153.68(25)
170	1190.36(49)
168	1888.80(11)

TABLE 4 – Shifts isotopiques pour la transition $6s^2 - ^1S_0 \rightarrow 6s6p - ^1P_1$ donnés par rapport à l'isotope 174 [75]

Isotope	Shift (MHz)
173 7/2	-2386.704(60)
171 1/2	-2132.063(60)
176	-954.832(60)
174	0
172	1000.020(60)
173 5/2	2311.411(60)
168	3655.128(60)
171 3/2	3804.607(80)
173 3/2	3807.278(120)

TABLE 5 – Shifts isotopiques pour la transition $6s^2 - ^1S_0 \rightarrow 6s6p - ^3P_1$ donnés par rapport à l'isotope 174 [89]

.1.2 L'ion Yb^+ 174

Grandeur	Expression	Valeur	Référence
Fréquence	ν	811.291 630(120)THz	[75]
Largeur à mi-hauteur	$\Gamma/2\pi$	19.6 MHz	[65]
Intensité de saturation	$I_s = \pi h c \Gamma / 3 \lambda^3$	51 mW/cm ²	

TABLE 6 – Grandeurs utiles sur la transition $6s_{1/2} \rightarrow 6p_{1/2}$ de l'ion Yb^+

Niveau	Énergie (THz)	Temps de vie τ (s)
$6s_{1/2}$	0	
$5d_{3/2}$	688.347	
$6p_{1/2}$	811.29163(12) [82]	8.13×10^{-9}
$6p_{3/2}$	911.136	
$7s_{1/2}$	1628.002	$35(3) \times 10^{-9}$ [81]
$6d_{3/2}$	1863.933	
$6d_{5/2}$	1875.472	$4.9(2) \times 10^{-9}$ [81]

TABLE 7 – Données sur les transitions de l'ion Yb^+ utilisée pour les calculs des déplacements en énergies et des taux d'auto-ionisation. Données issues de [65] sauf indication contraire

Intégrale radiale	Valeur en unité atomique (a_0)
$ \langle 6s r 6p \rangle $	3.07
$ \langle 6p r 5d \rangle $	2.60
$ \langle 6p r 7s \rangle $	0.79
$ \langle 6p r 6d \rangle $	2.75

TABLE 8 – Intégrales radiales pour l'ion Yb^+ calculées à partir des temps de vie de la table 8

Transition $g \rightarrow e$	Longueur d'onde (nm) $g \rightarrow e$	Γ_{ge} (s ⁻¹)
Yb $6s^2 - {}^1S_0 \rightarrow 6s6p - {}^3P_1$	555.80	1.2×10^6
$6s^2 - {}^1S_0 \rightarrow 6s6p - {}^1P_1$	398.91	1.9×10^8
$6s^2 - {}^1S_0 \rightarrow 4f^{13}5d_{(5/2)}6s^2 (7/2, 5/2)_1$	346.54	7×10^7
Yb⁺ $6s_{1/2} \rightarrow 6p_{1/2}$	369.52	1.2×10^8
$6s_{1/2} \rightarrow 4f^{13}5d6s^3 [3/2]_{3/2}$	347.73	1.41×10^7
$6s_{1/2} \rightarrow 6p_{3/2}$	329.03	1.6×10^8

TABLE 9 – Grandeurs caractérisant les transitions de l'atome et de l'ion utilisées pour le calcul de la polarisabilité dynamique. Données issues de [65]

.2 Données de spectroscopie Rydberg

.2.1 Spectroscopie optique

TABLE 10 – Energie des niveaux Rydberg pour la série $6sns - {}^1S_0$. De $n = 8$ à $n = 22$: données tirées de [70], erreur standard de ≈ 3 GHz. De $n = 23$ à $n = 80$: les données prises dans cette thèse, incertitude standard à 7 MHz

n	ν_{exp} (THz) $6sns - {}^1S_0$	ν_{th} (THz) $6sns - {}^1S_0$	n	ν_{exp} (THz) $6sns - {}^1S_0$	ν_{th} (THz) $6sns - {}^1S_0$
7	1029.8065	1029.803568	44	1510.160527	1510.1605255
8	1257.3259	1257.3229773	45	1510.261631	1510.2616287
9	.	1356.7122317	46	1510.355555	1510.3555525
10	1405.8239	1405.8203816	47	1510.442961	1510.4429609
11	1433.2624	1433.2630735	48	1510.524439	1510.5244427
12	1460.6934	1460.6929697	49	1510.600523	1510.6005216
13	1470.3749	1470.3752492	50	1510.671667	1510.6716651
14	1478.0529	1478.0572109	51	1510.738289	1510.7382909
15	1483.9498	1483.9414089	52	1510.800767	1510.8007734
16	1488.4710	1488.4689949	53	1510.859449	1510.8594494
17	1492.0026	1491.9986943	54	1510.914621	1510.9146214
18	1494.7505	1494.7464574	55	1510.966559	1510.9665634
19	1497.1857	1497.1838486	56	1511.015519	1511.0155225
20	1499.0027	1498.9937325	57	1511.061725	1511.0617226
21	1500.5188	1500.5174028	58	1511.105365	1511.1053676
22	1501.8016	1501.7963738	59	1511.146643	1511.1466421
23	1502.878343	1502.8783446	60	1511.185715	1511.1857147
24	1503.801219	1503.8012182	61	1511.222735	1511.2227394
25	1504.594497	1504.5944957	62	1511.257853	1511.2578568
26	1505.281245	1505.2812438	63	1511.291195	1511.2911958
27	1505.879657	1505.8796562	64	1511.322877	1511.3228742
28	1506.404225	1506.4042232	65	1511.353001	1511.3530007
29	1506.866589	1506.8665907	66	1511.381679	1511.3816749
30	1507.276201	1507.2762031	67	1511.408989	1511.408989
31	1507.640785	1507.6407816	68	1511.435029	1511.4350272
32	1507.966681	1507.9666869	69	1511.459869	1511.459868
33	1508.259193	1508.2591962	70	1511.483585	1511.4835834
34	1508.522717	1508.5227186	71	1511.506243	1511.5062408
35	1508.760961	1508.7609579	72	1511.527903	1511.5279023
36	1508.977049	1508.9770468	73	1511.548627	1511.5486249
37	1509.173647	1509.1736465	74	1511.568461	1511.5684621
38	1509.353031	1509.3530315	75	1511.587463	1511.5874642
39	1509.517155	1509.5171535	76	1511.605675	1511.6056769
40	1509.667695	1509.6676955	77	1511.623149	1511.6231437
41	1509.806113	1509.8061148	78	1511.639905	1511.6399045
42	1509.933679	1509.9336786	79	1511.655995	1511.6559967
43	1510.051497	1510.0514925	80	1511.671457	1511.6714558

TABLE 11 – Energie des niveaux Rydberg pour les séries $6snd - {}^1D_2$ et $6snd - {}^3D_2$. De $n = 8$ à $n = 22$: données tirées de [70], incertitude standard de ≈ 3 GHz. De $n = 23$ à $n = 80$: données prises dans cette thèse, incertitude standard à 7 MHz

n	ν_{exp} (THz) $6snd - {}^1D_2$	ν_{th} (THz) $6snd - {}^1D_2$	ν_{exp} (THz) $6snd - {}^3D_2$	ν_{th} (THz) $6snd - {}^3D_2$
8	1391.2054	1391.2735195	1393.0663	1393.1032468
9	1433.6596	1433.6945175	1428.0433	1428.1095962
10	1451.1001	1450.837386	1449.7252	1449.6857355
11	1465.4790	1465.1831837	1464.1306	1463.9682746
12	1474.2593	1474.2939782	1473.8133	1473.8189776
13	1481.2319	1481.2453129	1480.9477	1480.9464645
14	1486.4693	1486.4690815	1486.2618	1486.2612508
15	1490.4826	1490.4816681	1490.3315	1490.3291606
16	1493.6284	1493.6276741	1493.5117	1493.5116507
17	1496.1379	1496.1388221	1496.0477	1496.0481624
18	1498.1735	1498.1747054	1498.1030	1498.1023685
19	1499.8499	1499.8479113	1499.7915	1499.789214
20	1501.2422	1501.2396275	1501.1939	1501.1913387
21	1502.4153	1502.4095588	1502.3700	1502.3693882
22	1503.4169	1503.4023835	1503.3701	1503.3686812
23	1504.252043	1504.2520471	1504.223631	1504.2236317
24	1504.984643	1504.9846451	1504.960749	1504.9607492
25	1505.620151	1505.6201474	1505.600701	1505.6007013
26	1506.166021	1506.1660201	1506.158381	1506.1583807
27	1506.671823	1506.6718202	1506.651661	1506.6516637
28	1507.102145	1507.1021397	1507.085857	1507.0858548
29	1507.485477	1507.4854787	1507.471415	1507.4714184
30	1507.827699	1507.8277006	1507.815333	1507.8153303
31	1508.134367	1508.1343672	1508.123373	1508.1233767
32	1508.410207	1508.4102056	1508.400379	1508.4003754
33	1508.659201	1508.6592009	1508.650361	1508.6503623
34	1508.884721	1508.8847204	1508.876737	1508.8767384
35	1509.089627	1509.0896223	1509.082389	1509.0823859
36	1509.276343	1509.2763435	1509.269763	1509.2697604
37	1509.446973	1509.4469719	1509.440961	1509.4409643
38	1509.603303	1509.6033045	1509.597803	1509.5978061
39	1509.746893	1509.7468944	1509.741853	1509.7418485
40	1509.879091	1509.8790894	1509.874449	1509.8744472
41	1510.001065	1510.0010639	1509.996783	1509.996783
42	1510.113843	1510.1138448	1510.109889	1510.1098883
43	1510.218331	1510.2183333	1510.214669	1510.214669
44	1510.315323	1510.3153226	1510.311925	1510.3119223
45	1510.405515	1510.4055137	1510.402351	1510.4023524
46	1510.489523	1510.4895271	1510.486585	1510.4865829
47	1510.567913	1510.5679146	1510.565169	1510.5651679
48	1510.641165	1510.6411673	1510.638601	1510.6386007
49	1510.709723	1510.7097241	1510.707321	1510.7073223
50	1510.773977	1510.773978	1510.771725	1510.771727
51	1510.834279	1510.8342817	1510.832169	1510.8321691
52	1510.890951	1510.8909524	1510.888967	1510.888967
53	1510.944275	1510.9442762	1510.942409	1510.942408
54	1510.994511	1510.9945114	1510.992749	1510.9927515
55	1511.041887	1511.0418923	1511.040229	1511.0402322

n	ν_{exp} (THz) $6snd - {}^1D_2$	ν_{th} (THz) $6snd - {}^1D_2$	ν_{exp} (THz) $6snd - {}^3D_2$	ν_{th} (THz) $6snd - {}^3D_2$
56	1511.086627	1511.0866308	1511.085063	1511.0850632
57	1511.128917	1511.12892	1511.127437	1511.1274382
58	1511.168933	1511.1689354	1511.167533	1511.1675331
59	1511.206833	1511.2068371	1511.205509	1511.2055088
60	1511.242767	1511.2427715	1511.241509	1511.241512
61	1511.276869	1511.2768723	1511.275675	1511.2756769
62	1511.309261	1511.3092621	1511.308125	1511.3081267
63	1511.340053	1511.3400537	1511.338969	1511.3389742
64	1511.369349	1511.3693504	1511.368323	1511.3683232
65	1511.397245	1511.3972474	1511.396271	1511.3962692
66	1511.423835	1511.4238326	1511.422901	1511.4229002
67	1511.449187	1511.4491868	1511.448297	1511.4482975
68	1511.473387	1511.473385	1511.472537	1511.4725362
69	1511.496495	1511.4964963	1511.495689	1511.4956855
70	1511.518587	1511.5185848	1511.517811	1511.5178099
71	1511.539713	1511.5397102	1511.538969	1511.5389689
72	1511.559929	1511.5599275	1511.559219	1511.559218
73	1511.579287	1511.579288	1511.578609	1511.5786085
74	1511.597837	1511.5978395	1511.597196	1511.5971883
75	1511.615627	1511.6156264	1511.615005	1511.615002
76	1511.632695	1511.6326903	1511.632093	1511.6320912
77	1511.649069	1511.6490697	1511.648495	1511.6484945
78	1511.664801	1511.6648007	1511.664251	1511.6642483
79	1511.679919	1511.6799173	1511.679391	1511.6793864
80	1511.694453	1511.6944508	1511.693939	1511.6939403

.2.2 Spectroscopie micro-onde

TABLE 12 – Énergie des niveaux Rydberg pour la série $6snp - ^1P_1$. De $n = 12$ à $n = 41$: données de spectroscopie optique tirées de [73] (erreur standard ≈ 3 GHz). De $n = 42$ à $n = 78$: données prises dans cette thèse. L'état initial est un état $6sn's - ^1S_0$ sauf si indiqué. L'incertitude sur la fréquence micro-onde $\nu_{i \rightarrow f}$ est de 500 kHz. L'incertitude sur la fréquence totale ν_{exp} est limitée par la connaissance de la fréquence de l'état initial $6sn's - ^1S_0$, elle est donc d'environ 7 MHz à σ

n (état final) $6snp - ^1P_1$	n' (état initial) $6sn's - ^1S_0$	$\nu_{i \rightarrow f}$ (GHz)	ν_{exp} (THz)	ν_{th} (THz)
12			1460.5644	1460.6066172
13			1472.8024	1472.8410979
14			1479.5488	1479.5236559
15			1485.0644	1485.0257058
16			1489.3028	1489.2540365
17			1492.5586	1492.5054701
18			1494.9785	1494.9170642
19			1498.037	1498.0791473
20			1499.6002	1499.6292895
21			1500.9958	1501.0113732
22			1502.19	1502.1981044
23			1503.2057	1503.213157
24			1504.0832	1504.0846989
25			1504.834	1504.8373081
26			1505.4874	1505.4911453
27			1506.0623	1506.0625131
28			1506.5644	1506.5645875
29			1507.0099	1507.008063
30			1507.4007	1507.4016731
31			1507.7561	1507.7525961
32			1508.0667	1508.066772
33			1508.3519	1508.3491462
34			1508.6035	1508.6038628
35			1508.8379	1508.8344143
36			1509.0454	1509.0437593
37			1509.2369	1509.2344184
38			1509.4084	1509.4085489
39			1509.5691	1509.5680064
40			1509.7167	1509.714393
41			1509.8502	1509.8490981
42	$6s40d - ^1D_2$	94.2453	1509.9733363	1509.9733318
43	$6s41d - ^1D_2$	87.0909	1510.0881559	1510.0881514
44	$6s42d - ^1D_2$	80.6429	1510.1944859	1510.1944845
45	$6s43d - ^1D_2$	74.8162	1510.2931472	1510.2931462
46	$6s44d - ^1D_2$	69.5377	1510.3848607	1510.3848575
47	$6s45d - ^1D_2$	64.7447	1510.4702597	1510.4702558
48	47	106.9478	1510.5499088	1510.5499074
49	48	99.8744	1510.6243134	1510.6243161
50	49	93.4111	1510.6939341	1510.6939325

n (état final) $6snp - ^1P_1$	n' (état initial) $6sn's - ^1S_0$	$\nu_{i \rightarrow f}$ (GHz)	ν_{exp} (THz)	ν_{th} (THz)
51	50	87.4937	1510.7591607	1510.7591589
52	51	82.0656	1510.8203546	1510.820357
53	52	77.0775	1510.8778445	1510.8778515
54	53	72.4854	1510.9319344	1510.9319356
55	54	68.2510	1510.9828720	1510.9828736
56	$6s53d - ^1D_2$	86.6283	1511.0309033	1511.0309049
57	$6s54d - ^1D_2$	81.7343	1511.0762453	1511.0762464
58	$6s55d - ^1D_2$	77.2022	1511.1190892	1511.1190951
59	57	97.9065	1511.1596315	1511.1596304
60	58	92.6475	1511.1980125	1511.1980161
61	59	87.7585	1511.2344015	1511.2344016
62	60	83.2075	1511.2689225	1511.268923
63	61	78.9658	1511.3017008	1511.3017059
64	62	75.0077	1511.3328607	1511.3328651
65	63	71.3098	1511.3625048	1511.3625059
66	63	99.5295	1511.3907245	1511.3907254
67	64	94.7389	1511.4176159	1511.4176129
68	65	90.2509	1511.4432519	1511.4432511
69	66	86.0420	1511.4677210	1511.4677163
70	67	82.0909	1511.4910799	1511.4910788
71	68	78.3780	1511.5134070	1511.513404
72	69	74.8857	1511.5347547	1511.5347523
73	70	71.5981	1511.5551831	1511.5551798
74	71	68.4999	1511.5747429	1511.5747389
75	72	65.5782	1511.5934812	1511.593478
76	73	62.8201	1511.6114471	1511.6114425
77	74	60.2146	1511.6286756	1511.6286742

TABLE 13 – Energie des niveaux Rydberg pour la série $6snp - {}^3P_1$. De $n = 12$ à $n = 41$: données de spectroscopie optique tirées de [73] (erreur standard ≈ 3 GHz). De $n = 42$ à $n = 78$: données prises au cours cette thèse. L'état initial est un état $6sn's - {}^1S_0$. L'incertitude sur la fréquence micro-onde $\nu_{i \rightarrow f}$ est de 500 kHz. L'incertitude sur la fréquence totale ν_{exp} est limitée par la connaissance de la fréquence de l'état initial $6sn's - {}^1S_0$, elle est donc d'environ 7 MHz. Remarque : l'état perturbateur C est inclut dans la série.

n (état final) $6snp - {}^3P_1$	n' (état initial) $6sn's - {}^1S_0$	$\nu_{i \rightarrow f}$ (GHz)	ν_{exp} (THz)	ν_{th} (THz)
12			1461.842283	1461.920263
13			1472.282855	1472.278412
14			1479.793555	1479.756348
15			1485.368196	1485.321988
16			1489.625249	1489.572673
17			1492.942452	1492.890047
18			1495.572232	1495.527702
19			1497.699259	1497.659675
20			1499.440754	1499.408284
21			1500.884554	1500.860765
22			1502.099313	1502.080446
23			1503.1291	1503.114385
24			1504.01019	1503.998297
25			1504.768066	1504.759728
26			1505.42701	1505.420209
27			1506.002911	1505.996754
28			1506.50926	1506.502954
29			1506.956551	1506.949761
30			1507.350478	1507.346082
31			1507.703633	1507.699217
32			1508.019615	1508.015195
33			1508.303818	1508.299031
34			1508.557143	1508.554926
35			1508.789482	1508.786416
36			1508.997238	1508.996503
37			1509.188206	1509.187746
38			1509.362685	1509.362337
39			1509.522474	1509.522172
40			1509.669373	1509.668887
41			1509.804579	1509.80391
42			1509.928993	1509.928486
43			1510.044113	1510.043704
44	43	99.0372	1510.150529	1510.150518
45	44	89.2323	1510.249754	1510.249763
46	45	80.542	1510.342168	1510.34217
47	46	72.8261	1510.428376	1510.428378
48	47	65.9895	1510.508946	1510.508949
49	48	59.9345	1510.584369	1510.584374
50	49	54.5723	1510.65509	1510.655088

n (état final) $6snp - ^3P_1$	n' (état initial) $6sn's - ^1S_0$	$\nu_{i \rightarrow f}$ (GHz)	ν_{exp} (THz)	ν_{th} (THz)
51	50	49.8192	1510.721481	1510.721477
52	51	45.601	1510.783885	1510.783883
53	52	41.8612	1510.842623	1510.842615
54	52	97.1864	1510.897948	1510.89795
55	53	90.6992	1510.950143	1510.950139
56	54	84.7975	1510.999414	1510.999409
57	55	79.4159	1511.04597	1511.04597
58	56	74.4974	1511.090011	1511.090012
59	57	69.992	1511.131712	1511.131707
60	58	65.856	1511.171216	1511.171217
61	58	103.3259	1511.208686	1511.208688
62	59	97.6171	1511.244255	1511.244254
63	60	92.3303	1511.27804	1511.278041
64	61	87.4264	1511.310157	1511.310162
65	62	82.8706	1511.340719	1511.340724
66	63	78.6317	1511.369822	1511.369825
67	64	74.6822	1511.397554	1511.397554
68	64	101.1239	1511.423996	1511.423996
69	65	96.2294	1511.449225	1511.449228
70	66	91.6484	1511.473322	1511.473322
71	67	87.3586	1511.496343	1511.496344
72	68	83.3336	1511.518358	1511.518358
73	69	79.5544	1511.539418	1511.539419
74	70	76.0026	1511.559583	1511.559582
75	71	72.6625	1511.5789	1511.57897
76	72	69.5116	1511.59741	1511.597411
77	73	66.545	1511.615167	1511.615166

TABLE 14 – Énergie des niveaux Rydberg pour la série $6snp - {}^3P_2$. Données prises dans cette thèse. L'état initial est un état $6sn'd - {}^3D_2$. L'incertitude sur la fréquence micro-onde $\nu_{i \rightarrow f}$ est de 500 kHz. L'incertitude sur la fréquence totale ν_{exp} est limitée par la connaissance de la fréquence de l'état initial $6sn'd - {}^3D_2$, elle est donc d'environ 7 MHz.

n (état final) $6snp - {}^3P_2$	n' (état initial) $6sn'd - {}^3D_2$	$\nu_{i \rightarrow f}$ (GHz)	ν_{exp} (THz)
43	41	94.2790	1510.0910620
44	42	87.3027	1510.1971917
45	43	80.9981	1510.2956671
46	44	75.2866	1510.3872116
47	45	70.0998	1510.4724508
48	46	65.3788	1510.5519638
49	47	61.0724	1510.6262414
50	48	57.1365	1510.6957375
51	49	53.5317	1510.7608527
52	50	50.2240	1510.8219490
53	51	47.1833	1510.8793523
54	51	101.1815	1510.9333505
55	52	95.2417	1510.9842087
56	53	89.7581	1511.0321671
57	54	84.6877	1511.0774367
58	55	79.9920	1511.1202210
59	56	75.6374	1511.1607004
60	57	71.5931	1511.1990301
61	58	67.8320	1511.2353650
62	58	102.3060	1511.2698390
63	59	97.0685	1511.3025775
64	60	92.1826	1511.3336916
65	61	87.6193	1511.3632943
66	62	83.3523	1511.3914773
67	63	79.3580	1511.4183270
68	64	75.6150	1511.4439380
69	65	72.1037	1511.4683747
70	66	68.8067	1511.4917077
71	67	65.7075	1511.5140045
72	68	62.7919	1511.5353289
73	69	60.0462	1511.5557352
74	70	57.4585	1511.5752695
75	71	55.0170	1511.5939860
76	72	52.7120	1511.6119310

TABLE 15 – Énergie des niveaux Rydberg pour la série $6snf - {}^1F_3$. De $n = 16$ à $n = 31$, données de spectroscopie optique tirées de [73] (erreur standard ≈ 3 GHz). De $n = 47$ à $n = 75$, données obtenues au cours de cette thèse. L'état initial est un état $6sn'd - {}^1D_2$. L'incertitude sur la fréquence micro-onde $\nu_{i \rightarrow f}$ est de 500 kHz. L'incertitude sur la fréquence totale ν_{exp} est limitée par la connaissance de la fréquence de l'état initial $6sn'd - {}^1D_2$, elle est donc d'environ 7 MHz.

n (état final) $6snf - {}^1F_3$	n' (état initial) $6sn'd - {}^1D_2$	$\nu_{i \rightarrow f}$ (GHz)	ν_{exp} (THz)	ν_{th} (THz)
16			1497.182	1497.1917586
17			1499.017	1499.024526
18			1500.542	1500.5436613
19			1501.818	1501.8163055
20			1502.893	1502.8926009
21			1503.812	1503.810456
22			1504.602	1504.5985108
23			1505.281	1505.2758163
24			1505.8	1505.7999015
25			1506.106	1506.1045302
26			1506.876	1506.8748215
27			1507.283	1507.2821756
28			1507.647	1507.6453426
29			1507.973	1507.9702664
30			1508.265	1508.2620538
31			1508.527	1508.525027
47	47	103.887	1510.6718	1510.6717898
48	48	97.2369	1510.7384019	1510.7383941
49	49	91.1427	1510.8008657	1510.8008582
50	50	85.5478	1510.8595248	1510.8595186
51	51	80.4017	1510.9146807	1510.9146771
52	52	75.6604	1510.9666114	1510.9666078
53	53	71.2849	1511.0155599	1511.015557
54	54	67.2404	1511.0617514	1511.0617487
55	55	63.4966	1511.1053836	1511.1053862
56	56	60.0256	1511.1466526	1511.1466544
57	56	99.0925	1511.1857195	1511.1857219
58	57	93.8229	1511.2227399	1511.2227418
59	58	88.9207	1511.2578537	1511.2578556
60	59	84.3543	1511.2911873	1511.291191
61	60	80.0952	1511.3228622	1511.3228665
62	61	76.1183	1511.3529873	1511.3529908
63	62	72.4004	1511.3816614	1511.3816629
64	63	68.9207	1511.4089737	1511.4089749
65	64	65.6607	1511.4350097	1511.4350119
66	65	62.6030	1511.459848	1511.4598515
67	66	59.7325	1511.4835675	1511.483566
68	67	57.0348	1511.5062218	1511.5062225
69	68	54.4965	1511.5278835	1511.5278831
70	69	52.1078	1511.5486028	1511.5486054
71	70	49.8557	1511.5684427	1511.5684423
72	71	47.7320	1511.5874450	1511.5874441
73	72	45.7280	1511.6056570	1511.6056565
74	73	43.8340	1511.6231210	1511.623123
75	74	42.0420	1511.6398790	1511.6398838

TABLE 16 – Énergie des niveaux Rydberg pour la série $6snf - {}^3F_3$. De $n = 16$ à $n = 49$: données de spectroscopie optique tirées de [73] (incertitude standard ≈ 3 GHz). De $n = 50$ à $n = 75$: données obtenues au cours de cette thèse. L'état initial est un état $6sn'd - {}^1D_2$. L'incertitude sur la fréquence micro-onde $\nu_{i \rightarrow f}$ est d'environ 500 kHz. L'incertitude sur la fréquence totale ν_{exp} est limitée par la connaissance de la fréquence de l'état initial $6sn'd - {}^1D_2$, elle est donc d'environ 7 MHz.

n (état final) $6snf - {}^3F_3$	n' (état initial) $6sn'd - {}^1D_2$	$\nu_{i \rightarrow f}$ (GHz)	ν_{exp} (THz)	ν_{th} (THz)
16			1497.503	1497.4976833
17			1499.289	1499.2864544
18			1500.774	1500.7681585
19			1502.016	1502.0089285
20			1503.054	1503.0578069
21			1503.948	1503.9514745
22			1504.714	1504.7168098
23			1505.363	1505.3692215
24			1505.904	1505.911272
25			1506.416	1506.4170771
26			1506.974	1506.970511
27			1507.368	1507.3645477
28			1507.72	1507.7178421
29			1508.037	1508.0348099
30			1508.321	1508.3199401
31			1508.58	1508.5772268
47			1510.695	1510.6864035
48			1510.759	1510.7521024
49			1510.816	1510.8137343
50	50	97.6495	1510.8716265	1510.8716281
51	51	91.7986	1510.9260776	1510.9260803
52	52	86.4059	1510.9773569	1510.9773577
53	53	81.4276	1511.0257026	1511.0257029
54	54	76.8246	1511.0713356	1511.0713349
55	55	72.5622	1511.1144492	1511.1144531
56	56	68.6096	1511.1552366	1511.1552387
57	57	64.9385	1511.1938555	1511.1938571
58	57	101.5411	1511.2304581	1511.230459
59	58	96.2493	1511.2651823	1511.2651825
60	59	91.3190	1511.2981520	1511.2981537
61	60	86.7198	1511.3294868	1511.3294886
62	61	82.4244	1511.3592934	1511.3592939
63	62	78.4082	1511.3876692	1511.3876675
64	63	74.6487	1511.4147017	1511.4146998
65	64	71.1259	1511.4404749	1511.4404735
66	65	67.8212	1511.4650662	1511.4650658
67	66	64.7175	1511.4885525	1511.488548
68	67	61.8018	1511.5109888	1511.5109856
69	68	59.0574	1511.5324444	1511.53244
70	69	56.4742	1511.5529692	1511.5529677
71	70	54.0375	1511.5726245	1511.5726211
72	71	51.7400	1511.5914530	1511.5914493
73	72	49.5720	1511.6095010	1511.6094977
74	73	47.5240	1511.6268110	1511.6268092
75	74	45.5840	1511.6434210	1511.6434228

Bibliographie

- [1] I. Bloch, J. Dalibard, and S. Nascimbene, “Quantum simulations with ultracold quantum gases,” *Nat. Phys.*, vol. 8, pp. 267–273, 2012.
- [2] I. M. Georgescu, S. Ashhab, and F. Nori, “Quantum simulation,” *Rev. Mod. Phys.*, vol. 86, pp. 153–185, Mar 2014.
- [3] D. Tong, S. M. Farooqi, J. Stanojevic, S. Krishnan, Y. P. Zhang, R. Côté, E. E. Eyler, and P. L. Gould, “Local blockade of Rydberg excitation in an ultracold gas,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 93, p. 063001, Aug 2004.
- [4] D. Jaksch, J. I. Cirac, P. Zoller, S. L. Rolston, R. Côté, and M. D. Lukin, “Fast quantum gates for neutral atoms,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 85, pp. 2208–2211, Sep 2000.
- [5] M. D. Lukin, M. Fleischhauer, R. Cote, L. M. Duan, D. Jaksch, J. I. Cirac, and P. Zoller, “Dipole blockade and quantum information processing in mesoscopic atomic ensembles,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 87, p. 037901, Jun 2001.
- [6] A. Gaëtan, Y. Miroshnychenko, T. Wilk, A. Chotia, M. Viteau, D. Comparat, P. Pillet, A. Browaeys, and P. Grangier, “Observation of collective excitation of two individual atoms in the Rydberg blockade regime,” *Nat. Phys.*, vol. 5, pp. 115–118, 2009.
- [7] L. Isenhower, E. Urban, X. L. Zhang, A. T. Gill, T. Henage, T. A. Johnson, T. G. Walker, and M. Saffman, “Demonstration of a neutral atom Controlled-NOT quantum gate,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 104, p. 010503, Jan 2010.
- [8] H. Labuhn, D. Barredo, S. Ravets, S. de Leseleuc, T. Macrì, T. Lahaye, and A. Browaeys, “Tunable two-dimensional arrays of single Rydberg atoms for realizing quantum Ising models,” *Nature*, vol. 534, pp. 667–670, 2016.
- [9] P. Schauss, M. Cheneau, M. Endres, F. Takeshi, S. Hild, A. Omran, T. Pohl, C. Gross, S. Kuhr, and I. Bloch, “Observation of spatially ordered structures in a two-dimensional Rydberg gas,” *Nature*, vol. 491, pp. 87–91, 2012.
- [10] P. Schauß, J. Zeiher, T. Fukuhara, S. Hild, M. Cheneau, T. Macrì, T. Pohl, I. Bloch, and C. Gross, “Crystallization in Ising quantum magnets,” *Science*, vol. 347, no. 6229, pp. 1455–1458, 2015.
- [11] T. Förster, “Intermolecular energy migration and fluorescence,” *Annalen der Physik*, vol. 2, pp. 55–75, 1948.
- [12] K. A. Safinya, J. F. Delpéch, F. Gounand, W. Sandner, and T. F. Gallagher, “Resonant Rydberg-atom-Rydberg-atom collisions,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 47, pp. 405–408, Aug 1981.
- [13] W. R. Anderson, J. R. Veale, and T. F. Gallagher, “Resonant dipole-dipole energy transfer in a nearly frozen Rydberg gas,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 80, pp. 249–252, Jan 1998.

- [14] I. Mourachko, D. Comparat, F. de Tomasi, A. Fioretti, P. Nosbaum, V. M. Akulin, and P. Pillet, “Many-body effects in a frozen Rydberg gas,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 80, pp. 253–256, Jan 1998.
- [15] M. Brune, E. Hagley, J. Dreyer, X. Maître, A. Maali, C. Wunderlich, J. M. Raimond, and S. Haroche, “Observing the progressive decoherence of the “meter” in a quantum measurement,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 77, pp. 4887–4890, Dec 1996.
- [16] W. E. Cooke, T. F. Gallagher, S. A. Edelstein, and R. M. Hill, “Doubly excited autoionizing Rydberg states of Sr,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 40, pp. 178–181, Jan 1978.
- [17] R. R. Jones and T. F. Gallagher, “Autoionization of high- l Ba $6p_{1/2}nl$ states,” *Phys. Rev. A*, vol. 38, pp. 2846–2853, Sep 1988.
- [18] R. Mukherjee, J. Millen, R. Nath, M. P. A. Jones, and T. Pohl, “Many-body physics with alkaline-earth Rydberg lattices,” *J. Phys. B*, vol. 44, no. 18, p. 184010, 2011.
- [19] A. Zuliani, *Towards optical manipulation of ultra-cold Ytterbium atoms excited into Rydberg states*. Theses, Université Paris-Saclay, Nov. 2015.
- [20] M. J. Seaton, “Quantum defect theory,” *Reports on Progress in Physics*, vol. 46, no. 2, p. 167, 1983.
- [21] L. Pruvost, *Corrélations électroniques des états double-Rydberg du baryum : contributions expérimentales et théoriques*. PhD thesis, Université Paris-Sud, 1990.
- [22] C. Cohen-Tannoudji, B. Diu, and F. Laloë, *Mécanique quantique*. Hermann, 1997.
- [23] T. Gallagher, *Rydberg atoms*. Cambridge University Press, 1994.
- [24] C. Fabre and S. Haroche, *Spectroscopy of one and two-electron Rydberg atoms, in Rydberg states of atoms and molecules*. Cambridge University Press, 1983.
- [25] W. R. Johnson, K. T. Cheng, K.-N. Huang, and M. Le Dourneuf, “Analysis of beutler-fano autoionizing resonances in the rare-gas atoms using the relativistic multichannel quantum-defect theory,” *Phys. Rev. A*, vol. 22, pp. 989–997, Sep 1980.
- [26] P. Goy, J. M. Raimond, G. Vitrant, and S. Haroche, “Millimeter-wave spectroscopy in cesium Rydberg states. Quantum defects, fine- and hyperfine-structure measurements,” *Phys. Rev. A*, vol. 26, pp. 2733–2742, Nov 1982.
- [27] W. Li, I. Mourachko, M. W. Noel, and T. F. Gallagher, “Millimeter-wave spectroscopy of cold Rb Rydberg atoms in a magneto-optical trap : Quantum defects of the ns, np, and nd series,” *Phys. Rev. A*, vol. 67, p. 052502, May 2003.
- [28] J. Deiglmayr, H. Herburger, H. Saßmannshausen, P. Jansen, H. Schmutz, and F. Merkt, “Precision measurement of the ionization energy of 2DCs i,” *Phys. Rev. A*, vol. 93, p. 013424, Jan 2016.
- [29] C.-J. Lorenzen and K. Niemax, “Quantum defects of the $n^2P_{1/2,3/2}$ levels in 39 K I and 85 Rb I,” *Physica Scripta*, vol. 27, no. 4, p. 300, 1983.
- [30] T. Vogt, *Blocage dipolaire de l’excitation d’atomes froids vers des états de Rydberg : contrôle par champ électrique et résonance de Forster*. PhD thesis, Université Paris 11, 2006.
- [31] M. L. Zimmerman, M. G. Littman, M. M. Kash, and D. Kleppner, “Stark structure of the Rydberg states of alkali-metal atoms,” *Phys. Rev. A*, vol. 20, pp. 2251–2275, Dec 1979.
- [32] N. Šibalić, J. Pritchard, C. Adams, and K. Weatherill, “Arc : An open-source library for calculating properties of alkali Rydberg atoms,” *Computer Physics Communications*, vol. 220, no. Supplement C, pp. 319 – 331, 2017.

-
- [33] W. Paul, “Electromagnetic traps for charged and neutral particles (Nobel lecture),” *Angewandte Chemie International Edition in English*, vol. 29, no. 7, pp. 739–748, 1990.
- [34] L. Pruvost, P. Camus, J. M. Lecomte, C. R. Mahon, and P. Pillet, “High angular momentum $6pnl$ and $6dnl$ doubly excited Rydberg states of barium,” *Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics*, vol. 24, no. 22, p. 4723, 1991.
- [35] A. Dareau, *Coherent manipulation of an ytterbium Bose-Einstein condensate using the clock transition : from spectroscopy to artificial magnetism*. Theses, Ecole normale supérieure - ENS PARIS, Aug. 2015.
- [36] P. Camus, T. F. Gallagher, J.-M. Lecomte, P. Pillet, L. Pruvost, and J. Boulmer, “Observation of an electronic correlation for double-Rydberg states of barium,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 62, pp. 2365–2368, May 1989.
- [37] R. V. Leeuwen, *Electron Correlation in Autoionizing States of Barium*. PhD thesis, Vrije Universiteit, 1995.
- [38] I. Percival, “Planetary atoms,” *Proceedings of the Royal Society of London A : Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, vol. 353, no. 1673, pp. 289–297, 1977.
- [39] P. Nussenzevig, F. Bernardot, M. Brune, J. Hare, J. M. Raimond, S. Haroche, and W. Gawlik, “Preparation of high-principal-quantum-number “circular” states of rubidium,” *Phys. Rev. A*, vol. 48, pp. 3991–3994, Nov 1993.
- [40] R. R. Freeman and D. Kleppner, “Core polarization and quantum defects in high-angular-momentum states of alkali atoms,” *Phys. Rev. A*, vol. 14, pp. 1614–1619, Nov 1976.
- [41] T. Kuwamoto, K. Honda, Y. Takahashi, and T. Yabuzaki, “Magneto-optical trapping of Yb atoms using an intercombination transition,” *Phys. Rev. A*, vol. 60, pp. R745–R748, Aug 1999.
- [42] R. Maruyama, *Optical trapping of neutral ytterbium*. PhD thesis, University of Washington, 2003.
- [43] G. Günter, M. Robert-de Saint-Vincent, H. Schempp, C. S. Hofmann, S. Whitlock, and M. Weidemüller, “Interaction enhanced imaging of individual Rydberg atoms in dense gases,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 108, p. 013002, Jan 2012.
- [44] G. Günter, H. Schempp, M. Robert-de Saint-Vincent, V. Gavryusev, S. Helmrich, C. S. Hofmann, S. Whitlock, and M. Weidemüller, “Observing the dynamics of dipole-mediated energy transport by interaction-enhanced imaging,” *Science*, vol. 342, no. 6161, pp. 954–956, 2013.
- [45] S. K. Dutta, J. R. Guest, D. Feldbaum, A. Walz-Flannigan, and G. Raithel, “Ponderomotive optical lattice for Rydberg atoms,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 85, pp. 5551–5554, Dec 2000.
- [46] S. E. Anderson, K. C. Younge, and G. Raithel, “Trapping Rydberg atoms in an optical lattice,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 107, p. 263001, Dec 2011.
- [47] I. Li, Y. Dudin, and A. Kuzmich, “Entanglement between light and an optical atomic excitation,” *Nature*, vol. 498, pp. 466–469, 2013.
- [48] S. Gupta and L. Casetti, “Surprises from quenches in long-range-interacting systems : temperature inversion and cooling,” *New Journal of Physics*, vol. 18, no. 10, p. 103051, 2016.

- [49] T. C. Killian, “Ultracold Neutral Plasmas,” *Science*, vol. 316, no. 5825, pp. 705–708, 2007.
- [50] G. Bannasch, T. C. Killian, and T. Pohl, “Strongly coupled plasmas via Rydberg blockade of cold atoms,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 110, p. 253003, Jun 2013.
- [51] C. E. Simien, Y. C. Chen, P. Gupta, S. Laha, Y. N. Martinez, P. G. Mickelson, S. B. Nagel, and T. C. Killian, “Using absorption imaging to study ion dynamics in an ultracold neutral plasma,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 92, p. 143001, Apr 2004.
- [52] E. Wigner, “On the interaction of electrons in metals,” *Phys. Rev.*, vol. 46, pp. 1002–1011, Dec 1934.
- [53] K. Honda, Y. Takahashi, T. Kuwamoto, M. Fujimoto, K. Toyoda, K. Ishikawa, and T. Yabuzaki, “Magneto-optical trapping of Yb atoms and a limit on the branching ratio of the 1P_1 state,” *Phys. Rev. A*, vol. 59, pp. R934–R937, Feb 1999.
- [54] A. Ashkin, “Acceleration and trapping of particles by radiation pressure,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 24, pp. 156–159, Jan 1970.
- [55] W. D. Phillips and H. Metcalf, “Laser deceleration of an atomic beam,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 48, pp. 596–599, Mar 1982.
- [56] T. Hosoya, M. Miranda, R. Inoue, and M. Kozuma, “Injection locking of a high power ultraviolet laser diode for laser cooling of ytterbium atoms,” *Review of Scientific Instruments*, vol. 86, no. 7, 2015.
- [57] H. Metcalf and P. van der Straten, *Laser cooling and trapping*. Springer, 1999.
- [58] J. Dalibard, “Cours aux Collège de France,” 2015.
- [59] C. G. Townsend, N. H. Edwards, C. J. Cooper, K. P. Zetie, C. J. Foot, A. M. Steane, P. Szriftgiser, H. Perrin, and J. Dalibard, “Phase-space density in the magneto-optical trap,” *Phys. Rev. A*, vol. 52, pp. 1423–1440, Aug 1995.
- [60] H. Katori, T. Ido, Y. Isoya, and M. Kuwata-Gonokami, “Magneto-optical trapping and cooling of strontium atoms down to the photon recoil temperature,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 82, pp. 1116–1119, Feb 1999.
- [61] C. Cohen-Tannoudji, *Atomic motion in laser light*. In J. Dalibard, J.-M. Raimond and J. Zinn-Justin, editors. *Fundamental systems in quantum optics, Les Houches session LIII, July 1990*. Elsevier, 1992.
- [62] M. Chalony, A. Kastberg, B. Klappauf, and D. Wilkowski, “Doppler cooling to the quantum limit,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 107, p. 243002, Dec 2011.
- [63] K. R. Vogel, T. P. Dinneen, A. Gallagher, and J. L. Hall, “Narrow-line Doppler cooling of strontium to the recoil limit,” *IEEE Transactions on Instrumentation and Measurement*, vol. 48, pp. 618–621, Apr 1999.
- [64] S. Dörscher, A. Thobe, B. Hundt, A. Kochanke, R. L. Targat, P. Windpassinger, C. Becker, and K. Sengstock, “Creation of quantum-degenerate gases of ytterbium in a compact 2D-/3D-magneto-optical trap setup,” *Review of Scientific Instruments*, vol. 84, no. 4, p. 043109, 2013.
- [65] A. Kramida, Yu. Ralchenko, J. Reader, and NIST ASD Team. NIST Atomic Spectra Database (ver. 5.3), [Online]. Available : <http://physics.nist.gov/asd> [2017, April 9]. National Institute of Standards and Technology, Gaithersburg, MD., 2015.

- [66] T. F. Gallagher, L. M. Humphrey, W. E. Cooke, R. M. Hill, and S. A. Edelstein, “Field ionization of highly excited states of sodium,” *Phys. Rev. A*, vol. 16, pp. 1098–1108, Sep 1977.
- [67] E. Jones, T. Oliphant, P. Peterson, *et al.*, “SciPy : Open source scientific tools for Python,” 2001–. [Online; accessed <today>].
- [68] J. D. Hunter, “Matplotlib : A 2d graphics environment,” *Computing In Science & Engineering*, vol. 9, no. 3, pp. 90–95, 2007.
- [69] W. E. Cooke and C. L. Cromer, “Multichannel quantum-defect theory and an equivalent n-level system,” *Phys. Rev. A*, vol. 32, pp. 2725–2738, Nov 1985.
- [70] M. Aymar, A. Debarre, and O. Robaux, “Highly excited levels of neutral ytterbium. II. multichannel quantum defect analysis of odd- and even-parity spectra,” *Journal of Physics B : Atomic and Molecular Physics*, vol. 13, no. 6, p. 1089, 1980.
- [71] K. T. Lu and U. Fano, “Graphic analysis of perturbed Rydberg series,” *Phys. Rev. A*, vol. 2, pp. 81–86, Jul 1970.
- [72] R. Ali, M. Yaseen, A. Nadeem, S. A. Bhatti, and M. A. Baig, “Two-colour three-photon excitation of the $6snf\ ^{1,3}F_3$ and $6snp\ ^1P_1, ^3P_{1,2}$ Rydberg levels of Yb I,” *Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics*, vol. 32, no. 4, p. 953, 1999.
- [73] M. Aymar, R. J. Champeau, C. Delsart, and O. Robaux, “Three-step laser spectroscopy and multichannel quantum defect analysis of odd-parity Rydberg states of neutral ytterbium,” *Journal of Physics B : Atomic and Molecular Physics*, vol. 17, no. 18, p. 3645, 1984.
- [74] C. B. Xu, X. Y. Xu, W. Huang, M. Xue, and D. Y. Chen, “Rydberg and autoionizing states of neutral ytterbium,” *Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics*, vol. 27, no. 17, p. 3905, 1994.
- [75] M. Kleinert, M. E. Gold Dahl, and S. Bergeson, “Measurement of the Yb I 1S_0 - 1P_1 transition frequency at 399 nm using an optical frequency comb,” *Phys. Rev. A*, vol. 94, p. 052511, Nov 2016.
- [76] S. Sevinçli, C. Ates, T. Pohl, H. Schempp, C. S. Hofmann, G. Günter, T. Amthor, M. Weidemüller, J. D. Pritchard, D. Maxwell, A. Gauguet, K. J. Weatherill, M. P. A. Jones, and C. S. Adams, “Quantum interference in interacting three-level Rydberg gases : coherent population trapping and electromagnetically induced transparency,” *Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics*, vol. 44, no. 18, p. 184018, 2011.
- [77] J.-F. Wyart and P. Camus, “Extended analysis of the emission spectrum of neutral ytterbium (Yb I),” *Physica Scripta*, vol. 20, no. 1, p. 43, 1979.
- [78] M. Schäfer, M. Raunhardt, and F. Merkt, “Millimeter-wave spectroscopy and multichannel quantum-defect-theory analysis of high Rydberg states of xenon : The hyperfine structure of $^{129}\text{Xe}^+$ and $^{131}\text{Xe}^+$,” *Phys. Rev. A*, vol. 81, p. 032514, Mar 2010.
- [79] M. Schäfer and F. Merkt, “Millimeter-wave spectroscopy and multichannel quantum-defect-theory analysis of high Rydberg states of krypton : The hyperfine structure of $^{83}\text{Kr}^+$,” *Phys. Rev. A*, vol. 74, p. 062506, Dec 2006.
- [80] C. L. Vaillant, M. P. A. Jones, and R. M. Potvliege, “Long-range Rydberg–Rydberg interactions in calcium, strontium and ytterbium,” *Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics*, vol. 45, no. 13, p. 135004, 2012.

- [81] B. Fawcett and M. Wilson, “Computed oscillator strengths, Landé g values, and lifetimes in Yb II,” *Atomic Data and Nuclear Data Tables*, vol. 47, no. 2, pp. 241 – 317, 1991.
- [82] J. J. McLoughlin, A. H. Nizamani, J. D. Siverns, R. C. Sterling, M. D. Hughes, B. Le-kitsch, B. Stein, S. Weidt, and W. K. Hensinger, “Versatile ytterbium ion trap experiment for operation of scalable ion-trap chips with motional heating and transition-frequency measurements,” *Phys. Rev. A*, vol. 83, p. 013406, Jan 2011.
- [83] T. F. Gallagher and S. Niyaz. Communication privée.
- [84] U. Fano, “Effects of configuration interaction on intensities and phase shifts,” *Phys. Rev.*, vol. 124, pp. 1866–1878, Dec 1961.
- [85] P. Pillet. Communication privée.
- [86] R. Grimm, M. Weidemüller, and Y. B. Ovchinnikov, “Optical dipole traps for neutral atoms,” vol. 42 of *Advances In Atomic, Molecular, and Optical Physics*, pp. 95 – 170, Academic Press, 2000.
- [87] M. Schmidt, “Vapor pressure calculator (IAP/TU Wien),” 2013.
- [88] L. Nenadović and J. J. McFerran, “Clock and inter-combination line frequency separation in 171 Yb,” *Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics*, vol. 49, no. 6, p. 065004, 2016.
- [89] K. Pandey, A. K. Singh, P. V. K. Kumar, M. V. Suryanarayana, and V. Natarajan, “Isotope shifts and hyperfine structure in the 555.8-nm $^1S_0 \rightarrow ^3P_1$ line of Yb,” *Phys. Rev. A*, vol. 80, p. 022518, Aug 2009.

Titre : Spectroscopie Rydberg et excitation du coeur isolé d'atomes d'ytterbium ultra-froids

Mots clés : Atomes de Rydberg, atomes ultra-froids, spectroscopie, auto-ionisation

Résumé : Les atomes de Rydberg constituent des objets idéaux pour l'étude des systèmes physiques en interaction à longue portée. Transposer à ces atomes très excités les techniques habituelles d'imagerie et de piégeage des atomes froids offrirait de nouvelles opportunités pour le domaine de la simulation quantique. Notre approche consiste à utiliser un atome à deux électrons de valence optiquement actifs tel que l'ytterbium. En effet, les transitions optiques du coeur ionique de cet atome ouvrent la voie à de nombreuses perspectives pour la manipulation optique dans l'état de Rydberg. Lorsque l'atome est doublement excité, il peut néanmoins auto-ioniser puisque son énergie se situe au delà de la première limite d'ionisation. La possibilité de s'affranchir totalement de l'auto-ionisation est une question ouverte.

Dans cette thèse, nous présentons en premier lieu les contributions apportées au montage de l'expérience, du refroidissement des atomes d'ytterbium sur la raie d'intercombinaison à l'excitation dans des états de Rydberg. À cause des interactions entre électrons de

valence, la spectroscopie de ces états très excités est plus complexe dans l'ytterbium que dans les atomes alcalins. Une étude expérimentale couplée à une analyse par théorie du défaut quantique à plusieurs voies (MQDT) a été réalisée sur diverses séries Rydberg (s, p, d et f). Cette étude, prérequis essentiel, a permis d'améliorer la précision de plus de deux ordres de grandeur sur la spectroscopie des séries étudiées. L'excitation du coeur ionique a ensuite été mise en place sur la transition $6s_{1/2} \rightarrow 6p_{1/2}$. Nous avons alors étudié expérimentalement et théoriquement l'excitation du coeur isolé pour des états de Rydberg de grand moment orbital ($l = 5 - 9$). Cette étude a montré que l'auto-ionisation est dominée par le couplage au continuum de l'état de coeur $5d_{3/2}$. Par opposition à l'atome de baryum, pour lequel l'auto-ionisation chute rapidement avec le moment orbital de l'électron Rydberg, nous avons montré que cette tendance est moins marquée sur l'ytterbium. Grâce à cette étude, nous pourrions déterminer les états pour lesquels la manipulation optique par laser est possible.

Title : Rydberg spectroscopy and isolated core excitation of ultra-cold ytterbium atoms

Keywords : Rydberg atoms, ultra-cold atoms, spectroscopy, autoionization

Abstract : Rydberg atoms offers an ideal platform for the study of long-range interacting systems. However, usual techniques for imaging and trapping are unavailable in alkali Rydberg atoms. Our approach rely on the use of a two-optically-active-valence-electrons atom such as ytterbium. Ionic core transitions of this atom offer new perspectives for optical manipulation in the Rydberg state. However, questions remain open, especially on the possibilities of avoiding the autoionization, process which occurs when the atom is doubly excited.

In this thesis, we report on the construction of the experiment, from the cooling and trapping of the atoms to the excitation in Rydberg states. Because of the interactions between valence electrons, the spectroscopy of these highly excited states is

relatively complicated. An experimental study, coupled to a multi-channel quantum defect analysis (MQDT) has been done on the s,p,d and f Rydberg series. This study produced an improvement on the precision of the spectroscopy of this series by more than two orders of magnitude. We then studied the isolated core excitation on the $6s_{1/2} \rightarrow 6p_{1/2}$ transition for Rydberg states of large orbital quantum numbers ($l=5-9$). This study showed that auto-ionisation is mostly due to the coupling to the continuum of the $5d_{3/2}$ core state. In opposition to the barium atom, where auto-ionisation drops rapidly with the orbital quantum number, we have shown that ytterbium is less favourable to that extent. Thanks to this study we will be able to determine which states are good candidates for the optical manipulation.

