

Atomes de Rydberg: Étude pour la production d'une source d'électrons monocinétique. Désexcitation par radiation THz pour l'antihydrogène

Mélissa Vieille Grosjean

▶ To cite this version:

Mélissa Vieille Grosjean. Atomes de Rydberg: Étude pour la production d'une source d'électrons monocinétique. Désexcitation par radiation THz pour l'antihydrogène. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Université Paris Saclay (COmUE), 2018. Français. NNT: 2018SACLS349. tel-01912390

HAL Id: tel-01912390 https://theses.hal.science/tel-01912390

Submitted on 5 Nov 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.



Atomes de Rydberg: Étude pour la production d'une source d'électrons monocinétique, Désexcitation par radiation THz pour l'antihydrogène

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

Ecole doctorale n°572 Onde et Matière (EDOM) Spécialité de doctorat : Lasers, Molécules, Rayonnement atmosphérique

Thèse présentée et soutenue à Orsay, le 05 octobre 2018, par

MÉLISSA VIEILLE GROSJEAN

Composition du Jury :

M. Antoine Browaeys Directeur de recherche, LCF M. Christian Bordas Directeur de recherche, ILM M. Luca Guidoni Chargé de recherche, LMPQ Mme. Marie Géléoc Ingénieure de recherche, CEA (IRAMIS) M. Jean-François Lampin Directeur de recherche, IEMN M. Daniel Comparat Directeur de recherche, LAC

Président du jury Rapporteur Rapporteur Examinatrice Examinateur

Directeur de thèse

Remerciements

Ce travail de thèse a été réalisé au Laboratoire Aimé Cotton, successivement dirigé par M. Jean-François Roch et M. Djamel Benredjem. Je tiens à les remercier tous deux de m'avoir permis de poursuivre ces trois années dans les meilleures conditions.

Je tiens à remercier vivement le pôle MAFICC dont l'équipe MFC qui m'a accueillie fait partie. Oui, vous aussi à l'IDRIS je vous remercie, nos rencontres furent (trop) peu nombreuses mais toujours enrichissantes. Aussi, la longueur des réunions d'équipe MFC, illustre bien le plaisir que nous avions à échanger, et en particulier les « permanents » à communiquer à nous les plus jeunes à la fois votre expérience et votre passion. Pour cela je remercie Pierre Pillet, mon directeur de thèse Daniel Comparat, Patrick Cheinet, Yan Picard et Hans Lignier. Je tiens également à exprimer toute ma gratitude à Emiliya Dimova et Zeudi Mazzotta sans qui la manip n'aurait pas été opérationnelle si vite.

Dans un second temps j'aimerais exprimer ma reconnaissance aux membres de mon jury de thèse :

- Merci Antoine Browaeys de m'avoir fait l'honneur de présider ce jury, merci de votre bienveillance.
- Merci aux deux rapporteurs, Christian Bordas et Luca Guidoni, pour l'intérêt que vous avez témoigné pour ce travail. Merci du temps que vous y avez consacré durant cet été. Vos avis ont été précieux pour préparer la soutenance.
- Merci aux deux examinateurs, Jean-François Lampin et Marie Géléoc. Je vous remercie de l'attention que vous avez portée à mon travail, et de la pertinence de vos remarques qui ont contribué à l'amélioration de ce manuscrit.

Daniel, tu ne pensais pas t'en sortir à si bon compte. Merci d'avoir dirigé cette thèse. Les débuts n'ont pas toujours été faciles, et je te remercie infiniment de ta patience et de ta disponibilité tout au long de la thèse. J'oublierai sûrement des choses pour lesquelles je peux te remercier, et pour n'en citer que quelques-unes, je dirais :

- Merci pour ce que tu m'as appris, scientifiquement et humainement.
- Merci pour l'ambiance agréable de travail que tu crées.
- Merci de m'avoir fait découvrir la « patafix », je commence à vouloir en coller partout.

En parlant des conditions de travail, c'est le moment de remercier l'intégralité du laboratoire. J'ai eu la chance d'évoluer dans un laboratoire où cohabitent un certain nombre de spécialités. Échanger avec chacun de vous a toujours été constructif. Je salue notamment le service électronique (« esthétronique ») et tous ses membres, pas seulement pour leurs beaux fils verts, mais aussi pour leur aide, leur soutien et leur disponibilité. Je remercie aussi la méca, vous m'avez toujours bien accueillie, et aidée (comment ça j'ai cassé la vis?). Petite mention spéciale pour Daniel, qui, sur ses heures de repas, se transforme en entraîneur pour m'en faire baver mais me permettre d'arriver préparée au départ d'une course. Que nos chemins de trail se croisent à nouveau. Merci également au bureau d'étude, celui que j'ai connu : Bruno et Pascal. Bruno, ta bonne humeur constante et ta philosophie sont un rayon de Soleil dans le labo. Pascal, merci du temps que tu m'as accordé, merci aussi du temps passé à me faire découvrir la CAO et surtout merci de ta bienveillance. Enfin, Hervé, qu'aurais-je fais sans ton aide précieuse et indispensable ...

Doctorants, ce paragraphe est à vous. Vous m'avez fait sortir de ma carapace petit à petit et je ne vous dirai jamais assez merci pour ça. J'ai rencontré pendant la thèse des personnes formidables, et vécu des moments inoubliables. Julie, Lucile, Hiba, vous souvenez-vous de cette séance de serrage de vis impromptue? Clément et Paul, un jour la SaintéLyon? Caroline, tu es la meilleure organisatrice de séminaire doctorant au monde, et pour ça il en fallait du courage. Merci Pascal de m'avoir écoutée dans le bureau même quand tu ne voulais pas. Thibault, t'es sûr qu'il est éteint le fer à souder? Raphaël, merci d'avoir partagé la garde de notre directeur de thèse avec moi, je te souhaite bien du courage pour la suite, et si tu désespères, sache qu'il adore les oursons en guimauve. Merci à ceux que je ne cite pas personnellement et qui contribuent tout autant à la bonne ambiance du laboratoire. Les goûters avec vous tous me manqueront et me manquent déjà.

Il y a des personnes qu'on ne peut mettre dans aucun paragraphe. Nouari tu en fais partie. Je ne serais jamais allée au bout sans ton aide, tes encouragements et ton soutien quotidiens. Je ne serais pas non plus où je suis actuellement, et je crois que je continuerai à faire appel à ta sagesse encore régulièrement.

En dernier lieu, je tiens à remercier mes amis et mes proches. Merci Cédric, de m'avoir supportée même quand j'étais affreuse, d'avoir partagé les meilleurs moments de cette dernière année et enfin d'avoir contribué à ce manuscrit.

Rien de tout cela n'aurait été possible non plus sans ma famille. Son soutien a été sans faille, et ce depuis le tout début. Ma sœur, mon Lili, tu es un modèle, un exemple pour moi. Ta détermination m'a toujours impressionnée, ainsi que ton courage et ta force de caractère. J'avoue t'en avoir volé un peu pour mener ce travail à bien. Papa, Maman, vous m'avez appris que le travail paye toujours, et c'est ce que je me répète sans cesse pour avancer. Je vous aime, et vous remercie infiniment d'être là, toujours, quand ça va et quand ça ne va pas, inconditionnellement. Merci à toute ma famille, où que vous soyez.

Table des matières

Ta	Table des matières 5							
In	trod	uction	générale					7
Ι	\mathbf{Le}	s ator	nes de Rydberg comme source d'électrons					11
1	L'io	nisatio	on des atomes de Rydberg alcalins en champ électriqu	ıe				13
	1.1	Quelq	ues sources existantes		•			13
		1.1.1	Les sources d'électrons					14
		1.1.2	Les sources d'ions				•	15
		1.1.3	La source en développement au LAC				•	15
	1.2	Etude	de l'hydrogène					17
		1.2.1	Effet Stark : Changement de base et de nombres quantiques					17
		1.2.2	Ionisation en champ électrique				•	18
	1.3	Ionisa	tion en champ des atomes de Rydberg de césium					21
		1.3.1	Les atomes alcalins et le césium					22
		1.3.2	Effet Stark dans l'atome de Rydberg de césium					27
		1.3.3	Ionisation				•	27
		1.3.4	Modélisation					28
		1.3.5	Description du système				•	32
		1.3.6	Étude théorique du croisement				•	35
		1.3.7	Conditions optimales				•	44
	1.4	Conclu	usions		•		•	45
2	Les	réalisa	ations expérimentales					47
	2.1	Motiv	ations				•	47
	2.2	Les ét	udes de la source au LAC		•		•	49
		2.2.1	Principe		•		•	50
		2.2.2	L'excitation laser des atomes de césium		•		•	50
		2.2.3	Justification du choix du niveau de Rydberg		•		•	51
		2.2.4	Réalisation expérimentale				•	56
		2.2.5	Conclusions sur la source LAC		•		•	60
	2.3	Le mi	croscope électronique à haute résolution de Mayence		•		•	61
		2.3.1	Espace des phases et dispersion en énergie		•		•	61
		2.3.2	La source : un piège magnéto-optique à 3 dimensions $\ . \ .$		•		•	62
		2.3.3	Le spectromètre en temps de vol et la ligne à retard		•		•	65
		2.3.4	Premiers résultats		•		•	68
	2.4	Conch	usions sur le choix de la source pour l'instrument HREELM		•		•	75
		2.4.1	La source continue : LAC					75

		2.4.2	La source pulsée : JGU Mayence	76
Π	L	es ato	mes de Rydberg dans la production d'anti-hydrogène	81
3	Pro	ductio	n d'antihydrogène stable au CERN	83
	3.1	L'anti	matière en laboratoire : une longue histoire	85
	3.2	$AE\overline{g}IS$	au CERN	86
		3.2.1	Méthodes de production d'anti-hydrogène	87
		3.2.2	Schéma global d'AEgIS	88
		3.2.3	Notre contribution concernant AEgIS	88
		3.2.4	Le schéma de désexcitation	89
	3.3	Cas sin	mple à deux niveaux	91
		3.3.1	Transitions par émission spontanée	91
		3.3.2	Transitions stimulées par le corps noir entre niveaux atomiques	93
		3.3.3	Photoionisation par laser ou corps noir	93
		3.3.4	Puissance nécessaire pour effectuer les transitions, et évolution des	
			populations	94
		3.3.5	Prise en compte de la photoionisation	100
	3.4	Cas de	e plusieurs niveaux	103
		3.4.1	Etude des populations des différents niveaux excités : Laser Cooling	100
			Code C++	103
	~ ~	3.4.2	Résultats des premières simulations	106
	3.5	Conclu	1810ns	111
4	Exp	oérienc	e	115
	4.1	Les tes	sts des sources, détecteur et différents filtres	116
		4.1.1	Le détecteur pyroélectrique	118
		4.1.2	Les filtres	120
	4.2	Etude	d'un guide	126
		4.2.1	Choix du guide	127
		4.2.2	La collimation des faisceaux des lampes	130
		4.2.3	Mesures de puissance	133
		4.2.4	Conclusions	137
	4.3	Dispos	sitif expérimental	138
		4.3.1	Détection d'infra-rouge grâce aux atomes de Rydberg	139
		4.3.2	Excitation du césium par laser	140
		4.3.3	Enceinte expérimentale	141
		4.3.4	Ionisation et détection des ions Cs+	141
		4.3.5	L'acquisition des données	144
	4.4	Mesur	es de durées de vie d'états de Rydberg de césium	148
		4.4.1	Simulations	148
	4 -	4.4.2	Mesures experimentales et comparaison avec les simulations	150
	4.5	Conch	Isions et perspectives	154
5	Les	source	es THz	157
	5.1	Les so	urces larges spectralement	157
		5.1.1	Le rayonnement synchrotron	160
		5.1.2	Le laser à électrons libres	160
		5.1.3	La technique "Half Cycle Pulse"	160

	5.2	Les sources fines	163
		5.2.1 Le laser à cascade quantique	163
		5.2.2 Les diodes	163
		5.2.3 Le "THz photomixing"	164
	5.3	Le façonnage de faisceau pour utiliser un photomixeur	171
		5.3.1 Un exemple	171
		5.3.2 VIPA	171
		5.3.3 Le projet au LAC	174
	5.4	Conclusions	178
	Con	nclusion générale	179
A	nnex	es	181
Α	Con	npléments sur l'atome d'hydrogène et les alcalins	183
	A.1	Atome d'hydrogène	183
		A.1.1 Niveaux d'énergie et fonctions d'onde	183
		A.1.2 Effet d'un champ électrique, effet Stark	184
		A.1.3 Effet Stark linéaire de l'hydrogène	186
	A.2	Alcalins : méthode BKW	187
В	Leo	corps noir	191
	B.1	La luminance énergétique et la luminance spectrale	191
	B.2	La densité spectrale	192
	B.3	Approche corpusculaire	192
С	Eler	ments expérimentaux	195
	C.1	Matrice de corrélation	195
	C.2	Conclusion	199
Bi	ibliog	graphie	201

Introduction générale

Depuis les années 1975, les atomes de Rydberg sont étudiés et maintenant utilisés en information quantique pour leurs propriétés particulières d'interaction. L'électron de valence d'un atome de Rydberg étant situé très loin du cœur, il en découle une très grande taille pour ces atomes, et un fort moment dipolaire, ces deux éléments étant responsables de ces propriétés singulières. Cependant, ces objets physiques peuvent se retrouver impliqués dans différentes autres applications, où leurs caractéristiques remarquables en font de parfaits outils. Dans cette thèse nous en verrons une première application pour le développement d'une source d'électrons monocinétique, et une deuxième pour la désexcitation d'atomes de Rydberg d'antihydrogène.

Tout d'abord, nous verrons comment utiliser de tels atomes pour produire une source d'électrons monocinétique, grâce au mécanisme d'ionisation singulier de ce type d'atomes à une valeur précise de champ électrique dépendante du niveau d'excitation. Les électrons ainsi produits sont ensuite extraits et leur dispersion en énergie mesurée. On montrera notamment de façon théorique et d'après les premières mesures expérimentales réalisées pendant la thèse, que l'on peut espérer obtenir une dispersion en énergie des électrons produits par cette technique de l'ordre du meV, résolution jamais atteinte à ce jour. Ce type de source devient aujourd'hui un outil indispensable dans le contexte actuel de recherche et de développement de nouveaux matériaux pour les domaines de la santé, de l'environnement ou l'information. En effet les propriétés fonctionnelles de matériaux sont liées à l'arrangement des éléments chimiques (atomes ou molécules, organiques ou inorganiques) en leur sein. Associer ensemble des atomes et des molécules pour former par exemple des films minces biocompatibles aux propriétés innovantes demande des moyens de contrôler des réactions au niveau moléculaire, mais aussi des outils d'analyse de ces matériaux. On parle ici d'applications de fonctionnalisation de surfaces à l'échelle microscopique, élément clef notamment dans la miniaturisation de dispositifs déjà existants. Pour maîtriser l'interaction d'un matériau avec son environnement, il faut pouvoir agir, et observer à l'échelle moléculaire, c'est-à-dire dans des gammes d'énergies de l'ordre de la dizaine d'électronvolt jusqu'au kiloelectronvolt. Les techniques utilisées actuellement en laboratoire sont des techniques de spectroscopie par perte d'énergie d'électrons (EELS Electron Energy Loss Spectroscopy), ou la microscopie à électrons de faible énergie (LEEM Low Energy Electron Microscope). La première technique offre une grande précision sur l'énergie des électrons utilisés. L'état de l'art permet aujourd'hui typiquement une dispersion en énergie du faisceau de quelques meV (1.3 meV dans [1]) pour une énergie moyenne des électrons de quelques dizaines de meV. Cependant elle ne permet pas une résolution spatiale suffisante de l'ordre du nm mais seulement de l'ordre du dixième de mm. La seconde technique mentionnée, le LEEM, offre une résolution spatiale jusqu'à la dizaine de nm [2], mais ne sont pas précises en énergie et ne permettent que 250 meV de résolution. Les solutions techniques existantes ne permettent donc pas à la fois une faible dispersion en énergie et une très bonne résolution spatiale. C'est pourquoi le projet HREELM (High Resolution Electron Energy Loss Microscope) a été initié par une collaboration formée par

des chercheurs de l'institut de physique de l'Université Johanes Gutenberg de Mayence (Allemagne), de l'Institut des Sciences Moléculaires d'Orsay, du Service de Physique de l'Etat Condensé du CEA Saclay et du Laboratoire Aimé Cotton d'Orsay dont je fais partie. Il s'agit de mettre au point un instrument aux performances inédites : une résolution spatiale de l'ordre de la dizaine de nm, et une dispersion en énergie de quelques meV. l'objet de la première partie de ce manuscrit est de décrire la technique envisagée pour l'un des éléments sensible de l'instrument : la source d'électrons, dont les atomes de Rydberg sont la clef de voûte.

Dans un second temps, nous verrons qu'il est possible de désexciter un nuage d'atomes de Rydberg de niveaux variés grâce à une source externe dans le domaine térahertz. Cette fois, c'est la structure atomique de ces atomes, c'est-à-dire le fort rapprochement en énergie des niveaux atomiques très excités (états de Rydberg) qui sera exploitée. Ce projet s'inscrit dans le cadre des expériences d'étude de l'antimatière menées actuellement au CERN, qui visent à élucider le mystère de l'asymétrie matière/antimatière, ou asymétrie baryonique. Les méthodes actuelles de production de l'antihydrogène, forment des nuages de ces anti-atomes dans différents états de Rydberg. Pour les étudier, il est alors nécessaire de désexciter le plus d'atomes d'antihydrogène possible vers le niveau fondamental. Or, l'émission spontanée est trop longue (plutôt de l'ordre de la ms), et il va donc falloir stimuler les transitions vers le niveau fondamental. Mais les règles de sélection des transitions dipolaires électriques nous empêcheront de réaliser les transitions voulues. En effet, les atomes d'antihydrogène peuplent des états de grands moments angulaires, donc seules les transitions de n en n-1 peuvent désexciter les atomes, et on doit donc procéder à une longue cascade de désexcitation. Il faudra alors trouver une source externe dont le spectre couvre les longueurs d'onde de toutes ces transitions. Dans la seconde partie de ce manuscrit, nous présenterons $AE\overline{q}IS$ (Antihydrogen Experiment : gravity, Interferometry, Spectroscopy), récente expérience installée sur le décélérateur à antiprotons du CERN, avant de proposer une méthode pour procéder à la cascade de désexcitation des atomes de Rydberg. Pour des raisons de simplicité nous avons mis au point un dispositif expérimental au Laboratoire Aimé Cotton, dispositif inexistant avant le début de ma thèse, permettant de tester la faisabilité de la technique sur des atomes de Rydberg de césium. Ceux-ci, parce qu'atomes alcalins, ressemblent fortement aux atomes d'hydrogène, et donc a priori aux atomes d'antihydrogène. Le principal obstacle rencontré réside dans la source externe utilisée, une lampe type corps noir dans un premier temps, et une partie significative de cette seconde partie sera consacrée à la recherche de la source idéale. En particulier, le caractère large spectralement associé à la nécessité d'une puissance non négligeable par transition, tout en s'affranchissant de fréquences indésirables (la photoionisation par exemple est source de perte d'atomes) nous amènera à l'utilisation d'un dispositif en pleine expansion actuellement, un photomixer.

Première partie

Les atomes de Rydberg comme source d'électrons

Chapitre 1

L'ionisation des atomes de Rydberg alcalins en champ électrique

Les domaines des technologies de la santé et de l'environnement demandent aujourd'hui la mise au point de nouveaux matériaux, permettant la réalisation de de dispositifs pour la microélectronique, ou la formation de films minces biocompatibles et résistants. L'étude des propriétés d'interactions de ces nouveaux matériaux demande des instruments d'imagerie de plus en plus précis, avec de meilleures résolutions en énergie et spatiale à la fois. En effet, l'interaction d'un élément avec l'environnement est intimement lié à la structure de surface du matériau, que l'on doit donc être capable de sonder précisément. On doit aussi être capable d'agir sur cette structure de surface par fonctionnalisation grâce à un contrôle fin des réactions chimiques en surface. Le domaine d'énergie concernant ces phénomènes surfaciques va de quelques dizaines d'eV au keV. A ce jour, aucun instrument commercial ne permet à la fois la résolution en énergie (de l'ordre du meV) et spatiale (quelques dizaines de nm) nécessaires à ces applications. Les faisceaux d'électrons sont actuellement le meilleur outil pour sonder et modifier les échantillons, et beaucoup des performances de l'instrument reposent sur la qualité de la source. Dans cette partie, nous présenterons un principe de source d'électrons qui devrait rendre possible la réalisation d'un instrument, appelé HREELM (High Resolution Electron Energy Loss Microscopy), aux performances inédites. Ce projet est porté par une collaboration France/Allemagne constituée d'équipes de recherche de différents instituts français (CEA, ISMO, LAC) et de l'institut de physique de Mayence. Dans le premier chapitre, nous décrirons le principe physique sur lequel repose la source d'électrons de faible dispersion en énergie imaginée, à savoir l'ionisation en champ électrique d'atomes de Rydberg. L'objectif sera également de quantifier la dispersion en énergie qui pourrait être atteinte avec cette technique, en utilisant une modélisation du phénomène que j'ai développé au cours de la thèse. Dans le second chapitre, nous analyserons les résultats des premiers test effectués au Laboratoire Aimé Cotton (sur la source elle-même) et à Mayence (sur la détection et la mesure de dispersion en énergie) où je me suis rendue plusieurs fois au cours de la thèse pour travailler sur la mise au point de la source (montage du piège magnétooptique) du dispositif qui s'y trouve. Nous proposerons enfin des solutions pour améliorer encore ces résultats en tenant compte des impératifs expérimentaux.

1.1 Quelques sources existantes

L'objectif ici n'est pas de faire une liste exhaustive des technologies utilisées pour produire des faisceaux d'électrons ou d'ions, mais seulement de préciser les dispersions en énergie couramment obtenues avec les techniques actuelles.

1.1.1 Les sources d'électrons

Une source d'électrons est appelée canon à électrons et il en existe surtout deux sortes : les canons basés sur l'émission thermoïonique et les canons basés sur l'émission à effet de champ.

Emission thermoionique

Le principe de l'émission thermoionique est de chauffer un matériau, qui sera alors la cathode, afin de donner aux électrons de ce milieu l'énergie suffisante pour s'extraire. On utilise en général des matériaux qui offrent un faible travail de sortie et que l'on doit donc chauffer raisonnablement : le tungstène (2700 °C) ou l'hexaborure de lanthane La B_6 (1500 °C). Le principal inconvénient de cette source, si l'on veut notamment la coupler à une colonne de microscope, est la trop grande taille du faisceau, qui dépend de la taille de la partie de la cathode qui est chauffée. Typiquement, la taille du faisceau pour les sources thermoïoniques sera comprise entre 10 μ m avec le lanthane et 50 μ m avec le tungstène. Pour des applications de microscopie il faudra réduire cette taille à quelques nanomètres avec des optiques électrostatiques.

Emission par effet de champ

L'émission par effet de champ consiste à appliquer un fort champ électrique sur une cathode en forme de pointe très fine. Il suffit alors d'appliquer une tension de l'ordre de plusieurs kilovolts entre la pointe et l'anode pour faire sortir les électrons. Il existe plusieurs types de cette sorte de source, comme par exemple celle dite "assistée thermiquement" qui est alors chauffée simultanément. Cela n'affecte que la stabilité de la source ainsi que le courant de sortie. Pour les canons à effet de champ la taille du faisceau de sortie est plus petite que pour les canons thermoïoniques puisque la pointe utilisée ne mesure qu'environ 1 μ m. En effet, le faisceau sera alors formé sur une très petite zone autour de la pointe, donc une dimension de l'ordre de la taille de la pointe (voir tableau 1.1). Pour une utilisation à basse énergie, le ralentissement des électrons (par optique électrostatique et/ou magnétique, la distance de focalisation par une lentille dépend de l'énergie du faisceau) introduira une dispersion en énergie des électrons, dégradant la résolution en microscopie.

	Unité	Tungstène	LaB_6	Effet de champ
Diamètre de la source	μm	50	20	$\simeq 1$
Dispersion en énergie ΔE	eV	1.5 à 2	1 à 2	0.3

TABLE 1.1 – Tableau comparatif de la dispersion en énergie obtenue pour différentes sources d'électrons à 100 keV, d'après [3].

Les aberrations chromatiques introduites par les optiques de focalisation sont dues à la dispersion en énergie des électrons dans la colonne d'un microscope (proportionnelle à $\Delta E/E$, où ΔE est la dispersion en énergie et E l'énergie moyenne des électrons) et dépendent du type de source utilisée, et de la taille du spot désirée. Sur le tableau 1.1, les différentes sources sont comparées. On remarque notamment que la seule source permettant d'obtenir une dispersion en énergie inférieure à l'électronvolt est l'émission par effet de champ, qui ne montrera pas les mêmes propriétés à basse énergie. La dispersion en énergie nécessaire pour procéder au contrôle chimique de réactions, qui fait partie des applications pour lesquelles l'instrument HREELM doit être conçu, nécessite une dispersion en énergie dix fois inférieure à celles obtenues par émission thermoïonique.



FIGURE 1.1 – Schéma de principe de la source d'ions à métal liquide.

1.1.2 Les sources d'ions

La source d'ions principalement utilisée pour les FIB (Focused Ion Beam) est une source à métal liquide (en anglais LMIS : "Liquid Metal Ion Source"), généralement du gallium. En effet ce métal possède plusieurs propriétés :

- Une faible température de fusion.
- Il est peu volatile.
- Sa pression de vapeur est faible.
- Il a d'excellentes propriétés mécaniques, électriques et de vide.
- Les caractéristiques de l'émission permettent une grande intensité angulaire avec une faible dispersion en énergie.

Le principe de fonctionnement d'une source à métal liquide est détaillé par la figure 1.1. Cette source fonctionne comme une source à émission par effet de champ où le matériau à ioniser est le gallium. Une différence de potentiel est appliquée entre l'aiguille enrobée de gallium liquide et une électrode. Sous l'effet du champ électrique, le gallium est ionisé et les ions sont accélérés.

La dispersion en énergie typique obtenue avec ce type de source d'ions, pour un courant de l'ordre de 1 à 2 μ A est d'environ 5 eV, pour une accélération à 30 keV des électrons produits.

1.1.3 La source en développement au LAC

Dans le cadre du projet HREELM, nous proposons de développer un source d'électrons au Laboratoire Aimé Cotton. Cette source utilisera les propriétés particulières des atomes de Rydberg, et notamment le fait qu'un tel atome s'ionise à une valeur très précise de champ électrique, propre à son nombre quantique principal n. L'idée pour réaliser une telle source est décrite sur la figure 1.2 réalisée à partir d'un diagramme Stark du césium (logiciel PairInteraction [4]) : les atomes de césium, une fois refroidis par laser ou issus d'un jet effusif obtenu par un four, sont excités sur un niveau de Rydberg dans un champ électrique homogène. On les laisse alors évoluer dans un gradient de champ pour qu'ils atteignent le champ d'ionisation aussi rapidement que possible avant qu'ils ne se désexcitent.

On peut se demander pourquoi utiliser des atomes de Rydberg plutôt que de photo-ioniser directement par laser. En effet, par photo-ionisation, la dispersion en énergie ne peut être



FIGURE 1.2 – Diagramme Stark du césium autour du niveau n=25. Illustration du principe de la source développée au Laboratoire Aimé Cotton. Un atome, en vert, est excité par laser sur un état n choisi. Il évolue dans un gradient de champ, le champ F augmente (en bleu) pour amener l'atome à un croisement avec un état très instable, au niveau de la limite d'ionisation classique (en rouge). L'atome est alors ionisé (étoile jaune).

meilleure que 1 eV, ce qui correspond aux sources déjà existantes. En effet, on doit appliquer un champ électrique $\overrightarrow{F} = F \ \overrightarrow{u_z}$ pour extraire les particules chargées qui sont ionisées sur la zone définie par le waist du laser Δz . On peut donc écrire la dispersion en énergie comme suit :

$$\Delta E = q \Delta z \ F \tag{1.1}$$

Cela correspond, par exemple, à une dispersion en énergie de 1 eV avec un champ électrique de 1 kV/cm et une zone d'ionisation de 10 μ m. Cependant, les atomes de Rydberg s'ionisent tous au même champ électrique (petit Δz) donc une bonne configuration de champ pourrait permettre une faible dispersion en énergie.

Un élément important pour la réalisation expérimentale est notamment la pente du gradient de champ électrique appliqué. Plus le gradient est élevé plus les atomes vont s'ioniser rapidement et plus la zone d'ionisation sera petite. Un autre paramètre important est le taux d'ionisation de l'état de Rydberg, qui croît avec le champ électrique. Le fonctionnement de la source repose uniquement sur le phénomène d'ionisation en champ électrique des atomes de Rydberg. Dans la suite du chapitre, on va étudier en détails ce phénomène et en trouver une modélisation qui nous permettra de déterminer les valeurs optimales des paramètres expérimentaux pour obtenir les meilleures performances de la source. L'objectif est de trouver, en particulier, un niveau de Rydberg du césium qui s'ionisera en champ électrique par croisement avec un niveau instable : on cherchera à déterminer ce niveau n et son taux d'ionisation, en adéquation avec les impératifs expérimentaux.

1.2 Etude de l'hydrogène

Dans cette section, nous décrirons brièvement brièvement l'effet Stark pour les atomes d'hydrogène et les alcalins. On rappelle que l'effet Stark est le phénomène de levée de dégénérescence des niveaux en présence d'un champ électrique. Pour l'atome d'hydrogène, on parle d'effet Stark linéaire.

1.2.1 Effet Stark : Changement de base et de nombres quantiques

On applique un champ électrique selon l'axe z. Le hamiltonien est donc modifié comme suit (q la charge de l'électron, $e^2 = q^2/4\pi\epsilon_0$) :

$$H = \frac{p^2}{2m} - \frac{e^2}{r} - qFz$$
 (1.2)

On va donc observer une levée de dégénérescence au sein de chaque multiplicité caractérisée par un même nombre quantique principal n [5]. De plus, la symétrie du problème est également modifiée, elle devient cylindrique autour de l'axe (Oz). Le nombre l n'est plus un bon nombre quantique. On doit alors changer de base et de nombres quantiques. On passe dans la base parabolique.

Ce système est particulièrement bien adapté puisqu'il permet d'écrire l'équation de Schrödinger pour l'atome d'hydrogène sous la forme, [6] :

$$\Psi(\zeta, \eta, \phi) = f_1(\zeta) f_2(\eta) e^{im\phi} \tag{1.3}$$

avec :

$$\begin{cases} \zeta = r + z \\ \eta = r - z \\ \phi = \arctan \frac{y}{x} \end{cases}$$
(1.4)

Les surfaces définies par $\zeta = cste$ et $\eta = cste$ sont des paraboloïdes de révolution de foyer 0 et d'axe z, d'où le nom de coordonnées paraboliques. Ainsi, on peut séparer les variables et l'équation de Schrödinger peut alors s'écrire comme un système de deux équations indépendantes :

$$\begin{cases} \frac{d}{d\zeta} (\zeta \frac{df_1}{d\zeta}) + (\frac{E\zeta}{2} + Z_1 - \frac{m^2}{4\zeta} - \frac{F\zeta^2}{4}) f_1 = 0\\ \frac{d}{d\eta} (\eta \frac{df_2}{d\eta}) + (\frac{E\eta}{2} + Z_2 - \frac{m^2}{4\eta} - \frac{F\eta^2}{4}) f_2 = 0\\ Z_1 + Z_2 = 1 \end{cases}$$
(1.5)

Il n'y a donc plus un nombre quantique qui apparaît (le nombre quantique principal habituellement) mais deux, que l'on notera n_1 et $n_2 (\geq 0)$, et qu'on appelle nombres quantiques paraboliques. Ces nombres vérifient l'égalité suivante :

$$n = n_1 + n_2 + |m| + 1 \tag{1.6}$$

On notera que le nombre quantique azimutal m apparaît au carré dans les équations, son signe n'intervient donc pas, et il existe alors encore une dégénérescence en |m|.

Pour faire le changement de base, et passer des états $|n \ l \ m\rangle$ aux états $|n \ n_1 \ m\rangle$ (puisque n_1 et n_2 sont liés), il suffit d'introduire un coefficient de Clebsch-Gordan $\langle n, n_1, m | n, l, m \rangle (1.8)$), [7]:

$$|n, n_1, m\rangle = \sum_{l} |n, l, m\rangle \langle n, l, m| n, n_1, m\rangle$$
(1.7)

$$\langle n, n_1, m | n, l, m \rangle = \langle \frac{n-1}{2} \frac{m+n_1-n_2}{2}, \frac{n-1}{2} \frac{m-n_1+n_2}{2} | lm \rangle$$
 (1.8)

Cela aura pour effet, notamment, qu'un état en champ nul se retrouvera, une fois le champ appliqué, mélangé sur tous les états paraboliques.

1.2.2 Ionisation en champ électrique

La figure 1.3 présente une vision classique de l'ionisation de l'atome d'hydrogène en champ électrique. Sur cette figure, les courbes noires sont les équipotentielles (potentiels central en e^2/r et Stark en qFz). D'après leur allure ("ouvertes" sur les z positifs), on voit que la valeur minimale de l'énergie nécessaire pour ioniser l'atome correspondra à une trajectoire de sortie de l'électron sur l'axe z, trajectoire rectiligne la plus simple a priori.

Le long de cette trajectoire, le potentiel en unités atomiques vu par l'électron s'écrit :

$$V(z) = -\frac{1}{|z|} - F_{u.a.}z \tag{1.9}$$

Qui est la somme du potentiel coulombien pur et du terme lié au champ électrique $F_{u.a.}z$, en unités atomiques. Sur la figure 1.4 on a représenté en noir le potentiel coulombien pur, en rouge le potentiel perturbé (Stark) et en vert la limite d'ionisation (limite entre les niveaux discrets et le continuum). On va chercher la valeur du champ électrique nécessaire pour ioniser l'atome d'hydrogène. Cette valeur est la valeur limite du champ avant que le potentiel Stark soit inférieur à l'énergie des niveaux. Cela se traduit donc par :

$$\frac{1}{2n^2} = -\frac{1}{|z|} - F_{u.a.}z \tag{1.10}$$



FIGURE 1.3 – Interprétation classique de l'ionisation dans l'atome d'hydrogène, d'après [8] (figure réalisée pour la photoionisation de l'hydrogène) en coordonnées cylindriques (ρ, z) avec z l'axe du champ. Les lignes noires sont des équipotentielles (somme des potentiels central et Stark), l'échelle de couleur donne l'énergie des électrons. Les courbes rouges à bleues représentent les trajectoires des électrons dans le potentiel en fonction de l'angle d'émission. Cette figure illustre en particulier le fait que différentes trajectoires sont possibles, qui permettent de sortir plus ou moins facilement.

Dans un premier temps, il faut déterminer l'ordonnée z qui correspond à cette limite, on la notera z_c (c pour "col"). Sur la figure 1.4, on voit que ce point correspond à un maximum de la courbe du potentiel perturbé. Ainsi, en z_c , la dérivée selon z du potentiel Stark est nulle. On en déduit alors :

$$|z_c| = \frac{1}{\sqrt{F_{u.a.}}} \tag{1.11}$$

En injectant cette ordonnée dans la formule du potentiel perturbé (1.9) puis dans la relation (1.10), on trouve alors que la valeur du champ nécessaire pour ioniser l'atome d'hydrogène est (en unités atomiques) :

$$F \sim \frac{1}{16n^4} \tag{1.12}$$

Cette formule constitue ce que l'on appelle la limite d'ionisation classique, elle marque la séparation entre les parties discrète et continue du spectre de l'atome d'hydrogène, la partie continue (ou continuum) correspond à la zone (énergie) dans laquelle l'atome est ionisé [9].

La figure 1.5 présente les taux d'ionisation de l'atome d'hydrogène en fonction du champ électrique. Les atomes qui peuplent les différents niveaux s'ionisent quand, graphiquement, les lignes deviennent transparentes. La limite d'ionisation classique, formule (1.12), apparaît en ligne pointillée rouge. On remarque que l'ionisation effective des atomes d'hydrogène a lieu pour des champs bien plus forts que celui prédit par la limite classique, et pas selon la même tendance. On remarque qu'au sein d'une même multiplicité, certains états s'ionisent à la limite classique ([5]) ce sont les états rouges $(n_1 < n_2)$, appelés aussi en anglais "high field seeker", attirés par les champs forts. Pour les états bleus $(n_1 > n_2)$, ou "low field seeker", attirés par les champs faibles. Il faut un champ plus fort pour ioniser les atomes. Cela s'explique par le fait que l'électron est alors localisé loin du col et peut difficilement sortir de l'atome.

En effet, la limite classique ne prend pas en compte les éléments suivants :



FIGURE 1.4 – Potentiel Coulombien pur et potentiel Stark de l'atome d'hydrogène. Les unités sont arbitraires.



FIGURE 1.5 – Taux d'ionisation de l'atome d'hydrogène pour les multiplicités n=12, n=14 et n=16. L'ionisation commence quand les lignes disparaissent (quand le taux dépasse $10^9 s^{-1}$). Les états bleus d'une multiplicité s'ionisent à plus fort champ que les états rouges de la même multiplicité. La limite classique d'ionisation est représentée en ligne rouge pointillée.

- la distribution spatiale des fonctions d'onde
- l'effet tunnel

Si on veut en tenir compte, il faut utiliser la formule décrite dans [10], [11] et [12] qui donne le taux d'ionisation en champ électrique pour l'atome d'hydrogène et a permis de tracer la figure 1.5 :

$$\Gamma = \frac{(4R)^{2n_2+m+1}}{n^3 n_2! (n_2+m)!} exp\left[-\frac{2}{3}R - \frac{1}{4}n^3F(34n_2^2 + 34n_2m + 46n_2 + 7m^2 + 23m + \frac{53}{3})\right] (1.13)$$

Où $R = (-2E_n)^{3/2}/F$ et E_n est calculé à l'ordre 4 dans la référence [13] :

$$\begin{cases} E_n(F, n, n_1, m) = \\ -\frac{1}{2n^2} + \frac{3}{2}n(n_1 - n_2)F \\ -\frac{1}{16n^4}(17n^2 - 3(n_1 - n_2)^2 - 9m^2 + 19)F^2 \\ +\frac{3}{32}n^7(n_1 - n_2)(23n^2 - (n_1 - n_2)^2 + 11m^2 + 39)F^3 \\ -\frac{1}{1024}n^{10}(5487n^4 + 35182n^2 - 1134m^2(n_1 - n_2)^2 + 1806n^2(n_1 - n_2)^2 \\ -3402n^2m^2 + 147(n_1 - n_2)^4 - 549m^4 + 5754(n_1 - n_2)^2 - 8622m^2 + 16211)F^4 \end{cases}$$
(1.14)

Avec n le nombre quantique principal, n_1 et n_2 les nombres quantiques paraboliques et m le nombre quantique magnétique.

Cela est illustré classiquement sur la figure 1.3. Les courbes rouges et bleues décrivent les trajectoires possibles de l'électron avant de sortir du cortège. Les états bleus se situent du côté des z négatifs, l'électron a plus de mal à sortir (il "tourne"), la trajectoire n'est pas directe, il faut donc appliquer un champ électrique plus fort que pour les états rouges, du côté des z positifs.

Jusqu'à présent, nous avons étudié le mécanisme d'ionisation de l'hydrogène en champ, et nous avons décrit le fait que le potentiel de cœur de l'atome de césium, qui peut être vu comme une perturbation du potentiel de l'hydrogène, est à l'origine de toutes les différences de l'effet d'un champ électrique sur ces atomes. En particulier, d'après la figure 1.3, on peut dire que l'existence du potentiel de cœur pour les atomes alcalins va perturber les trajectoires de sortie de l'électron. Nous allons donc maintenant montrer comment le potentiel de cœur modifie l'ionisation de l'atome alcalin, et du césium en particulier, par rapport à l'hydrogène.

1.3 Ionisation en champ des atomes de Rydberg de césium

Après avoir détaillé l'ionisation de l'hydrogène, on va s'intéresser au cas du césium, que nous utiliserons dans les différentes expériences menées pendant la thèse. Nous allons voir comment les résultats obtenus avec l'hydrogène permettent de comprendre le mécanisme d'ionisation en champ électrique des alcalins et particulièrement du césium.

1.3.1 Les atomes alcalins et le césium

Les atomes alcalins sont particuliers car ils ne possèdent qu'un seul électron sur leur couche de valence. Leur configuration électronique est du type $[qaz \ rare]ns^1$. On les trouve dans la première colonne du tableau périodique des éléments (en dehors de l'hydrogène). Les atomes alcalins sont caractérisés par une énergie d'ionisation faible (qui diminue quand le numéro atomique augmente) et une faible électronégativité. Concernant le césium, un élément de cette famille des alcalins (avec le lithium, le sodium, le potassium, le rubidium et le francium), il a la particularité d'être un métal liquide à température ambiante (28° C). Son spectre d'émission possède deux raies bleues caractéristiques desquelles il tire son nom. Il est utilisé aujourd'hui pour faire des cellules photoélectriques à cathode de césium mais aussi pour faire des horloges atomiques grâce aux transitions atomiques entre les niveaux hyperfins de l'état fondamental. L'atome de césium fait partie des atomes que l'on peut refroidir par laser (refroidissement Doppler) car il possède une raie de résonance large, 6s vers 6p à 852 nm environ. On peut voir dans le tableau 1.2, tiré de [14], les différents atomes ayant été refroidis de cette manière. On remarque que l'on trouve presque tous les alcalins (le Francium n'apparaît pas, bien qu'il soit aussi refroidi par laser). On fait apparaître, outre le symbole et le numéro atomique de chaque élément, la longueur d'onde et la largeur de raie de refroidissement, et la température minimale pouvant être atteinte par cette technique. En effet, d'autres techniques, comme le refroidissement Sisyphe, peuvent permettre de descendre à des températures encore plus basses. Dans le cas de la source que nous voulons mettre au point, c'est un avantage de pouvoir refroidir ainsi le césium, car dans l'hypothèse où l'on voudrait également obtenir un faisceau d'ions (Cs⁺), il serait nécessaire de travailler avec des atomes froids (détaillé dans la référence [15]). En effet, il existe un lien direct entre la température, la vitesse des atomes et donc leur énergie : $k_BT = 1/2mv^2 = qV$. Une dispersion en énergie de l'ordre du meV, c'est-à-dire équivalente à une température transverse du jet de 10 K, correspond à une vitesse des électrons relativement grande (plusieurs milliers de m/s) et ne nécessite donc pas une source d'atomes froids. Cependant pour une source d'ions de la même dispersion en énergie, il faut que la vitesse transverse du jet soit inférieure ou égale à 25 m/s, d'où la nécessité d'un jet collimaté. Cette possibilité est étudiée en parallèle au sein d'Orsay Physics, une entreprise spécialisée dans la réalisation de faisceaux d'ions focalisés implantée à Aix-en-Provence. Ici, nous développons une source d'électrons, donc la possibilité de refroidir facilement le césium n'interviendra pas, mais nous gardons tout de même cet élément souvent utilisé au laboratoire Aimé Cotton, et pour lequel nous disposons des lasers d'excitation.

Les atomes alcalins sont similaires à l'hydrogène, avec un seul électron de valence qui orbite autour d'un cœur chargé positivement. On décrit donc cela par un potentiel central à longue distance, tout comme pour l'atome d'hydrogène. Cela sera d'autant plus vrai pour des atomes de Rydberg alcalins qui sont caractérisés notamment par un très grand nombre quantique principal, ce qui signifie que l'électron de valence est particulièrement éloigné du cœur chargé. On en déduit que l'étude de ces atomes, et en particulier des atomes de Rydberg du césium, pourra se rapprocher de l'étude de l'hydrogène. Cependant, à courte distance, et pour un faible moment angulaire orbital ($l \leq 3$), l'orbite classique de l'électron de valence est fortement elliptique et il verra alors le potentiel de cœur (figure 1.6), le potentiel ne sera donc plus coulombien. Ainsi on peut comprendre qu'à grande distance, il faudra trouver un moyen de modéliser l'éffet du cœur.



FIGURE 1.6 – Vision classique de la trajectoire de l'électron de valence d'un atome alcalin pour un grand moment angulaire et un petit.

Elément	A	$\lambda \ \mathrm{nm}$	$\Gamma/2\pi$ kHz	$T_{Doppler} \mu K$
Не	4	1083	1600	38
Li	6	671	5910	142
Na	23	589	9800	235
Mg	24	285	80000	1922
К	39	770	6000	144
Ca	40	423	34600	831
Cr	52	426	5020	121
Sr	84	461	30500	733
Rb	87	780	6100	147
Cs	133	852	5200	125
Fr	168	401	27500	661
		583	190	5
Dv	170	421	32000	769
Dy		626	135	3
Vh	174	399	29100	699
		556	183	4
Hg	202	254	1300	31

TABLE 1.2 – Tableau de certains atomes pouvant être refroidis par laser. On donne le symbole, le numéro atomique, la ou les longueurs d'onde laser pour le refroidissement, le taux de transition entre les niveaux considérés et enfin la température Doppler de refroidissement atteinte. La ligne bleue concerne l'atome de césium. Tableau d'après [14].

Les niveaux d'énergie des atomes alcalins et le défaut quantique

Plusieurs années après les célèbres travaux de Balmer [16], décrivant de façon empirique les longueurs d'onde des raies de l'hydrogène, Rydberg, en 1889, écrit la loi de Rydberg suivante, [17] :

$$\sigma_{nm} = \frac{1}{\lambda_{nm}} = T_m - T_n \tag{1.15}$$

avec

$$T_n = \frac{Ry}{(n-\mu)^2} \tag{1.16}$$

Où Ry est la constante de Rydberg et μ une grandeur sans dimension. Cette formule donne l'écart en énergie (unités atomiques) entre deux niveaux n et m. De façon plus précise pour le césium, on peut écrire l'énergie des niveaux sous la forme :

$$E_n = -\frac{Ry}{\alpha_{Cs}(n-\delta_l)^2} \tag{1.17}$$

Dans cette expression, la constante α_{Cs} prend en compte la masse du noyau, ici le césium, donc $\alpha_{Cs} = 1 + \frac{m_e}{m_{Cs}}$ et le terme $n - \delta_l$ est aussi appelé nombre quantique principal effectif, il prend en compte le défaut quantique δ_l (équivalent de μ dans la formule (1.15)) qui dépend du nombre quantique azimutal l mais très peu du nombre quantique principal n.

La formule (1.17) rappelle celle qui donne les niveaux d'énergie pour l'hydrogène $E_n = Ry/n^2$ et on voit que les niveaux d'énergie du césium seront décalés par rapport à ceux de l'hydrogène simplement de la valeur du défaut quantique. Un électron proche du noyau sera beaucoup plus perturbé par le noyau qu'un électron éloigné. Ainsi le défaut quantique diminue avec le nombre quantique l. De plus, la façon dont le cœur perturbe l'électron dépend de la nature de ce cœur et donc de la nature de l'atome. Ainsi le défaut quantique dépend aussi de l'atome considéré. Les défauts quantiques de différentes couches électroniques pour différents atomes alcalins sont donnés dans le tableau 1.3. On remarque que plus l'atome est lourd, plus les défauts quantiques sont importants, et plus les énergies seront décalées de celles de l'hydrogène d'un facteur important.

	S	р	d	f
Li	0.4	0.04	0	0
Na	1.35	0.85	0.01	0
Κ	2.19	1.71	0.25	0
Rb	3.13	2.66	1.34	0.01
Cs	4.05	3.57	2.47	0.03

TABLE 1.3 – Défauts quantiques pour l allant de 0 à 3 (s à f) pour Li, Na, K, Rb et Cs.

Il existe une formule empirique plus précise qui permet de calculer les défauts quantiques du césium, il s'agit de la formule de Ritz, [18]. Cette formule fait apparaître non seulement le nombre quantique du moment orbital l (azimutal) mais aussi le nombre quantique du moment angulaire total j (terme spin-orbite) :

$$\delta_{nlj} = \delta_0(lj) + \frac{\delta_2(lj)}{(n - \delta_0(lj))^2} + \dots$$
(1.18)

Dans cette expression les deux termes δ_0 et δ_2 sont des valeurs déterminées expérimentalement par spectroscopie micro-onde, [19] et plus récemment [20]. Pour les premiers niveaux, les résultats sont donnés dans le tableau 1.4.

Série	δ_0	δ_2
ns	4.0493532(4)	0.2391(5)
$np_{1/2}$	3.5915871 (3)	0.36273(16)
$np_{3/2}$	3.5590676 (3)	0.37469(14)
$nd_{3/2}$	2.475365	0.5554
$nd_{5/2}$	2.4663144(6)	0.01381(15)
$nf_{5/2}$	0.033392	-0.191
$nf_{7/2}$	0.033537	-0.191

TABLE 1.4 – Défauts quantiques du césium, d'après [19] et [20].

Il existe plusieurs méthodes pour retrouver la formule (1.17). L'une d'elles, l'approximation BKW (pour Brillouin, Kramers et Wentzel, développée en 1926), est une méthode semi-classique qui permet de retrouver l'expression des fonctions d'onde dans le cas d'un atome hydrogénoïde. De fait, on pourra utiliser cette méthode en utilisant le potentiel de cœur de l'atome alcalin. L'idée sur laquelle repose cette approximation est de développer les fonctions d'onde asymptotiquement au premier ordre de la puissance de \hbar , aussi appelé quantum d'action. On donnera ici les résultats principaux obtenus grâce à cette méthode. D'autres seront décrits en annexe A.

Soit $\Phi_{n,l,m}(r,\theta,\phi)$ la fonction d'onde d'une particule de masse non nulle μ évoluant dans un potentiel central. Elle s'écrit sous forme d'une partie radiale et des harmoniques sphériques : $\Phi_{n,l,m}(r,\theta,\phi) = \Psi_{n,l}(r) \times Y_{l,m}(\theta,\phi)$. Ψ est solution stationnaire de l'équation radiale de Schrödinger :

$$-\frac{\hbar^2}{2\mu}\frac{d^2r\Psi(r)}{dr^2} + V_{eff,l}(r)r\Psi(r) = Er\Psi(r)$$
(1.19)

Avec $V_{eff}(r, l)$ le potentiel central de l'atome d'hydrogène qui s'écrit, avec l le nombre quantique orbital, q la charge et μ la masse réduite Cs⁺/électron :

$$V_{eff}(r,l) = \frac{q}{4\pi\epsilon_0 r} + \frac{\hbar^2 l(l+1)}{2\mu r^2}$$
(1.20)

On écrit $\Psi(r)$ à l'aide des puissances de \hbar comme indiqué plus haut.

$$\Psi(r) = e^{\frac{i}{\hbar} \left[\sigma_0(r) + \frac{\hbar}{i} \sigma_1(r) + (\frac{\hbar}{i})^2 \sigma_2(r) + \ldots \right]}$$
(1.21)

On obtient alors la condition de raccordement aux points de retournement et la fonction d'onde pour les états liés (dans [6]et [21]) :

$$\begin{cases} \frac{1}{\pi\hbar} \int_{R_{int}}^{R_{ext}} p(r) dr = n + \frac{1}{2} \\ \Psi(r) = \sqrt{\frac{2\omega\mu}{\pi p(r)}} \cos\left(\frac{1}{\hbar} \int_{R_{int}}^{r} p(r') dr' - \frac{\pi}{4}\right) \end{cases}$$
(1.22)

Où $p(r) = \sqrt{2\mu(E - V(r))}$ est l'impulsion de la particule. Le nombre *n* est le nombre quantique principal et correspond au nombre de zéro de la fonction d'onde Ψ et ω dans la seconde ligne est la pulsation du mouvement classique.

L'approximation BKW sera particulièrement bien adaptée aux atomes de Rydberg (très grand nombre quantique principal n) car dans ce cas p sera grand, donc la longueur d'onde de De Broglie réduite sera petite et la condition de validité de l'approximation sera mieux satisfaite. Dans le cas des atomes de Rydberg alcalins, on définira deux zones spatiales pour le potentiel (r_0 est le rayon de coupure qui apparaît sur la figure 1.7) :



FIGURE 1.7 – Comparaison entre le potentiel de l'hydrogène et le potentiel du césium, perturbé par le cœur par rapport à l'hydrogène. Les potentiels sont tracés pour l = 0: en noir, potentiel coulombien pur (hydrogène), en rouge, potentiel perturbé par le cœur (césium). r_0 est le rayon de coupure.

$$\begin{cases} V(r,l) = V_{eff}(r,l) & pour \ r > r_0 \\ V(r,l) = V_{eff}(r,l) + V_{coeur}(r,l) & pour \ r \le r_0 \end{cases}$$
(1.23)

On retrouve dans ces deux zones de potentiel le fait qu'à longue distance on est ramené à une situation d'un électron de valence qui voit un cœur chargé ponctuel, et qu'à courte distance, le fait que le cœur soit un cœur atomique et pas seulement un proton, perturbe l'électron de valence (figure 1.6).

Dans ce cas, on peut alors montrer (annexe A) qu'il suffit d'ajouter un terme de phase à la fonction d'onde de l'hydrogène pour obtenir les fonctions d'onde pour un atome alcalin (simple développement limité sur V(r, l)). Le système d'équations 1.23 provient du fait que le hamiltonien d'un atome de Rydberg alcalin peut s'écrire en utilisant celui de l'atome d'hydrogène \widehat{H}_0 comme suit :

$$\widehat{H} = \widehat{H_0} + \widehat{V}_{coeur}(r) \tag{1.24}$$

Où le potentiel de cœur est alors traité comme une perturbation du hamiltonien de l'hydrogène. Ainsi, on comprend bien que le traitement de l'atome de Rydberg alcalin, et ici le césium, est très proche de celui fait usuellement pour l'atome d'hydrogène, à quelques différences près dues à la présence de ce potentiel de cœur qui intervient à courte distance. On peut utiliser l'approximation BKW qui donne l'expression de la fonction d'onde des états liés pour calculer l'effet du potentiel de cœur (décalage en énergie du à sa présence).

On obtient alors que l'effet du potentiel de coeur s'écrit, [22] (voir annexe A) :

$$\langle n, l, m | V_{coeur} | n', l', m' \rangle \sim -\frac{\delta_l}{\sqrt{n^3 n'^3}}$$

$$(1.25)$$

Où δ_l est le défaut quantique qui s'interprète aussi comme le déphasage des fonctions d'onde par rapport à l'hydrogène, et qui dépend notamment de la polarisabilité α du cœur.

1.3.2 Effet Stark dans l'atome de Rydberg de césium

Le hamiltonien du système avec champ électrique sera basé sur celui de l'hydrogène, et on pourra encore écrire :

$$\widehat{H}(t) = \widehat{H_0} + \widehat{V}_{coeur}(r) - q\vec{r}.\vec{F}$$
(1.26)

 $\widehat{H_0}$ désigne le hamiltonien en champ de l'état non perturbé et $\widehat{V}_{coeur}(r)$ la perturbation liée au cœur ionique et dépendante de la distance au cœur, [22]. Le potentiel de cœur sera très faiblement perturbé par la présence du champ électrique et on considèrera cette perturbation comme négligeable par la suite. L'effet Stark de l'hydrogène étant linéaire, son diagramme Stark présente des droites, avec une pente différente pour chaque niveau (n, l, m). De plus, d'après l'expression du potentiel de cœur, équation (1.27), plus le défaut quantique sera petit, plus l'effet du cœur sera faible dans l'atome alcalin. Pour illustrer cette remarque, on montre, figure 1.8, deux diagrammes Stark pour l'atome de césium autour du niveau n = 28, pour |m|=1/2 dans 1.8a et |m|=7/2 dans 1.8b. On note que pour une grande valeur de m, le diagramme Stark ressemble plus à celui de l'hydrogène. Le couplage étant moins fort, on observe peu de croisements évités. Pour les champs faibles (moins de 200 V/cm, ie 20000 V/m, les deux figures sont semblables (sauf pour les états s, p et d qui ont de forts défauts quantiques) : l'effet Stark est linéaire, on observe des droites. A plus fort champ, on observe des croisements évités entre des états de multiplicités différentes : les niveaux s'écartent les uns des autres mais ne se croisent pas, ce qui se traduit sur la figure 1.8a par des rebonds dans les lignes correspondant aux énergies des niveaux en fonction du champ électrique. En présence d'un champ électrique, la base change et nous devons donc trouver l'expression dans la base parabolique $|n, n_1, m\rangle$. On peut montrer que le couplage entre deux états par le potentiel de cœur s'écrit dans cette nouvelle base :

$$\langle n, n_1, m | V_{coeur} | n', n'_1, m' \rangle \sim \frac{\delta_{|m|}}{n^4}$$
 (1.27)

Pour obtenir ce résultat, on fait l'approximation $n \simeq n'$, puisque les niveaux qui se croisent sont de nombres quantiques principaux proches, et on utilise la relation qui permet de passer d'une base à l'autre ([7]), décrite par les équations (1.7) et (1.8). Le coefficient de Clebsch-Gordan (1.8) varie environ en $1/\sqrt{n}$. Au final :

$$\begin{cases} \langle n, n_1, m | V_{coeur} | n', n'_1, m' \rangle = \\ \sum_{l_0 = m, \dots, n-1} \sum_{l'_0 = m', \dots, n'-1} \langle n, n_1, m | n_0, l_0, m \rangle \langle n, l, m | V_{coeur} | n', l', m' \rangle \langle n'_0, l'_0, m' | n', n'_1, m' \rangle \\ = \frac{1}{\sqrt{n}} \frac{\delta_{|m|}}{\sqrt{n^3 n'^3}} \frac{1}{\sqrt{n'}} \simeq \frac{\delta_{|m|}}{n^4} \end{cases}$$
(1.28)

1.3.3 Ionisation

En champ électrique, l'ionisation de l'atome de césium est différente de celle de l'hydrogène, notamment la valeur du champ nécessaire pour ioniser les atomes ne dépendra pas du nombre quantique principal de la même façon.

On peut par exemple, tracer le spectre de photoabsorption du césium, faisant apparaître le taux d'ionisation. On obtient la figure 1.9. Les calculs de probabilité de photoabsorption ont été réalisés d'après [23] par Francis Robicheaux. Sur cette figure, plus les raies observées



FIGURE 1.8 – Comparaison des diagrammes Stark du césium autour du niveau $28f_{7/2}$ pour deux valeurs de m_j ($\vec{J} = \vec{L} + \vec{S}, s = 1/2$). Pour la valeur de |m| la plus grande, le diagramme est semblable à celui de l'hydrogène (effet Stark linéaire) car le couplage par le potentiel de cœur est faible, voir formule (1.27).

sont intenses, plus le niveau est facile à exciter par laser (grande probabilité d'absorption du photon laser), et la largeur des raies indique la stabilité du niveau : plus la raie est fine, plus le niveau est stable. La limite d'ionisation est différente par rapport à l'hydrogène : le champ d'ionisation diminue avec le nombre quantique principal selon la limite d'ionisation classique en $1/16n^4$. En champ, du fait du potentiel de cœur, les états se mélangent et lorsque le premier s'ionise, le second est affecté et s'ionise peu après et ainsi de suite. Il semble donc que le croisement d'un état stable avec état instable est responsable de son ionisation (classiquement grâce à la figure 1.3, cela signifie que les trajectoires qui étaient bleues dans le cas de l'hydrogène, qui évitaient le col de sortie sur l'axe z sont maintenant perturbées et passent toutes par ce col de sortie donc tous les états s'ionisent au même champ). Nous allons maintenant décrire ce type de croisement et la dynamique associée.

1.3.4 Modélisation

L'article [25] présente une étude des taux d'ionisation de plusieurs niveaux du sodium. En particulier, on trouve la figure 1.10a, qui représente un diagramme Stark du sodium autour des états n = 12, 13, 14, |m| = 2. On s'intéresse plus particulièrement à l'état A repéré par les nombres quantiques (en base parabolique) (12, 6, 3, 2). L'évolution de son taux d'ionisation est donné par la figure 1.10b. Le sodium est un atome alcalin de plus petit numéro atomique et donc de plus petits défauts quantiques que le césium que nous utiliserons ensuite. Ainsi, le diagramme Stark du sodium présenté en figure 1.10a est plus simple que celui du césium. On peut voir notamment plusieurs croisements deux à deux de niveaux. Cette figure permet de donner l'idée que l'on peut représenter un croisement par un système à deux niveaux. Sur la figure 1.10b, on voit que le taux d'ionisation de l'état A en fonction du champ électrique présente un maximum au niveau du champ de croisement avec le niveau α . Le taux d'ionisation d'un état stable se trouve perturbé, et notamment très fortement augmenté, quand celui-ci est mélangé, par le champ électrique, avec un ou plu-



FIGURE 1.9 – Probabilité de photoabsorption du césium autour du niveau n = 28. Pour chaque niveau d'énergie située entre – 70 cm⁻¹ et – 370 cm⁻¹, on voit l'évolution de la probabilité de photoabsorption quand la valeur du champ électrique augmente. L'ionisation, c'est-à-dire quand la probabilité de photoabsorption diminue (à droite), a lieu à la limite classique en $1/16n^4$ (courbe rouge en gras). Figure obtenue d'après [24] et [23].

sieurs niveaux instables proches en énergie. Ce phénomène est décrit également pour l'atome d'hélium dans [26]. On montre en particulier l'ionisation d'un triplet $|M_L| = 2$ de l'hélium en figure 1.11 en champ électrique. On voit un maximum de signal pour une valeur précise du champ électrique.

Un système à deux niveaux, avec des taux d'ionisation des états concernés qui évoluent en champ électrique semble être un modèle réaliste de l'ionisation d'un atome alcalin en champ électrique. On va maintenant voir si on peut transposer ce modèle à l'atome de césium.

La figure 1.12 présente le diagramme Stark du césium autour de n=25, jusqu'à 700 V/cm. Sur cette figure, on met en évidence deux croisements de niveaux. En bleu, deux niveaux se croisent dans une zone très dense, c'est-à-dire une zone où il y a beaucoup de niveaux proches les uns des autres. En rouge, deux niveaux se croisent dans une région où les niveaux sont bien plus espacés grâce à l'effet Stark. Dans ce cas-ci, on pourrait alors modéliser le croisement par un système à deux niveaux, qui est un modèle très souvent utilisé et que l'on sait résoudre. Dans un premier temps, on va essayer de trouver les conditions de validité de ce système à deux niveaux. Autrement dit, on cherche à poser un critère sur l'écart en énergie entre le croisement considéré et les autres niveaux (au-dessus, et en dessous). On va donc déterminer cet écart en énergie qui permet de considérer que les deux niveaux qui se croisent ne sont couplés que par le potentiel de cœur.

Cela revient à poser comme critère de validité que le potentiel de cœur, noté V_{coeur} doit être bien inférieur à l'écart en énergie avec le niveau le plus proche : $V_{coeur} \ll \Delta E$ (ce qui signifie que le potentiel de cœur ne couple effectivement que deux niveaux). Pour préciser ce



(a) Diagramme Stark autour des états n = 12, 13, 14 du sodium. Les traits deviennent pointillés quand le taux d'ionisation du niveau dépasse les $10^7 s^{-1}$.



(b) Evolution du taux d'ionisation de l'état A (12,6,3,2) du sodium (base parabolique) en fonction du champ électrique dans la région du croisement avec l'état α (14,0,11,2) encadré en rouge sur la figure a). Les points sont les données expérimentales, la courbe pleine est issue du calcul, et la courbe en pointillés donne les résultats d'un calcul dans le cas où on néglige un second croisement.

FIGURE 1.10 – Diagramme Stark du sodium et taux d'ionisation de l'état A (12, 6, 3, 2) au croisement avec l'état α (14, 0, 11, 2) (encadré en rouge sur (a)) en fonction du champ électrique. Ce croisement est isolé, les états supérieurs et inférieurs sont éloignés en énergie. Figures issues de [25].



FIGURE 1.11 – Signal d'un triplet de l'hélium $|M_L| = 2$ en fonction du champ électrique appliqué. Figure tirée de [26]. Cette figure illustre la probabilité de survie des atomes soumis à un champ électrique : plus le signal est faible plus les atomes s'ionisent, ce signal reflète donc bien un pic dans le taux d'ionisation des atomes. C'est cette configuration dans le césium que l'on cherche.



FIGURE 1.12 – Diagramme Stark du césium autour de n = 25, $|m_j| = +1/2$. En bleu apparaît un croisement non isolé tandis que celui en rouge l'est.

critère, on peut écrire au premier ordre que les différents niveaux n d'une même multiplicité sont éloignés en énergie (unités atomiques) de $\Delta E = \frac{3}{2}Fn$ (voir figure 1.12). Au niveau du croisement, pour lequel le champ de croisement sera environ la limite classique d'ionisation, valeur du champ électrique pour laquelle s'ionise un atome de Rydberg alcalin, c'est-à-dire $F_c = \frac{1}{16n^4}$ en unités atomiques. Cela revient à écrire $\Delta E = \frac{3n}{32n^4} u.a. \simeq \frac{n}{10n^4} u.a.$. Cet écart en énergie correspond à l'écart minimum qu'il peut y avoir entre deux états de deux multiplicités n et n + 1. Sachant que le potentiel de cœur s'écrit en première approximation $\frac{\delta_{|m|}}{n^4}$ (équation 1.27) où $\delta_{|m|}$ est le défaut quantique, on en déduit que le modèle à deux niveaux n'est valide que si :

$$\delta_{|m|} \ll \frac{n}{10} \tag{1.29}$$

Dans le cas du césium le modèle ne sera donc valable que pour les niveaux de nombre quantique l supérieur à 3, car $l \ge m$ et d'après les tableaux 1.3 et 1.4, à moins de chercher des niveaux de Rydberg de très grands n.

En pratique nous utiliserons des niveaux de n compris entre 10 et 100. En effet, si on choisit des niveaux de n peu élevé, comme 10, le champ électrique d'ionisation sera trop grand pour être réalisable expérimentalement. Si on choisit un niveau de n supérieur à 100, alors le champ d'ionisation sera cette fois très faible, et la moindre inhomogénéité de champ sera perçue et perturbera l'ionisation.

1.3.5 Description du système

Maintenant, nous allons étudier le cas où nous avons à faire effectivement à un croisement isolé, ce qui permettra au moins, dans un premier temps de donner une intuition sur le processus d'ionisation, et des ordres de grandeurs par la suite de la dispersion en énergie que l'on pourrait attendre. Nous allons donc étudier le cas d'un état stable croisant un état instable et nous modéliserons donc cette situation par un système à deux niveaux tel qu'il est décrit dans la figure 1.13 : Un état stable (en bleu sur la figure) croise un état très instable (en rouge sur la figure). Nous décrirons d'abord le système général auquel nous nous intéresserons, à l'aide du formalisme Landau-Zener. Nous verrons ensuite que l'on peut considérer un croisement adiabatique ou non et nous étudierons ces deux cas. Enfin, on essayera de trouver les conditions optimales pour une réalisation expérimentale de tels croisements. C'est-à-dire :

- Déterminer un niveau (n, l) que l'on peut effectivement peupler avec les lasers dont nous disposons. l n'étant plus un bon nombre quantique en champ électrique, il s'agit ici d'un abus de langage, mais on rappelle que $l \ge m$. On devrait en réalité écrire (n, m).
- Que ce niveau (n, l) croise un niveau très instable en champ électrique, peu avant la limite d'ionisation.
- Que ce niveau devienne instable par ce croisement, pour qu'il s'ionise ensuite avec l'augmentation du champ électrique (champ réalisable expérimentalement).
- Que ce processus donne une petite zone d'ionisation pour aboutir à une faible dispersion en énergie.

Parmi tous ces éléments, les critères qui permettront de quantifier la qualité du croisement seront : le taux d'ionisation de l'état instable et le couplage entre les deux niveaux choisis pour le croisement, ces deux grandeurs devant rester compatibles avec les paramètres expérimentaux tels que les lasers et le gradient de champ électrique que l'on peut créer. Le



FIGURE 1.13 – Schéma du système à deux niveaux. Les états initiaux apparaissent en traits pleins. L'état 1 est fin et l'état 2, instable est plus épais. Les états propres apparaissent en pointillés, Ψ_+ en haut et Ψ_- en bas. Le couplage vaut $\hbar\Omega$ et la durée de vie de l'état instable est Γ , tandis que la pente entre les niveaux s'écrit $\hbar\delta$.

hamiltonien décrivant le système est écrit dans l'équation (1.30) et schématisé en figure 1.13. Ω est le terme de couplage entre les deux états par le potentiel de cœur, et $1/\Gamma$ est la durée de vie de l'état instable. Sur la figure 1.13, la largeur du niveau instable correspond à sa durée de vie (plus elle est courte, plus le trait est épais), et le couplage entre les états se traduit par l'écart entre les états propres.

$$H = \hbar \begin{pmatrix} \frac{\delta}{2} & \Omega\\ \Omega & -\frac{\delta}{2} - i\frac{\Gamma}{2} \end{pmatrix}$$
(1.30)

On peut alors déterminer les valeurs propres de ce système. Elles s'écrivent sous la forme $E_{\pm} = \hbar \left(\delta_{\pm} + i \frac{\Gamma_{\pm}}{2} \right)$ avec :

$$\begin{cases} \Gamma_{\pm} = \left(-\Gamma \pm Im \left[\sqrt{16\Omega^2 - (\Gamma + 2i\delta)^2}\right]\right) \\ \delta_{\pm} = \pm \frac{1}{2}Re \left[\sqrt{16\Omega^2 - (\Gamma + 2i\delta)^2}\right] \end{cases}$$
(1.31)

 Γ_{\pm} sont donc les taux d'ionisation des états propres et δ_{\pm} leurs énergies. Ces états propres, qui sont les états finaux possibles apparaissent en pointillés sur la figure 1.13. En haut on aura l'état que l'on appellera Ψ_+ et en bas l'état que l'on appellera Ψ_- .

Tout d'abord, nous allons déterminer l'expression du taux d'ionisation Γ de l'état instable. D'après ce qu'on a vu plus tôt, ce taux sera le même que celui d'un état de l'hydrogène (terme diagonal), tandis que le terme dû au potentiel de cœur dans le hamiltonien apparaît dans les termes anti-diagonaux du hamiltonien (1.30), et est déjà décrit par la relation (1.27).

On a vu qu'au cours d'un croisement entre un niveau stable et un niveau instable (exemples du sodium, figure 1.10b, et de l'hélium, figure 1.11), le taux d'ionisation de l'état stable est perturbé et présente un maximum pour un champ précis qu'on appelle champ de croisement. La vitesse à laquelle on atteint ce point, donc la vitesse à laquelle on effectue le croisement va donc dépendre du gradient de champ électrique, puisque $F(t) = \frac{dF}{dz}vt + F_c$



(a) Sur une large région.



(b) Centré sur la région du croisement. Les légères oscillations sont dues à la résolution numérique des équations différentielles.

FIGURE 1.14 – Profil type de probabilité d'ionisation. Sur (b) on centre l'observation sur l'ordonnée du croisement, pour voir la pente de la probabilité d'ionisation. Le $\Delta(z - z_c)$ représente la région d'ionisation, prise arbitrairement entre les ordonnées pour lesquelles 20% et 80% du pourcentage total d'ionisation est atteint.

avec v la vitesse des atomes et F_c le champ de croisement.

On renvoie à la figure 1.2, et on rappelle que notre objectif final est d'ioniser en champ électrique des atomes de Rydberg de césium pour développer une source d'électrons de faible dispersion en énergie. L'état de Rydberg sur lequel on va placer les atomes doit être bien choisi, pour présenter une ionisation précise en champ, dans une zone de champ compatible avec le dispositif expérimental. Pour minimiser la dispersion en énergie, on souhaiterait créer des atomes de Rydberg proches de la limite d'ionisation, pour qu'un seul croisement soit responsable de l'ionisation de l'ensemble des atomes de césium. C'est pourquoi la valeur du champ électrique est également importante afin de minimiser le nombre de croisements avant l'ionisation, par exemple comme le croisement rouge de la figure 1.12.

La grandeur à laquelle on va s'intéresser, outre la taille de la zone d'ionisation, sera la probabilité d'ionisation du niveau de Rydberg que l'on va peupler. Puisque nous désirons un grand flux d'électrons ou d'ions, plus la probabilité d'ionisation sera grande, plus le nombre d'atomes qui s'ioniseront sera grand.

Sur la figure 1.14 on a fait apparaître sur un profil type de probabilité d'ionisation toutes les grandeurs auxquelles nous nous intéresserons et qui permettent de caractériser l'efficacité de la source :

• La probabilité finale d'ionisation $P(t \rightarrow \infty)$ qui donne le pourcentage du nombre

d'atomes initial effectivement ionisés, sur la figure 1.14 ce pourcentage est de 86,6 %.

• La pente de la probabilité d'ionisation, ou plutôt l'écart, spatial sur la figure 1.14, entre les deux instants pour lesquels on atteint respectivement 20% et 80% de l'ionisation totale, paramètre que l'on appellera Δz . Ces valeurs 20 et 80% est un choix arbitraire, mais qui permet déjà d'avoir une idée de l'influence des différents paramètres sur la taille de la zone d'ionisation.

Exemple d'un seul niveau

Dans le cas où on ne change pas de niveau pendant le croisement, on peut écrire une équation de taux sur la probabilité de rester dans l'état de départ (probabilité de survie), notée P_{survie} , en utilisant le taux d'ionisation Γ en fonction du champ électrique :

$$\frac{dP_{survie}}{dt} = -\Gamma(F(z_c + vt))P_{survie}$$
(1.32)

Finalement, on pourra écrire, pour la probabilité d'ionisation :

$$P_{ioni}(z = z_c + vt) = 1 - P_{survie} = 1 - e^{-\int_{t_0}^t \Gamma(F(z_c + vt'))dt'}$$
(1.33)

Cependant, expérimentalement, le champ électrique appliqué varie linéairement en fonction de l'ordonnée z dans la zone d'ionisation :

$$F(z) = \frac{dF}{dz}(z - z_c) + F_c$$
(1.34)

On peut alors transformer l'intégrale (1.33) en la suivante :

$$P_{ioni}(F(z)) = 1 - e^{-\frac{1}{v\frac{dF}{dz}}\int_{F_0}^F \Gamma(F')dF'}$$
(1.35)

Cet exemple simple montre que la probabilité d'ionisation dépend exclusivement du taux d'ionisation du niveau considéré, du gradient de champ électrique et de la vitesse des atomes. Dans la suite, on cherche à déterminer les caractéristiques du meilleur croisement : celui qui donnera à la fois un grand nombre d'atomes ionisés, et une petite zone d'ionisation. On recherche donc entre autre le taux d'ionisation que l'état instable doit avoir, et le couplage idéal entre les deux niveaux considérés. Dans un premier temps, on va essayer d'expliquer de façon théorique la dynamique du croisement. L'exemple que l'on vient de traiter sera appelé par la suite le cas adiabatique. Le cas Landau-Zener avec décroissance (qui vient de la durée de vie de l'état instable) sera plus compliqué que le cas usuel, pour lequel le fait de ne pas traverser le croisement est confondu avec celui de rester sur la même courbe de l'état propre. On verra qu'avec décroissance, on utilisera le mot adiabatique non pas dans son sens éthymologique, qui signifie "qui ne peut pas être traversé" en grec, mais plutôt dans son sens mécanique, à savoir rester sur un même état.

1.3.6 Étude théorique du croisement

On garde la vision d'un système à deux niveaux et l'idée de croisement entre deux niveaux atomiques. En physique quantique, une transition adiabatique est en général associée à une évolution lente du système considéré. Pour un système à deux niveaux, celui-ci suit l'une ou l'autre des valeurs propres, menant à un changement d'état. La vitesse à laquelle se fait le croisement est relative au couplage entre les niveaux considérés, et à la durée de vie du
CHAPITRE 1. L'IONISATION DES ATOMES DE RYDBERG ALCALINS EN CHAMP 36 ÉLECTRIQUE

niveau instable. Ici va se poser la question, parmi les deux éléments suivre une valeur propre ou changer d'état, lequel est vraiment lié à une transition adiabatique. Ce raisonnement est décrit par le formalisme dit de Landau-Zener. En théorie, la formule de Landau-Zener permet de prédire l'état final après croisement lorsque, par exemple, la différence en énergie entre les deux niveaux est une fonction linéaire du temps. On parlera de Landau-Zener standard, comme par exemple dans le cas d'un croisement entre des états stables, comme un croisement évité en champ électrique (Stark). Cependant, dans notre cas, pour un croisement entre un niveau stable et un niveau très instable, il y a un terme additionnel (Γ dans le hamiltonien (1.30)) qui est la modification de la durée de vie du niveau stable au moment du croisement. On parle de Landau-Zener avec décroissance. Une étude de ce type de cas est effectuée dans les articles [27], [28] et [29], mais elle est insuffisante car ne permet pas d'en déduire des valeurs optimales pour les différents paramètres que nous choisirons expérimentalement. Nous appliquerons ici la même méthode de façon à tirer des conclusions sur la faisabilité de la source d'électrons.

On rappelle que le champ électrique varie linéairement avec l'ordonnée z. De plus, on fera l'hypothèse qu'assez proche du croisement, la durée de vie du niveau instable restera constante, et sa valeur sera donc $\Gamma(F_c)$. Ré-écrivons le hamiltonien H défini par (1.30). On travaillera avec le hamiltonien H_0 , décalé en énergie par rapport à H, tel que $H = H_0 + \hbar \frac{\delta}{2}I$. Il est plus facile à utiliser et ce changement n'entraîne aucune conséquence pour la probabilité d'ionisation :

$$H_0 = \hbar \begin{pmatrix} 0 & \Omega \\ \Omega & -\alpha t - i\frac{\Gamma}{2} \end{pmatrix}$$
(1.36)

On a alors posé α tel que l'écart en énergie entre les niveaux vaut $\hbar\delta(t) = \hbar\alpha t$ (α est la pente entre les deux niveaux qui se croisent).

Pour comparer les résultats issus des différents articles notamment, on aimerait travailler avec des grandeurs sans dimension. Pour cela on pose $t = \xi \tau$, où τ est une grandeur sans dimension, puis on cherche le hamiltonien H' dépendant de τ . On pose donc $\phi(\tau) = \psi(t = \xi \tau)$ puis on cherche le hamiltonien $H_{\xi}(\tau)$ qui vérifie l'équation de Schrödinger $i\hbar \frac{d\phi(\tau)}{d\tau} = H_{\xi}(\tau)\phi(\tau)$, équivalente à l'équation en t et ψ :

$$i\hbar \frac{d\psi(t)}{dt} = H_0(t)\psi(t) \tag{1.37}$$

On trouve $H_{\xi}(\tau) = \xi H_0(\xi \tau)$, où $H_{\xi} = (\tau)$ s'écrit :

$$H_{\xi}(\tau) = \begin{pmatrix} 0 & \lambda \\ \lambda & -\frac{\tau}{2} - i\frac{\beta}{2} \end{pmatrix}$$
(1.38)

Où λ et β sont des paramètres sans dimensions définis par :

$$\begin{cases} \lambda = \xi \Omega\\ \beta = \xi \Gamma\\ \xi = \frac{1}{\sqrt{2\alpha}} = \frac{1}{\sqrt{\frac{2\delta(t)}{t}}} \end{cases}$$
(1.39)

Etude des valeurs propres du hamiltonien $H_{\xi}(\tau)$

Les valeurs propres qui associées au hamiltonien (1.38) (voir (1.31) sont :

$$E_{\pm} = \frac{1}{4} \left(-i\beta - \tau \pm \sqrt{16\lambda^2 + (\tau + i\beta)^2} \right)$$
(1.40)

Le taux d'ionisation sera donné par la partie imaginaire de ces valeurs propres, et l'énergie par la partie réelle. On peut réécrire ces valeurs propres en fonction de β , et des rapports $\frac{\tau}{\beta}$ et $\frac{\lambda}{\beta}$, qui rendra mieux compte du comportement des valeurs propres pendant le croisement.

$$E_{\pm} = \frac{\beta}{4} \left(-i - \frac{\tau}{\beta} \pm \sqrt{16(\frac{\lambda}{\beta})^2 + (\frac{\tau}{\beta} + i)^2} \right) = \beta f(\frac{\tau}{\beta}, \frac{\lambda}{\beta})$$
(1.41)

Du fait des expressions des valeurs propres, il faudra faire attention ensuite à la continuité de la fonction racine carrée d'un nombre imaginaire.

On trace donc les parties imaginaire et réelle des valeurs propres dans la figure 1.15 avec un β constant choisi tout d'abord à 1 puisque cette valeur donne alors l'influence de λ et τ , et λ qui varie de façon à traiter les cinq cas suivants : $\lambda = \frac{\beta}{10}, \frac{\beta}{5}, \frac{\beta}{4}, \beta, 4\beta$.

On rappelle, voir figure 1.13, qu'avant le croisement (c'est-à-dire en -T), les atomes sont sur l'état stable représenté par $|1\rangle$, confondu au départ avec l'état propre $|-\rangle$. Ce que l'on va chercher à savoir ici, est l'issue du croisement, à savoir, sur quel état seront les atomes en +T après le croisement.

On peut, noter différentes choses au sujet de la figure 1.15 :

- Il existe une valeur particulière du rapport $\frac{\lambda}{\beta}$ qui est 1/4. En effet, pour $\frac{\lambda}{\beta} < \frac{1}{4}$ les taux d'ionisation des deux états propres ne sont plus égaux au niveau du croisement.
- Pour cette même zone $\lambda \leq \frac{\beta}{4}$, l'énergie de l'état propre "-" n'est pas modifiée à l'issue du croisement. La courbe de la valeur propre δ_{-} traverse le croisement.
- Après cette valeur particulière, donc pour $\frac{\lambda}{\beta} > \frac{1}{4}$, on voit que le taux d'ionisation de l'état propre $|-\rangle$ augmente pour devenir maximal en fin de croisement en +T, tandis que l'inverse se passe pour l'état propre $|+\rangle$. Les énergies propres ne décrivent alors plus des droites.

Dans un second temps, on va s'intéresser, à valeur du rapport $\frac{\lambda}{\beta}$ constant, à l'influence de la valeur β . Au regard de l'équation (1.41), la valeur de β semble influencer l'échelle de temps à laquelle le croisement se fait, via le terme $\frac{\tau}{\beta}$. Pour étudier cela, on trace la figure 1.16, qui est la même que la figure 1.15, sauf qu'on a utilisé trois valeurs différentes de β (1 en bleu, 2 en noir et 4 en rouge) en gardant les mêmes rapports $\frac{\lambda}{\beta}$. On a simplement adaptée l'échelle horizontale pour voir toute la variation des valeurs propres, donc de -300 à 300 au lieu de -10 à 10 (unité arbitraire). Cela va permettre, pour chaque valeur de ce rapport, de voir l'influence du paramètre β sur la dynamique. On peut alors faire les remarques suivantes :

- Quand λ/β est inférieur à 1/4, et peu importe la valeur de β, les énergies propres sont quasiment les mêmes, elles sont confondues pour les trois valeurs de β sur la figure 1.16 (figures de droite). De plus, les taux d'ionisation se comportent tous de la même façon au cours du croisement, à savoir qu'ils augmentent brusquement au milieu du croisement pour retrouver leurs valeurs initiales à la fin. la seule influence ici du paramètre β est l'écart entre les taux d'ionisation des états |+⟩ et |−⟩, qui augmente quand β augmente.
- Quand $\frac{\lambda}{\beta}$ est supérieur à 1/4, on retrouve, peu importe la valeur de β , le comportement déjà analysé plus tôt pour $\beta=1$. L'état qui était stable devient instable. La valeur du paramètre β n'influence pas la façon dont le croisement est réalisé, mais sa durée. En effet, sur les figures qui donnent les taux d'ionisation des états $|+\rangle$ et $|-\rangle$, on voit que



FIGURE 1.15 – Valeurs propres du système (taux d'ionisation à gauche, énergies à droite) pour $\beta = 1$ et de haut en bas : $\lambda = \frac{\beta}{10}, \frac{\beta}{5}, \frac{\beta}{4}, \beta, 4\beta$. L'état de départ est $|1\rangle$, confondu avec $|-\rangle$ en -T.

plus β est grand, plus l'évolution de la valeur du taux d'ionisation est lente. Ainsi, on "sort" du croisement plus tard. De même, sur les figures qui donnent les énergies propres, on peut tirer les mêmes conclusions, l'évolution est plus lente plus β est grand.

Résolution du système différentiel et probabilité d'ionisation

Pour déterminer, en fonction du temps (ou de τ), les probabilités d'occupation des états 1 et 2 (qui apparaissent sur la figure 1.13, qui ne sont pas les états propres), il nous faut résoudre le système d'équations suivant :

$$\begin{cases} i\frac{d\Psi_1}{d\tau} = \lambda\Psi_2(\tau) \\ i\frac{d\Psi_2}{d\tau} = \lambda\Psi_1(\tau) + \left(-\frac{1}{2}(\tau+i\beta)\right)\Psi_2(\tau) \end{cases}$$
(1.42)

On résoudra numériquement le système d'équations différentielles avec le logiciel de calcul formel Mathématica. Il est aussi possible de le résoudre de façon analytique ([27]), les solutions font intervenir les fonctions hypergéométriques et les fonctions cylindriques paraboliques qui sont connues par Mathématica. Cependant, en utilisant ces fonctions, les probabilités d'ionisation trouvées présentaient des oscillations non physiques que nous n'avons pas réussi à expliquer rapidement, et nous avons choisi dans un premier temps d'utiliser la résolution numérique.

On choisit dans ce cas les conditions initiales suivantes : $\Psi_1(-T) = 1$ et $\Psi_2(-T) = 0$. C'està-dire qu'au départ (en -T) tous les atomes sont dans l'état stable. On résout ensuite le système avec les conditions initiales pour obtenir Ψ_1 et Ψ_2 , dont on déduit la probabilité d'ionisation qui s'écrit alors :

$$P_{ioni}(t) = 1 - |\Psi_1(t)|^2 - |\Psi_2(t)|^2$$
(1.43)

Aussi, il faut bien choisir T pour remplir la condition $\Psi_2(-T) = 0$ car sinon la probabilité tracée ne sera pas la bonne quand t tend vers -T. En théorie T devrait tendre vers l'infini, mais pour résoudre numériquement les équations différentielles, il est plus judicieux de trouver une valeur "raisonnable" de T. De plus, expérimentalement, T sera un temps fini, et résoudre sur un intervalle temporel fini est alors d'intérêt majeur pour la comparaison avec l'expérience. Pour illustrer ce propos, on a tracé sur la figure 1.17 les probabilités d'ionisation pour $\lambda =$ 0.5 et différentes valeurs de β : {0.2, 1, 5, 10}, dans deux cas : T=100 dans le premier cas figure 1.17a, et T=20 dans le second, figure 1.17b. On voit immédiatement que si la valeur de T est trop petite, la probabilité d'ionisation est tronquée et les valeurs déduites de ce profil pour $\Delta \tau$ ne seront pas exactes. Plus λ et β sont grands plus T devra être grand pour donner un résultat physiquement acceptable.

La résolution mathématique étant faite, il reste à étudier l'influence des paramètres λ et β , pour que nous puissions ensuite choisir un croisement entre deux niveaux qui présente les bonnes caractéristiques pour minimiser la taille de la zone d'ionisation et donc la dispersion en énergie du faisceau obtenu. Pour cela, on trace la probabilité d'ionisation calculée par notre méthode Landau-Zener avec décroissance pour différentes valeurs de λ et β en noir, que l'on compare avec le cas purement adiabatique en rouge. Pour les courbes noires, on a résolu les équations différentielles (1.42), tandis que pour le cas purement adiabatique, on a utilisé pour la probabilité d'ionisation la formule (1.35) en supposant qu'on reste sur l'état



FIGURE 1.16 – Valeurs propres du système (taux d'ionisation à gauche, énergies à droite) pour $\beta = 1$ et de haut en bas : $\lambda = \frac{\beta}{10}, \frac{\beta}{5}, \frac{\beta}{4}, \beta, 4\beta$. L'état de départ est $|1\rangle$, confondu avec $|-\rangle$ en -T.



FIGURE 1.17 – Probabilités d'ionisation pour $\lambda = 0.5$ et $\beta = 0.2$ (pointillés), $\beta = 1$ (tirets), $\beta = 5$ (trait fin) et $\beta = 10$ (trait large) pour deux valeurs de T.

"-", donc on a utilisé Γ_{-} dans la formule. On trace alors la figure 1.18, où pour chaque valeur de λ dans {0.1, 0.3, 0.5, 1, 4} on trace les courbes pour différentes valeurs de β : {0.2, 1, 5, 10}. De cette figure 1.18 on peut tirer plusieurs remarques :

- T=4000 est suffisant pour λ jusqu'à 1, mais est encore petit pour λ =4. Pour T plus grand, le code Mathématica qu'on utilise pour résoudre le système d'équations différentielles (1.42) est trop lent.
- Il semblerait que le pourcentage final d'ionisation dépende uniquement du facteur λ , et celui-ci augmente avec la valeur de λ .
- La pente de la probabilité d'ionisation, elle, dépend du facteur β . Plus β augmente plus la pente de la probabilité d'ionisation diminue, donc plus la transition est lente.
- Il semble que seul pour de faibles valeurs de β et λ ($\lambda < 1$ et $\beta \leq 1$) simultanément, le cas général diffère du cas adiabatique.

On souhaiterait d'abord vérifier que le pourcentage d'ionisation ne dépend effectivement que du paramètre λ , comme nous le laissent entendre les figures de 1.18.

Pourcentage d'ionisation

On trace le pourcentage d'ionisation en fonction de β (une courbe pour chaque valeur de λ) et on obtient la figure 1.19a. Les courbes sont effectivement des droites horizontales, ce qui confirme que le pourcentage d'ionisation ne dépend pas de β . Cela confirme également que notre choix de la valeur T de 4000 (intervalle temporel sur lequel on résout numériquement le système) est correct. Aussi, on trace la figure 1.19b qui présente l'évolution du pourcentage d'ionisation en fonction cette fois-ci du paramètre λ . On remarque que le pourcentage d'ionisation varie de façon exponentielle avec λ , qui, on le rappelle est lié au couplage entre les niveaux, cela traduit en quelque sorte la force d'interaction entre ces niveaux. Plus λ est petit, moins les niveaux interagissent.

La première conclusion que l'on peut tirer de ces figures 1.19 est la suivante : Le pourcentage d'ionisation dépend uniquement du paramètre λ (interaction entre les deux niveaux), et on atteint 100 % d'ionisation pour une valeur de λ située au delà de 0.6. Cela signifie



FIGURE 1.18 – Evolution de la probabilité d'ionisation selon le modèle Landau-Zener avec décroissance pour différents jeux de paramètres. En noir : aucune hypothèse d'adiabaticité. En rouge : cas adiabatique. β varie de 0.2 à 5 et λ varie de 0.1 à 4. a) $\lambda=0.1$, T=4000, tracé entre -100 et 100, b) $\lambda=0.3$, T=4000, tracé entre -100 et 100, c) $\lambda=0.5$, T=4000, tracé entre -100 et 100. d)Zoom sur $\lambda=0.1$, T=4000, tracé entre -20 et 20. e) $\lambda=1$, T=4000, tracé entre -100 et 100, f) $\lambda=4$, T=4000, tracé entre -100 et 100. g) $\lambda=1$, T=4000, tracé entre -T et T, h) $\lambda=4$, T=4000, tracé entre -T et T.



(a) Evolution du pourcentage d'ionisation avec le paramètre β .

(b) Evolution du pourcentage d'ionisation avec le paramètre λ .

FIGURE 1.19 – Etude de l'évolution du pourcentage d'ionisation en fonction des paramètres λ et β .

également que dans le cas Landau-Zener avec décroissance, la probabilité d'ionisation pour les temps longs $(t \to +\infty)$ est toujours donnée par la formule du Landau-Zener normal, [29] :

$$P(t \to +\infty) = 1 - e^{-\frac{2\pi\Omega^2}{\alpha}} = 1 - e^{-4\pi\lambda^2}$$
(1.44)

En effet, on peut ajuster la courbe 1.19b par une expression du type $1 - e^{Bx^2}$, et on trouve alors B = 12.22, soit $B \simeq 4\pi$, en accord avec l'expression (1.44).

Durée du croisement

Pour étudier la pente de la courbe de probabilité d'ionisation, on va étudier l'écart, en unité de τ , entre les deux instants pour lesquels on atteint respectivement 20% et 80% de l'ionisation totale. C'est donc l'évolution de ce $\Delta \tau$ en fonction du paramètre β qui nous intéresse maintenant et qui apparaît sur la figure 1.20. On précise que cette grandeur $\Delta \tau$ est directement liée à la taille de la zone d'ionisation. On a vu l'expression du champ électrique en fonction du temps :

$$F(t) = \frac{dF}{dz}(z - z_c)t + F_c$$
(1.45)

Où $\frac{dF}{dz}$ est alors par définition le gradient de champ électrique et F_c le champ de croisement, valeur du champ à laquelle se produira l'ionisation (de même z_c sera l'ordonnée du croisement). On peut ainsi convertir facilement un écart temporel en écart en champ électrique puis en distance.

D'après les courbes (une pour chaque valeur de λ) de la figure 1.20, on remarque que :

- L'intervalle temporel d'ionisation ($\Delta \tau$) augmente avec les valeurs de β et λ , pour $\beta \geq 0.5$.
- Pour de faibles valeurs de β, c'est-à-dire pour des valeurs de β inférieures à 0.5 environ, le sens de variation est inversé et la pente de la probabilité d'ionisation augmente quand β diminue. Autrement dit, pour λ fixé, la valeur de β pour laquelle on aura une zone d'ionisation la plus petite sera 0.5.

De plus, on remarque grâce aux figures 1.20 que la vitesse d'ionisation (ie pente de la probabilité d'ionisation) dépend des deux paramètres λ et β en même temps. Il semble que



FIGURE 1.20 – Evolution du $\Delta \tau$ entre 80 % et 20 % d'ionisation avec le paramètre β .

la pente la plus forte soit obtenue pour $\beta = 0.5$. On note également que la pente est plus grande pour les λ les plus faibles.

Finalement, on déduit de ces observations que pour l'instant, le cas le plus favorable pour nous serait : à la fois une forte pente de probabilité d'ionisation (pour une petite zone d'ionisation) et un fort pourcentage d'ionisation (pour assurer un certain flux d'électrons). Cela laisse donc pour les paramètres λ et β les choix suivants :

- λ entre 0.6 et 0.7.
- β autour de 0.5.

1.3.7 Conditions optimales

D'après l'étude des valeurs propres (figures 1.15 et 1.16), on déduit que lorsque le rapport $\frac{\lambda}{\beta}$ est inférieur à 1/4, l'état qui était stable avant le croisement le reste, puisque le taux d'ionisation de l'état $|-\rangle$ retrouve sa valeur initiale en fin de croisement. La probabilité d'ionisation restera donc faible dans ce cas là. Cette observation est en effet confirmée par exemple par la figure 1.18 a), pour $\lambda=0.1$ et $\beta=10$ (donc $\lambda/\beta=1/100$), où on voit que le pourcentage d'ionisation reste très faible (environ 15 %). Le croisement est alors adiabatique dans le sens où l'on reste sur le même état. Littéralement, adiabatique signifie "qui ne peut être traversé", or ici, rester sur la valeur propre $|-\rangle$ revient à "traverser" le croisement. Aussi, à l'inverse, quand le rapport $\frac{\lambda}{\beta}$ est supérieur à 1/4, l'état qui était stable avant le croisement devient instable à la fin de celui-ci (son taux d'ionisation devient maximal en +T). Cette fois-ci, on suit la valeur propre $|-\rangle$, mais cela correspond à passer de l'état $|1\rangle$ à $|2\rangle$. Cela ressemble alors au Landau-Zener normal, où ne pas traverser le croisement revient à rester sur l'état propre. Dans ce cas, la probabilité d'ionisation sera plus élevée, et il s'agit donc du cas le plus favorable pour notre objectif. La figure 1.18 c) par exemple, avec $\lambda = 0.5$ et $\beta = 0.2$ (donc $\lambda/\beta = 2.5$), montre effectivement dans ce cas un plus fort pourcentage d'ionisation, et un croisement rapide (voir aussi figure 1.20a).

On conclut donc :

- L'efficacité finale d'ionisation ne dépend que du facteur λ (équation 1.44)
- La largeur $\Delta \tau$ dépend à la fois de la largeur du niveau instable (β) et de la force du couplage entre les deux niveaux (λ).

- Pour un couplage faible, c'est-à-dire $\lambda < 1$, l'état stable commence à être affecté par le niveau instable seulement quand leurs énergies deviennent égales, sachant que l'énergie du niveau instable peut être vue comme élargie par le facteur β .
- Pour un fort couplage, c'est-à-dire λ > 1, le comportement adiabatique est dominant : le croisement commence très tôt (on le voit sur les figures 1.15), donc la pente de la probabilité d'ionisation est assez faible, ce qui mène à une grande largeur. De plus, plus le paramètre β est grand, plus l'ionisation commencera tôt (le niveau instable est "tellement large" qu'il affecte le niveau stable très tôt) et plus la zone d'ionisation sera grande.
- Le rapport entre les deux paramètres λ et β indique la dynamique de croisement (figure 1.16). Il existe une situation particulière quand le rapport λ/β vaut 1/4 qui marque la frontière entre deux modes de croisement.

1.4 Conclusions

Dans ce chapitre, nous avons expliqué la nécessité de mettre au point une nouvelle technologie de source d'électrons pour obtenir une faible dispersion en énergie au sein du faisceau. On a ensuite étudié le principe sur lequel est basé le projet de source développée au Laboratoire Aimé Cotton dans le cadre d'un projet international plus global HREELM. Nous avons aussi montré que la présence du cœur ionique dans un alcalin est responsable d'un comportement particulier de ces atomes en champ électrique par rapport à l'hydrogène. En effet, ce potentiel de cœur couple des états de multiplicités proches, modifiant le mécanisme d'ionisation en comparaison de l'hydrogène. Après avoir quantifié cet effet, nous avons imaginé une technique permettant de mettre à profit ce comportement si particulier pour mettre au point une source d'électrons monochromatique qui est l'ionisation en champ électrique d'atomes de Rydberg alcalins. Il était alors important de comprendre plus en détail un croisement entre un niveau stable et un niveau instable, et trouver comment le modéliser pour pouvoir extraire des conditions de faisabilité de notre source. Nous avons finalement déterminé qu'une valeur de λ de 0.6 (couplage entre les deux niveaux) et une valeur de β de 0.5 (taux d'ionisation) devrait permettre une ionisation efficace et dans une zone réduite, donnant lieu à un paquet d'électrons de faible dispersion en énergie. Cependant, le modèle que nous avons utilisé ne peut être valable dans tous les cas, et, on l'a montré, une condition nécessaire est d'avoir un croisement isolé, c'est-à-dire deux niveaux qui se croisent loin des autres niveaux de leurs multiplicités, donc pour le césium : $\delta_{|m|} \leq \frac{n}{10}$.

Il reste à faire le lien avec l'expérience, en prenant en compte les contraintes qui pourraient exister. En particulier on va lier les paramètres sans dimensions λ et β aux paramètres expérimentaux tels que le taux d'ionisation de l'état instable (Γ), le couplage entre les deux niveaux choisis (Ω), et la pente entre ces niveaux (δ). En effet, il faudra trouver une valeur de gradient de champ électrique réalisable expérimentalement, des niveaux de Rydberg que l'on peut effectivement exciter par laser etc. Et dans le cas où les conditions ne seraient pas optimales, il faudra alors étudier les compromis possibles (plus faible pourcentage d'ionisation, ou zone d'ionisation pas aussi petite que voulu). D'après les études théoriques présentées ici, l'ionisation en champ d'atomes de Rydberg semble être une solution de source compatible avec les objectifs fixés. Dans la suite, nous allons donner des précisions sur le projet et je détaillerai les opérations auxquelles j'ai participé durant la thèse. En particulier, on verra les premières expériences en vue de confirmer la faisabilité de la source, et on détaillera les avancées du projet dans sa globalité.

Chapitre 2

Les réalisations expérimentales

Dans le chapitre précédent, nous avons étudié théoriquement une nouvelle technique pouvant permettre la production de faisceaux d'ions et d'électrons avec une très faible dispersion en énergie, basée sur l'ionisation d'atomes de Rydberg en champ électrique. De façon plus concrète, il nous faut maintenant étudier la faisabilité expérimentale une telle source, et comparer ses performances avec le cahier des charges demandé dans le cadre du projet HREELM. Ce projet a pour but de construire pour la première fois un instrument disposant à la fois d'une bonne résolution spatiale et d'une bonne résolution en énergie. Ce chapitre va s'attacher à rendre compte en même temps des attentes des futurs utilisateurs de l'instrument HREELM, et des avancées de ce projet.

2.1 Motivations

On a vu récemment un domaine de la recherche devenir très actif, celui de l'élaboration de nouveaux matériaux, dont les propriétés physiques comme chimiques doivent être précisées. De grands progrès ont été faits dans la structuration de matériaux et la fonctionnalisation de surfaces, avec comme domaine d'application par exemple les technologies biomédicales (films biocompatibles), ou l'électronique moléculaire. Ces études et développements de matériaux sous entendent plusieurs techniques de caractérisation, dont la description des modes collectifs qui donnent leurs propriétés à ces matériaux. Dans ce contexte, il est important de sonder les différentes excitations suivantes (dans le domaine d'énergies meV) : les phonons de surface, les modes vibrationnels de la structure cristalline, les plasmons de surface. Il existe plusieurs techniques actuellement pour mesurer la dispersion des phonons de surface. La première est la spectroscopie à perte d'énergie d'électrons (EELS en anglais : Electron Energy Loss Spectroscopy). Par cette technique, on mesure la perte d'énergie d'électrons après diffusion par une surface. Il est alors primordial de connaître précisément l'énergie du faisceau d'électrons incident, et d'être capable de mesurer les pertes d'énergie. Un dispositif particulier, de haute résolution (HREELS), permet de mesurer des pertes d'énergie bien inférieures à l'énergie incidente. Pour atteindre cette résolution, des monochromateurs sont utilisés pour sélectionner l'énergie des électrons parmi celles produites par la source. On montre un tel dispositif en figure 2.1, avec lequel il a été montré qu'une résolution de 1.3 meV pouvait être atteinte [1]. Cependant, cette technique ne permet que la résolution en énergie, et il n'y a donc pas de résolution spatiale.

Une seconde technique est la microscopie par électrons de faible énergie (LEEM en anglais : Low Energy Electron Microscope). Les électrons sont diffusés par la surface à étudier, mais il sont ensuite imagés sur un écran. Le principe est représenté en figure 2.2. Cette technique permet une résolution spatiale de l'ordre de la centaine de nm, mais la résolution en énergie



FIGURE 2.1 – Schéma d'un dispositif HREELS classique utilisant des monochromateurs à 127 ° pour l'émission et la détection. La source est une source à émission par effet de champ avec une pointe LaB₆. Les monochromateurs sont des analyseurs à hémisphères concentriques, et sont électrostatiques.

elle, n'est que de 250 meV. On pourra ainsi de cette façon être sensible aux variations de potentiel et à la chimie des surfaces, mais pas aux modes collectifs.

On se rend compte finalement, qu'il n'existe à ce jour pas de dispositif permettant une bonne résolution spatiale et une bonne résolution en énergie, qui est la condition nécessaire pour mener à bien de nouveaux travaux, dans l'étude et la fonctionnalisation de surfaces. Dans ce contexte, le projet HREELM a été imaginé par un consortium formé par le laboratoire Aimé Cotton d'Orsay, l'Institut des Sciences Moléculaires d'Orsay, le Service de Physique de l'Etat Condensé du CEA, et l'Institut de Physique de l'université Johannes Gutenberg de Mayence. Le projet vise à mettre au point un instrument unique intégrant :

- Une source d'électrons monochromatique, mise au point au Laboratoire Aimé Cotton, en rouge sur la figure 2.3.
- L'expérience de Lithographie Chimique Contrôlée par Électrons de l'Institut des Sciences Moléculaires d'Orsay dont l'objectif est de manipuler et contrôler les réactions chimiques au niveau moléculaire, en bleu sur la figure 2.3.
- Un microscope électronique à haute résolution en énergie mis au point à l'Université de Mayence en Allemagne, en violet sur la figure 2.3.
- Le dispositif électrostatique et magnétique de transfert du faisceau d'électrons entre les différents éléments, mis au point par le SPEC (Service de Physique de l'Etat Condensé) du CEA Saclay, en vert sur la figure 2.3.

Cet instrument permettrait à la fois d'imager une surface et d'obtenir son spectre vibrationnel, mais aussi d'irradier la surface en vue de provoquer des réactions chimiques contrôlées. L'enjeu ici est de réussir à combiner une haute résolution en énergie, une haute résolution spatiale et une haute résolution dans l'espace des phases, avec une seule et unique source. Ainsi, les qualités de l'instrument dépendent directement des qualités de la source, que l'on caractérise par une émittance, une brillance et une dispersion en énergie. L'émittance est une grandeur qui lie la taille du faisceau et sa divergence, tandis que la brillance



FIGURE 2.2 – Schéma d'un dispositif LEEM classique. Les électrons issus d'un canon ou d'une cathode à émission par effet de champ sont diffusés par la surface et amenés vers un détecteur (par exemple MCP + écran phosphore) pour être imagés. Les électrons diffusés sont séparés du faisceau incident par un secteur magnétique, triangle au centre ici. Figure tirée de [30].

est la densité de courant émis par unité d'angle solide. Si jusqu'à maintenant on n'a parlé que de la dispersion en énergie comme critère de la source, les deux autres éléments sont également importants car seront impliqués dans le transport du faisceau et le courant disponible grâce à la source. Dans cette thèse, l'objectif sera de montrer que la source imaginée permet d'obtenir de bonnes valeurs de dispersion en énergie.

J'ai pu suivre en particulier le développement de la source au laboratoire Aimé Cotton, et la mise au point de différents éléments expérimentaux avec pour but les tests de microscopie à haute résolution en énergie à l'Institut für Physik de l'Université Johannes Gutenberg de Mayence en Allemagne. J'ai passé plusieurs semaines dans le groupe du professeur Gerd Schönhense, encadrée également par Olena Fedchencko et Sergii Chernov. Nous avons obtenu ensemble les premiers atomes de césium piégés dans le piège magnéto-optique développé pour servir de source au dispositif. Nous avons publié un premier article, [31], présentant les résultats concernant l'étude de la dynamique des électrons créés en champ magnétique.

2.2 Les études de la source au LAC

La source proposée au laboratoire Aimé Cotton s'appuie sur l'ionisation d'atomes de Rydberg (ici du césium). Les avantages attendus de cette technique sont les suivants :

- A terme, le courant pourra être contrôlé en "temps réel" à l'échelle de la femtoseconde, en variant l'intensité du laser d'excitation.
- Une très grande brillance, qui permettra entre autre de focaliser fortement le faisceau même à basse énergie.
- La source est basée sur l'ionisation d'atomes et peut donc produire des ions et des électrons. Il suffit de changer la polarité de la tension pour extraire les uns ou les autres.

La partie qui suit détaille les premiers résultats obtenus en vue de la réalisation de la source.



FIGURE 2.3 – Schéma du dispositif HREELM : quatre ensembles mis au point par quatre équipes de recherche. Le LAC à Orsay est chargée des études de la source d'électrons/ions, l'Institut Für Physik de Mayence étudie les performances du microscope à temps de vol tandis que le SPEC du CEA Saclay doit imaginer les éléments de transfert entre les différents éléments pour permettre à l'équipe de l'ISMO d'Orsay d'effectuer les mesures HREELS et LEEM.

2.2.1 Principe

On rappelle brièvement les conditions de l'expérience. Les atomes de césium sont portés sur un état de Rydberg par laser, état choisi pour sa proximité avec un état instable en champ électrique. Un ensemble d'électrodes au cœur de la chambre à vide permet à la fois de créer un gradient de champ électrique suffisant pour l'ionisation des atomes de Rydberg et extraire les électrons ou ions créés. On détaillera ensuite le dispositif de mesure de dispersion qui n'est actuellement pas encore installé.

2.2.2 L'excitation laser des atomes de césium

Les atomes de césium sont issus d'un four à re-circulation permettant d'avoir un jet directionnel. Ces atomes sont ensuite portés sur un niveau de Rydberg par excitation laser. Ce processus est effectué de façon continue et en trois étapes, comme l'indique la figure 2.4. On rappelle que l'état fondamental de l'atome de césium est le niveau 6s. La première étape d'excitation permettra donc de peupler le niveau $6p_{3/2}$ à partir du $6s_{1/2}$ en utilisant une diode laser à émission continue à 852 nm. La seconde étape portera les atomes du niveau $6p_{3/2}$ au niveau $7s_{1/2}$, de façon continue à nouveau par une diode de longueur d'onde 1470 nm. Enfin, la dernière étape permettra d'atteindre des niveaux de Rydberg np comme l'exigent les règles de sélection des transitions dipolaires électriques. C'est un laser continu Titane-Saphir accordable en longueur d'onde et utilisé entre 750 et 830 nm qui assurera cette dernière



FIGURE 2.4 – Schéma d'excitation laser des atomes de césium de l'état fondamental à un état de Rydberg nP.

transition. Toutes ces étapes sont nécessaires afin de procéder à une excitation continue des atomes avec une puissance évidemment suffisante pour peupler les états de Rydberg. Les deux derniers lasers d'excitation se croisent orthogonalement, et leurs polarisations sont parallèles au champ électrique appliqué. Ainsi, les règles de sélection des transitions dipolaires électriques rendent uniquement l'excitation entre états de m=0 (mais $m_j = 1/2$) possibles. Les premières investigations que nous avons menées concernent des niveaux du césium autour de n=25, pour un champ électrique autour de 800 V/cm. Cependant, du fait de la présence du champ électrique, les états p ne sont pas les seuls peuplés, dans le sens où les états sont mélangés par le champ. Cela compliquera la compréhension de l'ionisation car par exemple, un croisement entre états de faibles |m| et donc un $\delta_{|m|}$ grand n'est pas compatible avec le formalisme décrit plus tôt basé sur le système à deux niveaux, valable dans le cas d'un croisement isolé (donc $\delta_{|m|} \ll \frac{n}{10}$). La puissance laser pour chaque étage d'excitation est choisie de façon à ne pas élargir les transitions entre niveaux. Ainsi on aura de l'ordre de 10 μ W pour le 852 nm, 100 μ W pour le 1470 nm et enfin de l'ordre de 10 mW pour la dernière étape. Enfin, les waists sont de l'ordre de quelques dizaines de micromètres.

2.2.3 Justification du choix du niveau de Rydberg

Il s'agit ici d'utiliser les conclusions des calculs théoriques obtenus au chapitre 1 dans le cas d'un système à deux niveaux. On cherche à savoir quelles valeurs expérimentales nous pourrions en tirer mais également étudier la validité du modèle à utiliser.

Afin de vérifier la faisabilité de la source envisagée, il serait nécessaire dans un premier temps de s'assurer de l'existence, pour l'atome de césium, d'un croisement qui remplit toutes les conditions. On va maintenant essayer, à partir des considérations mathématiques du premier chapitre, des valeurs pour les paramètres expérimentaux cette fois.

Ordres de grandeurs des différents paramètres expérimentaux

Toutes les conclusions faites au premier chapitre concernaient les paramètres notés λ et β , adimensionnés pour faciliter les calculs. Nous allons maintenant de nouveau les relier aux réels paramètres expérimentaux : le couplage entre les niveaux Ω , et le taux d'ionisation de

l'état instable (sa "largeur") Γ . Les valeurs de ces deux paramètres vont dépendre du reste des paramètres expérimentaux, qui, eux, ne sont pas forcément accordables. En particulier, on a besoin de connaître :

- La vitesse des atomes : ceux-ci sont issus d'un four et leur vitesse typique est donc d'environ 300 m/s.
- Le gradient de champ électrique dans la zone d'ionisation : il est techniquement possible d'atteindre la valeur de 1 kV/mm/mm avec le schéma d'électrodes actuel, ce qui correspond donc à 10⁹ V/m^2 .

En reprenant les notations du chapitre 1 (η est la pente entre deux niveaux, n_1 et n_2 les nombres quantiques paraboliques) :

$$\begin{cases} \xi = \frac{1}{\sqrt{2\alpha}} \\ \alpha = \eta \frac{dF}{dz} v \hbar^2 \\ \eta \simeq \frac{3}{2} n (n_1 - n_2) F \\ \Omega \simeq \frac{\delta_{|m|}}{n^4} \end{cases}$$
(2.1)

On écrit des ordres de grandeurs de λ et β , avec les valeurs typiques réalisables expérimentalement :

$$\begin{cases} \lambda = \xi \Omega \sim 10 \delta_{|m|} (n/31)^{-5} \left(\frac{300m/s}{v} \frac{10^9 V/m^2}{dF/dz}\right)^{\frac{1}{2}} \\ \beta = \xi \Gamma \sim \frac{31}{n} \left(\frac{300m/s}{v} \frac{10^9 V/m^2}{dF/dz}\right)^{\frac{1}{2}} \frac{\Gamma}{5.10^9 s^{-1}} \end{cases}$$
(2.2)

On cherche les valeurs du gradient de champ électrique et du taux d'ionisation qu'il faudrait pour respecter les critères du courant et de la dispersion en énergie de la source. Le courant est lié au nombre d'électrons dans le faisceau et donc au pourcentage d'ionisation à l'issue du croisement. L'objectif fixé pour la source est de 1 nA de courant, qui correspondrait à presque 10^{10} atomes par seconde sur une surface de $100 \ \mu m^2$. Le four utilisé actuellement donne un flux de 10^{12} à 10^{13} atomes par seconde sur une surface de 1 mm^2 . Une efficacité supérieure à 10 % permettrait donc de remplir la condition sur le courant. Tout d'abord, de façon à exploiter immédiatement les résultats du premier chapitre, on veut prédire la dispersion en énergie que l'on pourrait obtenir, ainsi que les valeurs des paramètres expérimentaux, dans un cas qui est compatible avec le modèle à deux niveaux. C'est-à-dire un croisement isolé, entre un niveau stable de faible défaut quantique, à savoir un état de $|m| \ge 3$, et un niveau instable dont on va déterminer le taux d'ionisation.

Cas d'un croisement isolé : exemple des états f du césium

On se place dans le cas d'un croisement isolé, c'est-à-dire un état pour lequel $\delta_{|m|}$ est au moins égal à 3 pour le césium (voir tableaux 1.3 et 1.4 du chapitre 1). Cela implique donc, puisque $|m| \leq l$, que le nombre quantique l ne doit pas être inférieur à 3, valeur qui correspond aux états f. On ne considère donc que les états f du césium, dont le défaut quantique est faible ($\delta = 0.03$). Grâce aux relations (2.2), on détermine alors le taux d'ionisation Γ et le gradient de champ électrique dF/dz nécessaires pour réaliser la source, dans les trois cas suivants : 99 % d'efficacité (ie $\lambda = 0.65$, table 2.1), 50 % (ie $\lambda \simeq 0.24$, table 2.2) et 10 % (ie $\lambda \simeq 0.095$, table 2.3). On a considéré une vitesse typique des atomes de 300 m/s, et on prend la valeur de β 0.5 déterminée la plus favorable au premier chapitre.

$dF/dz ~(V/m^2)$	$\Gamma(s^{-1})$
$1.56 \ 10^{11}$	$7.21 \ 10^9$
$2.70 \ 10^9$	$1.42 \ 10^9$
$1.52 \ 10^8$	$4.51 \ 10^8$
$1.63 \ 10^7$	$1.85 \ 10^8$
$5.65 10^5$	$4.80 \ 10^7$
$1.60 10^4$	$1.15 \ 10^7$
	$\frac{dF/dz \ (V/m^2)}{1.56 \ 10^{11}} \\ 2.70 \ 10^9 \\ 1.52 \ 10^8 \\ 1.63 \ 10^7 \\ 5.65 \ 10^5 \\ 1.60 \ 10^4 \\ \end{bmatrix}$

TABLE 2.1 – Valeurs expérimentales des paramètres dF/dz et Γ déduites du chapitre 1, pour une efficacité de 99 %, et dispersion en énergie attendue dans ces cas-là. Cas des états f du césium pour lesquels on a $\delta_{|m|} = 0.033$, cas du croisement isolé. On obtient dans ce cas une dispersion en énergie de 24.78 meV.

n	$dF/dz \ (V/m^2)$	$\Gamma(s^{-1})$
20	$1.14 \ 10^{12}$	$1.95 \ 10^{10}$
30	$1.98 10^{10}$	$3.86 \ 10^9$
40	$1.12 10^9$	$1.22 10^9$
50	$1.20 \ 10^8$	$5.00 \ 10^8$
70	$4.15 \ 10^{6}$	$1.30 \ 10^8$
100	$1.17 10^5$	$3.12 10^7$

TABLE 2.2 – Valeurs expérimentales des paramètres dF/dz et Γ déduites du chapitre 1, pour une efficacité de 50 %, et dispersion en énergie attendue dans ces cas-là. Cas des états f du césium pour lesquels on a $\delta_{|m|} = 0.033$, cas du croisement isolé. On obtient dans ce cas une dispersion en énergie de 5.25 meV.

n	$dF/dz \ (V/m^2)$	$\Gamma(s^{-1})$
20	$7.30 \ 10^{12}$	$4.93 \ 10^{10}$
30	$1.27 10^{11}$	$9.74 10^9$
40	$7.13 10^9$	$3.08 10^9$
50	$7.65 10^8$	$1.26 \ 10^9$
70	$2.65 10^7$	$3.29 10^8$
100	$7.47 10^5$	$7.89 \ 10^7$

TABLE 2.3 – Valeurs expérimentales des paramètres dF/dz et Γ déduites du chapitre 1, pour une efficacité de 10 %. Cas des états f du césium pour lesquels on a $\delta_{|m|} = 0.033$, cas du croisement isolé. On obtient dans ce cas une dispersion en énergie de 1.93 meV.

De ces tableaux, on peut remarquer que :

- Le gradient de champ nécessaire diminue quand n augmente.
- Le taux d'ionisation de l'état instable varie de 10^7 à plusieurs $10^{10} s^{-1}$ pour un croisement idéal.
- La dispersion en énergie finale reste constante à λ et β constants.
- La dispersion en énergie diminue lorsque le pourcentage d'ionisation diminue. Une concession sur le nombre d'atomes ionisés peut permettre d'atteindre une plus faible dispersion en énergie.
- Dans tous les cas, la dispersion en énergie reste supérieure au meV, mais ne dépasse pas les quelques dizaines de meV non plus.

Si le gradient appliqué est plus faible que celui indiqué dans le tableau, cela revient à augmenter λ (plus grande efficacité, plus d'atomes ionisés) et la dispersion en énergie. Si le gradient appliqué est supérieur à celui indiqué dans le tableau, cela revient à diminuer λ et le pourcentage d'ionisation (mais plus faible dispersion en énergie).

Finalement, on peut à priori obtenir une dispersion en énergie de moins de 2 meV avec des états de $|m| \ge 3$, et en particulier ici les états f et m = 3 du césium, si on accepte de faire le compromis de la quantité d'atomes ionisés, qui s'élève alors à 10 % seulement du nombre total. Cependant, cela doit rester suffisant pour assurer le courant de la source.

Calculs sur les états p du césium

Bien que les états f du césium avec m = 3 semblent pouvoir permettre d'obtenir une faible dispersion en énergie, il n'en reste pas moins que nous ne pouvons actuellement pas les exciter du fait du schéma d'excitation laser. En effet, d'après le schéma 2.4, le dernier étage a pour niveau de départ un niveau s. Cela n'autorise donc de peupler par la suite que des états p d'après les règles de transition (on verra plus tard l'influence du champ électrique). Or, pour ces états, le défaut quantique est très grand, $\delta = 3.57$, et la cas du croisement isolé ne sera vérifié que si on choisit un $n \gg 40$, en sachant que plus n sera grand, plus on s'approchera d'un système à deux niveaux. On a pris ici encore une vitesse moyenne des atomes de 300 m/s.

n	$dF/dz \ (V/m^2)$	$\Gamma(s^{-1})$
30	$3.16 \ 10^{13}$	$1.54 \ 10^{11}$
50	$1.91 \ 10^{11}$	$2.00 \ 10^{10}$
80	$1.74 \ 10^9$	$3.05 10^9$

TABLE 2.4 – Valeurs expérimentales des paramètres dF/dz et Γ déduites du chapitre 1, pour une efficacité de 99 %, et dispersion en énergie attendue dans ces cas-là. Cas des états p du césium pour lesquels on a $\delta_{|m|} = 3.57$, cas du croisement isolé. On obtient dans ce cas une dispersion en énergie de 0.23 meV.

D'après le tableau 2.4, on voit que dans le cas de n = 80, donc $n/10 = 8 > \delta_p = 3.57$ (donc critère du croisement isolé $\delta_{|m|} \gg n/10$ à peine vérifié), on pourrait donc théoriquement atteindre une dispersion en énergie inférieure au meV tout en appliquant un gradient de champ compatible avec les techniques expérimentales (d'autant plus vrai que *n* sera grand), cependant, il faudrait le vérifier expérimentalmeent puisque le critère de croisement isolé n'est pas largement vérifié.

Vers des conditions optimales

Pour préciser le lien entre les calculs effectués au chapitre précédent et les grandeurs expérimentales, on peut écrire la relation qui lie le $\Delta \tau$ déjà présenté (intervalle temporel en variable réduite entre l'instant où 20% des atomes sont ionisé et l'instant où il y en a 80%) avec la dispersion en énergie ΔE . On rappelle que le champ électrique varie linéairement avec l'ordonnée z, d'où :

$$t = \frac{F - F_c}{v \frac{dF}{dz}} \tag{2.3}$$

Avec F_c la valeur du champ de croisement, $\frac{dF}{dz}$ le gradient de champ électrique, et v la vitesse des atomes. Ici t n'est pas la variable réduite et reste donc le temps. Or, nous avons écrit : $t = \xi \tau$.

On rappelle également que pendant l'ionisation, on considère que le champ électrique varie très peu dans le temps et l'espace, car le phénomène est trop rapide, et reste donc constant. On prend comme valeur le champ d'ionisation, et ainsi on obtient une relation entre la dispersion en énergie et le paramètre $\Delta \tau$ que nous avions déjà étudié :

$$\Delta E = F_c \xi v \Delta \tau \tag{2.4}$$

La valeur de $\Delta \tau$ est déterminée, elle dépend notamment du pourcentage d'ionisation que l'on veut. De façon plus immédiate maintenant, on peut faire les remarques suivantes :

- Plus le *n* du niveau stable qu'on décide de peupler est grand, plus le champ d'ionisation est petit.
- Le paramètre ξ est le terme qui permet de convertir toutes les grandeurs en variables réduites. Ainsi ξ n'est pas une constante mais dépend du croisement choisi. On rappelle que ξ est déterminé par $\xi = 1/\sqrt{2\alpha}$, et dépend de la pente entre les niveaux (α tel que l'écart en énergie entre les niveaux $\hbar\delta(t) = \hbar\alpha t$).
- Faire varier la vitesse des atomes pourrait faire varier la dispersion en énergie.
- Modifier la pente entre les niveaux qui se croisent (choisir le croisement en conséquence) permet de modifier la dispersion en énergie, en faisant varier ξ . Il ne faut toutefois pas oublier que si ξ dépend des niveaux choisis, la valeur du champ électrique d'ionisation et $\Delta \tau$ (qui dépend du taux d'ionisation et du couplage entre les niveaux), eux aussi, dépendent des niveaux choisis. Donc ξ , F_c et $\Delta \tau$ ne sont pas indépendants les uns des autres.

A présent, nous pouvons faire les conclusions suivantes.

- Nous pouvons au maximum avoir un gradient de champ électrique dans la zone d'ionisation de l'ordre de quelques 10^9 V/m^2 . Cela nous contraint à choisir un croisement de *n* relativement élevé, d'autant plus élevé qu'on veut la dispersion en énergie la plus petite possible (donc la moins bonne efficacité d'ionisation). Par exemple, si on veut une dispersion en énergie de 2 meV, voir table 2.3, on ne pourra réaliser des croisements que de niveaux *n* supérieurs à 50.
- En optimisant le four de césium on pourrait augmenter son flux, et donc nous permettre une efficacité moins bonne encore que 10 % tout en conservant la condition de courant requise, réduisant ainsi encore la dispersion en énergie. Nous avons par exemple déjà ajouté un tube pour guider le césium et optimiser l'angle de sortie des atomes (limitation de la vitesse transverse), dont la température est supérieure à celle du réservoir pour stimuler l'éjection du césium gazeux. On peut encore mener des études sur les matériaux utilisés pour ce tube, sur le diamètre et la longueur également.

Cependant, le principal obstacle que nous rencontrons à ce stade, qui ne permet donc pas d'assurer la réussite de l'expérience, est le critère concernant le défaut quantique $\delta_{|m|} \ll n/10$, qui demande avec le césium de n'exciter que des états m = 3 ou plus, soit au moins des états de l = 3 ou plus. Avec un atome dont les défauts quantiques sont plus faibles, cet obstacle pourrait être surmonté. On va ici donner l'exemple du sodium, car il est souvent étudié ([32]). Dans le tableau des défauts quantiques des atomes alcalins, 1.3, on voit directement que les niveaux $m \geq l = 1$ du sodium peuvent être de bons candidats puisque $0.85 \ll 30/10 = 3$ qui vérifie le critère de croisement isolé et de système à deux niveaux valable : $\delta_{|m|} \ll n/10$. Avec les mêmes calculs que ceux qui ont permis de construire les trois tableaux 2.1, 2.2 et 2.3, en modifiant simplement la valeur du défaut quantique, on obtient par exemple les trois tableaux 2.5, 2.6 et 2.7. On s'aperçoit premièrement que la dispersion en énergie (en meV dans les tableaux) est bien meilleure avec les états p du sodium que les états f du césium. Avec une efficacité de 99 % elle est déjà inférieure au meV. Cependant, les gradients de champ électrique demandés sont bien supérieurs par rapport au cas du césium. Ainsi, on voit qu'en utilisant le sodium, il faudrait choisir un croisement entre niveaux n très élevés, typiquement de l'ordre de 70 à 80, selon l'efficacité voulue.

n	$dF/dz \ (V/m^2)$	$\Delta E \ (meV)$
30	$1.79 10^{12}$	0.96
50	$1.08 10^{10}$	0.96
80	$9.8 10^7$	0.96

n	$dF/dz \ (V/m^2)$	$\Delta E \ (meV)$
30	$1.32 \ 10^{13}$	0.20
50	$7.95 \ 10^{10}$	0.20
80	$7.23 10^8$	0.20

TABLE 2.5 - Efficacité de 99%.

n	$dF/dz ~(V/m^2)$	$\Delta E \ (meV)$
30	$8.40 \ 10^{13}$	0.075
50	$5.08 \ 10^{11}$	0.075
80	$4.62 10^9$	0.075

TABLE 2.7 – Efficacité de 10 %.

Par le calcul, présenté dans le chapitre 1 et appliqué à ce croisement du sodium dans [32], on trouve l'ionisation des atomes de sodium à l'issue du croisement entre A (12, 6, 3, 2) et α (14, 0, 11, 2) (figure 1.10 du chapitre 1) permet d'atteindre une dispersion en énergie de 6 meV. Cela reste supérieur au meV fixé, mais cependant, les niveaux n ici considérés ne sont pas très élevés, et on peut espérer bien mieux avec des états de plus grand n d'après les tableaux 2.5, 2.6 et 2.7.

Nous savons maintenant qu'il est possible d'obtenir une bonne dispersion en énergie si on choisit un "bon" croisement, c'est-à-dire qui répond aux critères de taux d'ionisation, de gradient de champ nécessaire et de croisement isolé. L'expérience nous permettra maintenant de rechercher de tels croisements pour vérifier les calculs que nous avons menés jusque là. De plus, on aimerait savoir s'il est possible de trouver un croisement non isolé qui permet tout de même une bonne dispersion en énergie finale, et en particulier un croisement avec un état p du césium.

2.2.4 Réalisation expérimentale

Mise en place du champ électrique

On a compris que les valeurs du champ électrique et de son gradient, sont des paramètres extrêmement importants pour satisfaire aux exigences du faisceau d'électrons produit par la source. Un jeu d'électrodes a été dessiné spécialement pour atteindre les valeurs de gradients de champ nécessaires à l'ionisation. Grâce à des simulations de trajectoires d'électrons sous SIMION et des calculs de superposition de champs électriques, et des calculs de gradients, on peut prédire, en fonction du gradient de champ voulu, la tension à appliquer sur chacune des électrodes, au nombre de cinq. Les plus importantes, car responsables de l'ionisation des atomes, sont les trois électrodes centrales V2, V3 et V4 sur la figure 2.5.

Il s'agit d'une vue du logiciel SIMION sur laquelle apparaissent les distances entre les électrodes et les différentes zones qui correspondent aux différentes étapes expérimentales entre les atomes de césium sortis du four et le faisceau d'électrons. Juste en dessous, on

56

TABLE 2.6 – Efficacité de 50 %.



FIGURE 2.5 – En haut : Géométrie des électrodes de la zone d'ionisation, simulation SIMION. En bas : Courbes de champ et de potentiel en fonction de la distance z parcourue par les atomes de Rydberg.

trouve une courbe de champ électrique en fonction de l'ordonnée z qui est l'axe de propagation des atomes. Sur la figure 2.5, on voit où les atomes sont excités par laser pour atteindre un niveau de Rydberg. Ces atomes de Rydberg voyagent ensuite dans le champ électrique et voient le gradient augmenter brusquement, ils s'ionisent, au centre de la zone orange sur la figure 2.5. Suite à l'ionisation, les électrons seront détectés par un montage de deux galettes de micro-canaux (MCP), suivies d'un écran phosphore.

Puisque l'excitation du césium par laser a lieu en champ électrique, théoriquement, tous les états n, l devraient se trouver mélangés. Ainsi, bien que le dernier laser effectue la transition entre les niveaux $7s_{1/2}$ et np, il se peut que des niveaux de moments angulaires plus élevés que l=1 soient peuplés. Nous vérifierons avec les résultats expérimentaux si cela est bien le cas.

Premiers résultats

Afin de savoir quel niveau de Rydberg exciter, nous avons consulté une carte des états Stark produits près du seuil d'ionisation en champ proche de 800 V/cm pour un nombre quantique principal aux alentours de n=25. Il s'agit de la figure 2.6, où les états intéressants pour l'ionisation en champ se trouvent dans les encarts en bas à gauche et en haut à droite (figure obtenue par Francis Robicheaux, [23]). En effet, il s'agit d'un spectre de photoab-



FIGURE 2.6 – Spectre de photoabsorption du césium, excitation d'un niveau s avec une polarisation π (l=0 vers $m_j=1/2$). Les zones d'intérêt pour nous sont encadrées.

sorption du césium. Ainsi, plus les raies observées sont intenses, plus le niveau sera facile à exciter par laser (il absorbe beaucoup). Aussi, plus les raies observées seront fines, plus le niveau sera stable (la largeur est inversement proportionnelle à la durée de vie). Il suffit maintenant d'aller chercher ces états expérimentalement. Notamment on parvient à étudier le croisement autour de 787.5 nm qui apparaît en haut à droite sur la figure 2.6.

Ce croisement illustre parfaitement le modèle à deux niveaux étudié précédemment. On modélise ce système à deux niveaux sur la figure 2.7 qui correspond à l'encart précisé dans le spectre de photoabsorption du césium. On voit clairement un état stable (rouge, pics fins) croiser un état bien plus instable (jaune, pics larges) à l'issue de quoi le premier niveau est affecté et devient lui même instable (le pic s'élargit) : sur les figures 2.6 et 2.7 quand la valeur du champ électrique augmente de 802 V/cm à 810V/cm.

Pour ce croisement on peut déterminer les valeurs des paramètres λ et β , et ainsi déterminer la dispersion en énergie que cette configuration pourrait donner. En effet, graphiquement, nous pouvons déterminer :

- Le taux d'ionisation de l'état instable au niveau du croisement : il suffit de mesurer la largeur du pic de l'état instable (jaune en bas à gauche sur la figure 2.7) avant le croisement, soit ici à la longueur d'onde 787.508 nm. On obtient alors $\Gamma = 2.07 \ 10^9 \ s^{-1}$.
- On peut aussi déterminer le couplage entre les niveaux. Il s'agit graphiquement de l'espace qui sépare les deux niveaux au croisement (voir figure 2.7). On obtient après conversion en s^{-1} la valeur $\Omega = 2.9 \ 10^9 \ s^{-1}$. Normalement il vaut environ $\delta_{|m|}/n^4$, donc pour des états p du césium autour de n = 30 (déterminé grâce à la longueur d'onde du laser entre $7s_{1/2}$ et np). Mais par cette seconde méthode, on obtient $\Omega = 1.8 \ 10^{11} \ s^{-1}$. On reviendra sur cette différence ci-dessous.
- La pente entre les niveaux, α , donnée par $\hbar\delta(t) = \hbar\alpha t$ où $\hbar\delta$ est l'écart en énergie entre



(b) Reconstruction théorique d'après les valeurs de λ et β correspondantes.

FIGURE 2.7 – Modèle du système à deux niveaux appliqué au croisement de la figure 2.6 pour $|m_j| = 1/2$. a) Cas expérimental. b) Reconstruction des valeurs propres avec $\lambda = 0.52$ et $\beta = 0.55$. La courbe jaune met en évidence l'évolution en champ de l'état initialement instable, et la courbe rouge pour l'état stable. Le couplage entre ces deux niveaux est indiqué par une flèche bordeaux. les niveaux en fonction du temps.

La détermination de la valeur de α n'est pas simplement donnée par lecture graphique. En effet, ce que nous pouvons déduire de la figure 2.7 est l'évolution de l'écart en longueur d'onde entre les niveaux en fonction du champ électrique appliqué, soit $\delta_{\lambda}(F)$. De cela, il faut déterminer l'évolution de δ en énergie en fonction du temps, pour identifier ensuite le paramètre α et donc le facteur ξ associé : $\xi = 1/\sqrt{2\alpha}$. Pour cela on va utiliser les relations suivantes :

$$\begin{cases} \delta_E(t) = \hbar \alpha t \\ \delta_\lambda(F - F_c) = A(F - F_c) + B \\ F(t) - F_c = \frac{dF}{dz} vt \end{cases}$$
(2.5)

Où $\delta_E(t)$ est le paramètre δ déjà présenté en unités atomiques d'énergie, et δ_{λ} en unité de longueur d'onde, donc en m.

Il reste donc à déterminer les paramètres A et B qui seront issus de l'ajustement linéaire des points expérimentaux de $\delta_{\lambda}(F)$. On obtient alors $A = 1.3 \ 10^{-5} \ m^2/V$ et $B = 4.86 \ 10^{-4} \ nm$ (ajustement fait directement sur δ mesuré en nm sur la figure 2.7). On détermine alors les valeurs $\alpha = 3.91 \ 10^{18} \ s^{-2}$ et $\xi = 3.57 \ 10^{-10} \ s$. Ainsi, à partir des valeurs de ξ , Ω et Γ , on peut déterminer la valeur des paramètres sans dimensions λ et β donnés par les relations (1.39) du chapitre 1. On trouve alors $\lambda = 0.52$ et $\beta = 0.55$. Ces valeurs sont très proches des valeurs optimales $\lambda \simeq 0.6$ et $\beta = 0.5$ déterminées théoriquement au chapitre 1. Cela nous permet donc également de prédire la taille de la zone d'ionisation ainsi que la dispersion en énergie sachant que le gradient de champ électrique expérimental est de $10^9 \ V/m^2$, et la vitesse des atomes $v = 100 \ m/s$. Finalement on peut prédire :

- $\Delta z = 0.17 \ \mu m$
- $\Delta E = 6.82 \ meV$
- Une efficacité d'ionisation de 96.5 %.

Cette dispersion en énergie est bien meilleure que celle des sources existantes. Ainsi, on peut espérer, en allant chercher des niveaux de n plus élevés, ou en augmentant le gradient de champ électrique d'un facteur deux ou trois, qu'il sera possible de diminuer encore cette dispersion en énergie. En ce qui concerne l'écart entre la valeur de Ω et le terme de couplage par le potentiel de cœur, il s'explique par le fait que nous travaillons en champ électrique, donc les états n, l sont mélangés. C'est-à-dire que chaque état contient finalement toutes les valeurs de n, l possibles. Ainsi, dans la formule du potentiel, il est alors inexact de ne considérer que l'excitation d'états de m = l = 1, et de ne faire apparaître que le défaut quantique $\delta_{|m|}$ de ces états.

2.2.5 Conclusions sur la source LAC

Les estimations basées sur les premières mesures expérimentales sont de bon augure, dans le sens où le mélange des états par le champ électrique joue en notre faveur et permet d'exciter d'autres états que seulement les états p avec m = 1 du césium. On peut ainsi espérer, sans modifier radicalement ni le dispositif expérimental ni la technique, obtenir une bonne dispersion en énergie avec la source que nous développons. En plus de faire de nouvelles mesures sur d'autres niveau, il faudra mettre au point un système permettant de mesurer la dispersion en énergie effectivement obtenue avec cette source. Il est dans ce cadre prévu d'installer en sortie de la source au Laboratoire Aimé Cotton un secteur magnétique. En effet, une particule chargée dans un champ magnétique subit une force $\vec{F} = q(\vec{v} \wedge \vec{B})$. Une particule chargée de charge q va alors décrire une trajectoire courbée de rayon $R = |\frac{mv}{qB}|$. Ainsi, dans le cas des électrons issus de la source, chaque électron d'énergie $E = \frac{1}{2}mv^2$ va décrire sa propre trajectoire. Pour évaluer la dispersion en énergie, il suffira de mesurer la dispersion spatiale des impacts des électrons sur un détecteur sensible en position placé à la sortie du secteur magnétique. Le secteur magnétique dont nous disposons a un rayon moyen de 15 cm. Donc pour une énergie des électrons de 1 keV et une dispersion de 100 meV on aura sur le détecteur un tache de longueur 7.1 μ m, et pour une énergie des électrons de 100 eV et une dispersion de 100 meV, on aura une tache de longueur 75 μ m. Pour une dispersion de l'ordre du meV comme prévu, la largeur de la tache risque d'être délicate à mesurer. C'est pourquoi des lentilles électrostatiques vont ensuite permettre justement de grossir la tache, pour être capable de vérifier in fine que la dispersion en énergie est acceptable.

2.3 Le microscope électronique à haute résolution de Mayence

Pour procéder aux expériences de microscopie électronique à haute résolution, une source d'électrons est bien évidemment nécessaire, ainsi qu'un détecteur pour mesurer notamment la dispersion en énergie. A l'université de Mayence, le système de détection des électrons fera intervenir à la fois un détecteur à temps de vol, ainsi qu'une ligne à retard. L'utilisation d'un temps de vol nécessite un fonctionnement pulsé, car on a alors besoin de connaître précisément l'instant de départ des électrons, pour mesurer le temps qu'ils mettent à traverser le détecteur. La source jusqu'alors développée à Orsay a, elle, un fonctionnement en continu. Il est alors nécessaire de changer de technique pour les études menées à Mayence. De plus, cela donnera également la possibilité de comparer deux sources différentes. La solution choisie pour la source de Mayence est un faisceau d'électrons issu de l'ionisation par laser d'atomes de Césium piégés dans un piège magnéto-optique à trois dimensions (MOT3D : Magneto Optic Trap 3D). Au cours de ma thèse, j'ai participé à la réalisation de ce piège, et assisté au piégeage des premiers atomes de césium. Dans cette section, on expliquera tout d'abord ce qu'est l'espace des phases en dynamique des particules chargées et comment on peut agir dessus. Nous présenterons ensuite le dispositif expérimental en développement à Mayence composé de la source et du détecteur. On détaillera ensuite les premières observations concernant la dynamique d'extraction des électrons obtenus, que nous avons publiées en juillet 2017 dans [31]. En particulier, on cherche à lier cette dynamique des électrons à la dispersion en énergie du paquet d'électrons initial. Ainsi, dans un premier temps, les installations présentes à l'université de Mayence (spectromètre en temps de vol, et ligne à retard) vont être utilisées pour imager l'espace des phases des paquets d'électrons, et étudier la possibilité d'une compensation électrostatique de la dispersion énergétique. Des études similaires concernant des paquets d'ions (plus lourds et donc plus lents que les électrons) ont été réalisées dans [33] et [34]. On présentera à travers ces études différents moyens de réduire la dispersion en énergie, dont certains ont été mis en œuvre après que j'ai commencé à travailler sur un second projet connexe.

2.3.1 Espace des phases et dispersion en énergie

En dynamique des particules chargées (ici électrons) sont souvent utilisés les termes d'espace des phases et d'émittance du faisceau. L'espace des phases permet de rendre compte à la fois de la position des particules mais aussi de leur quantité de mouvement, c'est-à-dire qu'il donne l'état actuel des particules et leur dynamique. En effet, ce que l'on appelle espace des phases est un espace à 6 dimensions qui sont respectivement les coordonnées spatiales des particules (x, y, z) et leur quantité de mouvement selon ces trois axes (p_x, p_y, p_z) . L'émittance est la grandeur mesurable qui décrit cet espace. Plusieurs définitions existent, ici on va considérer qu'il s'agit de l'ellipse, dans l'espace des phases, qui entoure au mieux l'ensemble des particules (par exemple 95 % des particules). On donne un schéma en figure 2.8a. Ce que l'on veut exprimer ici est le fait que la dispersion en énergie est reliée à la représentation d'un paquet d'électrons dans l'espace des phases, et donc, une mesure simultanée des positions et vitesses des différents électrons dans le paquet permet de quantifier cette dispersion en énergie.

Dans la référence [34], une étude de manipulation en temps réel de l'émittance d'un paquet d'ions par champ électrique est présentée, visant à compenser les aberrations chromatiques de leur instrument. La source d'ions est similaire à notre source d'électrons, puisque ces ions sont alors issus de la photoionisation d'atomes de rubidium refroidis par laser, tandis que dans notre cas nous utiliserons du césium, et les électrons plutôt que les ions produits. Ils sont ensuite accélérés vers un détecteur MCP. Leur dispositif expérimental permet d'allumer ou non un champ électrique d'accélération. La figure 2.8b illustre l'influence de ce champ sur l'émittance du paquet d'ions. En configuration statique (vert), c'est-à-dire que le champ électrique ne varie pas dans le temps (toujours allumé), quand un paquet long selon axe z (en haut sur la figure 2.8b) atteint la fin de zone d'accélération (il ne voit plus le champ électrique), supposée abrupte, certains ions ne voient plus le champ alors que d'autres oui, du fait de la dispersion spatiale du paquet. Donc certains ions sont toujours accélérés, d'autres non. Cela mène à une déformation du paquet, qui mène alors à une forte dispersion en énergie. En revanche, quand le champ d'accélération est éteint avant la fin du vol libre des ions, il n'y a pas déformation du paquet car les ions voient alors toujours tous le même champ au même moment et on limite ainsi la dispersion en énergie finale, c'est-à-dire que celle-ci n'est pas aggravée par l'accélération et la propagation des ions. Pour un paquet court, les conclusions sont différentes. En effet, on voit que dans le cas statique, la dispersion finale en p_z reste faible (le rectangle en pointillés dans le plan (z, p_z) reste le même, en bas sur la figure 2.8b, dans le cas en vert). L'intérêt de l'extinction du champ électrique se fait moins sentir, elle peut même empêcher d'atteindre la dispersion minimale. Ainsi on peut dire que plus la dispersion spatiale initiale du paquet est faible, plus la dispersion en énergie finale sera faible. Cependant, si le paquet est d'abord trop long, on peut corriger la dispersion en énergie finale en faisant varier temporellement le champ électrique d'accélération. Dans la même référence, une étude sur les effets longitudinaux est présentée.

On voit donc bien ici que la dispersion en énergie d'un faisceau de particules chargées peut être compensée par des champs électriques. Pour les ions, la durée typique de l'expérience, donc le temps laissé pour agir via le champ électrique, est de l'ordre de la μs . Cependant, nous travaillons avec des électrons qui sont bien plus rapides, laissant donc moins de temps pour agir sur les champs électrique et magnétique présents. Il faudra à l'avenir étudier la possibilité de telles réalisations sur des paquets d'électrons à l'échelle de la nanoseconde. Dans la suite, nous décrirons en détail le dispositif expérimental qui permet de créer les électrons et d'en mesurer ensuite les vitesses et positions d'arrivées sur le détecteur.

2.3.2 La source : un piège magnéto-optique à 3 dimensions

A l'université de Mayence, un piège magnéto-optique à trois dimensions a été mis en place afin de délivrer des paquets d'électrons vers le détecteur. Celui-ci doit piéger des atomes de césium, alors les six faisceaux lasers sont de longueur d'onde 852 nm et asservis avec un écart de 10 MHz sur le recouvrement entre la transition $6s_{1/2}$ F=4 vers $6p_{3/2}$ F'=4 et la transition



(a) Définition de l'émittance : ellipse qui entoure au mieux les particules dans l'espace des phases. Schéma dans le plan $(z,z'=p_z)$.



(b) Evolution de l'émittance d'un paquet d'ions avec et sans extinction du champ d'accélération $V_a(t)$, pour deux formes de paquet différentes (long en haut ou court en bas), et dans deux configurations de champ électrique : constant dans le temps en vert, et éteint à un instant t en rouge. Figure issue de [34].

FIGURE 2.8 -a) Définition de l'émittance. b) Influence d'un champ électrique d'accélération dépendant du temps sur l'émittance d'un paquet d'ions.



(a) Optiques pour la préparation des faisceaux laser de piégeage et d'ionisation.



(b) Enceinte à vide habritant le piège, avec toutes les optiques permettant la superposition des faisceaux dans les trois axes, et la visualisation du nuage d'atomes par la caméra CCD.

FIGURE 2.9 – Montage expérimental pour la réalisation du piège magnéto-optique à 3 dimensions à Mayence.

 $6s_{1/2}$ F=4 vers $6p_{3/2}$ F'=5. Leur polarisation est choisie pour obtenir l'effet de piégeage (dans un sens σ + et dans l'autre σ -). En réalité on utilise trois faisceaux renvoyés sur eux-mêmes par des ensembles de miroirs et de lames quart d'onde, chaque faisceau mesurant environ 10 mm de diamètre, et de puissance 13 mW/cm². Pendant ma thèse, j'ai participé à l'alignement des lasers de piégeage. Deux diodes délivrent les faisceaux à 852 nm, chacun asservi sur la bonne transition atomique du césium, sur une table optique à quelques mètres de l'enceinte à vide. Il a fallu ensuite acheminer chaque faisceau vers l'enceinte par fibres optiques, en assurer la bonne polarisation et enfin les aligner sur le nuage atomique à l'intérieur de la chambre à vide. Pour que le piège soit efficace, il faut absolument que le recouvrement entre les deux faisceaux pour chaque direction soit parfait. Ici il fallait donc superposer le faisceau aller avec sa réflexion par un miroir.

Enfin, deux bobines en configuration anti-Helmholtz, dans lesquelles on fait circuler un courant d'intensité choisie sont placées dans l'enceinte à vide, de part et d'autre de la zone du piège, de façon à créer un gradient de champ magnétique jusqu'à 35 G/cm.

Le dispositif expérimental, une fois opérationnel, apparaît sur la figure 2.9. La figure 2.9a présente la table optique sur laquelle les faisceaux laser sont préparés pour obtenir la bonne focalisation et la bonne polarisation, et sur la figure 2.9b apparaît la chambre à vide dans laquelle le piège est réalisé, construite dans un matériau permettant de protéger l'installation du champ magnétique extérieur, le mu-métal. On utilise aussi des platines de translation qui permettent de centrer à l'intérieur de la chambre les bobines qui créent le champ magnétique du piège. Un nuage d'atomes de césium a été piégé pour la première fois en décembre 2015 où l'on a obtenu l'image 2.10 par caméra CCD. On estime la température du nuage à moins de 200 μK , et la vitesse des atomes piégés est, elle, estimée à moins de 15 cm/s. Ces atomes seront ensuite photoionisés par laser suivant l'un ou l'autre des schémas proposés dans la figure 2.11. Deux schémas sont envisagés afin d'étudier la dynamique des électrons produits avec différentes énergies cinétiques. Le premier cas, figure 2.11a, ne nécessite que deux étages,



FIGURE 2.10 – Atomes de césium piégés dans le MOT3D de Mayence, image obtenue par caméra CCD, fausses couleurs.





(b) Schéma d'excitation avec Ti :Sa pulsé (impulsions de 100 fs) entre 750 et 830 nm.

FIGURE 2.11 – Schéma de l'ionisation des atomes de césium par laser.

dont le second est effectué par une diode PicoQuant pulsée à 375 nm, d'impulsions de 50 ps. Cette longueur d'onde correspond à une énergie bien supérieure au seuil d'ionisation, donc les électrons seront produits avec une énergie cinétique équivalente au surplus d'énergie donné par le laser, soit 860 meV. Le second cas, figure 2.11b, effectue la photoionisation en trois étapes, avec le niveau $7s_{1/2}$ comme niveau intermédiaire, lui-même excité à partir du niveau $6p_{3/2}$ par une diode laser continue à 1470 nm. La dernière étape d'excitation est effectuée par un laser titane-saphir pulsé, dont la longueur d'onde est accordable de 750 à 830 nm. Ces longueurs d'onde sont plus proches du seuil d'ionisation que dans le cas précédent, et moins d'énergie sera donnée à l'électron, c'est-à-dire moins de 50 meV. Il sera même possible de ne donner quasiment aucune énergie cinétique à l'électron qui quitte l'atome.

2.3.3 Le spectromètre en temps de vol et la ligne à retard

Une fois les atomes ionisés, les électrons produits sont extraits de la zone centrale grâce à des champs électriques (description figure 2.13) : une lentille électrostatique attire les électrons, tandis qu'une grille soumise à un potentiel placée de l'autre côté les repousse. On obtient alors un champ électrique de l'ordre de 0.33 V/mm dans la zone d'extraction. Les électrons dérivent ensuite librement dans un tube de temps de vol. La relation t = d/v permet de différentier les électrons par leur temps d'arrivée, directement lié à leur vitesse et donc leur énergie. Le tube de dérive est long pour pouvoir au mieux séparer les électrons, car plus le tube est long, plus l'écart des vitesses donnera un grand écart temporel : la résolution en énergie dépend de la résolution en temps, qui elle est propre au détecteur. Plus la distance est grande, plus le temps de vol sera long et facile à mesurer. Le tube est aussi équipé de déflecteurs électrostatiques pour pouvoir centrer l'image sur le détecteur (détecteur à ligne à retard, Delay Line Detector, DLD associé à des galettes de micro-canaux). Les galettes de micro-canaux (Micro-Channel Plates, MCP) sont un type de détecteur qui fonctionne exclusivement pour détecter des particules chargées, son principe est décrit en figure 2.12a. Le détecteur est un disque de quelques centimètres de diamètre, et d'un millimètre environ d'épaisseur. Ce disque est régulièrement percé de multiples trous, aussi appelés canaux, d'un diamètre de 6 à 10 micromètres, et espacés les uns des autres d'une quinzaine de micromètres. Ces canaux peuvent être percés droits ou avec un angle par rapport à la surface. Chaque canal se comporte comme un multiplicateur d'électron, ce sont des dynodes. Cela signifie qu'une seule particule chargée, quand elle percute la paroi d'un canal lorsque la galette est soumise à un fort champ électrique, grâce aux propriétés d'émission secondaire de cette surface, va déclencher l'émission de plusieurs électrons. Chaque électron ainsi créé va lui aussi heurter les parois et créer de nouveaux électrons et ainsi de suite. Il s'agit là du même principe que celui d'un tube photo-multiplicateur, à la différence que sur une galette de micro-canaux, il y a des milliers de canaux, et donc autant de multiplicateurs. L'angle qui peut exister entre les canaux et la surface de la galette permet entre autre d'éviter qu'une particule passe au travers sans jamais toucher une paroi. Un montage en chevron comme nous l'utilisons, permet d'augmenter le gain du détecteur, comme le montre la figure 2.12b fournie par le fabricant Hamamatsu.

Pour la détection en position et en temps des électrons, on associe des MCP au détecteur à ligne à retard, dont la configuration à Mayence est détaillée en figure 2.14. Le principe est très simple : une particule chargée atteint les galettes de micro-canaux et induit une décharge d'électrons secondaires qui vont atteindre une maille de fils dans le plan (x,y). Les électrons secondaires vont induire un signal électrique sur le fil le plus proche. Il ne reste qu'à regarder quels fils donnent un signal, et combien de temps après le signal de déclenchement, pour savoir où et quand la particule a touché les MCP.

Le signal de déclenchement du laser pulsé d'ionisation est utilisé pour les mesures de temps d'arrivée des électrons. Ainsi, une mesure est constituée d'un tableau à 3 dimensions : les coordonnées x et y de l'impact, et son temps de vol t. C'est la donnée du temps de vol qui permet de remonter à la dispersion en énergie de la source. Le détecteur a une résolution d'environ 100 ps, ce qui signifie qu'il est capable de distinguer deux électrons qui arrivent avec un retard l'un par rapport à l'autre de 100 ps.

Un champ électrique de 0.33 V/mm règne entre la grille et la lentille électrostatique d'extraction qui sont séparées de 1 cm. Les électrons, avant de passer la lentille électrostatique, parcourent une distance inférieure à 1 cm, qu'on prendra comme valeur de référence. Ainsi, à l'entrée du tube de dérive, les électrons ont acquis une énergie d'environ 3 eV, et entrent donc dans le tube avec cette énergie cinétique. Or on a les relations :

$$\begin{cases} E = \frac{1}{2}mv^2\\ v = \frac{d}{t} \end{cases}$$
(2.6)



(a) Schéma et principe de fonctionnement d'une galette de micro-canaux ou MCP.



(b) Gain du montage de MCP pour des ensembles de 1, 2 ou 3 galettes en fonction de la tension appliquée. Données issues de la brochure du fabricant de MCP Hamamatsu.

FIGURE 2.12 – Le détecteur à galettes de microcanaux, principe (a) et gain (b).



FIGURE 2.13 – Principe de fonctionnement du spectromètre en temps de vol associé au détecteur résolu en position. Le laser ionise les atomes du piège (MOT 3D, schéma en bas à gauche) au centre du dispositif formé par : une grille, qui, soumise à un certain potentiel, repousse les électrons, et une lentille électrostatique qui attire ces électrons. Ces particules atteignent ensuite le tube de dérive (temps de vol) et le détecteur en bout de celui-ci mesurera les temps d'arrivées et positions des différents électrons.



FIGURE 2.14 – Principe de fonctionnement du détecteur résolu spatialement et temporellement utilisé à Mayence, d'après [35]. Le signal créé par l'impact des électrons sur les MCP induit un signal électrique sur les mailles de fils en x et y, qui permettent de remonter à l'instant et à la position de l'impact, grâce au signal de déclenchement.

Qui, si on les différencie, donnent :

$$\begin{cases} \Delta E = 2mv\Delta v\\ \Delta v = \frac{1}{2}\frac{d\Delta t}{t^2} \end{cases}$$
(2.7)

Avec ΔE la dispersion en énergie, Δv la différence de vitesses entre les électrons, Δt l'écart temporel entre les arrivées sur le détecteur des électrons, ici on prend 100 ps, d la longueur du tube de dérive, ici 1 m. D'où :

$$\Delta E = m \frac{d^2 \Delta t}{t^3} \tag{2.8}$$

D'après cette formule, on déduit donc que la dispersion en énergie typique mesurable avec le détecteur à ligne à retard est de l'ordre du meV (0.7 meV environ).

2.3.4 Premiers résultats

Influence du champ magnétique du MOT 3D

L'analyse des données (coordonnées+temps de vol), moyennées sur de nombreuses impulsions laser, permettent notamment de mettre en évidence la trajectoire hélicoïdale des électrons. En effet, la figure 2.15 présente différentes vues de ces trajectoires (chaque impulsion produit en moyenne un seul électron (pour utilisation du détecteur à ligne à retard) donc les résultats montrent une accumulation de données sur plusieurs impulsions) :

• Sur la figure en haut, les encarts (a) à (d) présentent l'évolution de la coordonnée x en fonction du temps d'arrivée du signal pour différentes valeurs du gradient de champ magnétique du MOT. Plus ce gradient est important, plus les électrons effectuent de spirales.

• Sur la figure centrale, les encarts (e) à (h) présentent les trajectoires des électrons vues dans le plan (x,y) à différents instants (6, 15, 25 et 42 ns) en présence d'un champ électrique 0.33 V/mm et d'un gradient de champ magnétique de 35 G/cm. Les électrons décrivent alors des cercles. Leurs trajectoires sont donc très indirectes et sont une source d'augmentation de la dispersion en énergie. Celle-ci est estimée à environ 500 meV car le temps de vol moyen des électrons (figure 2.15 (i)) est de 50 ns environ, soit 500 meV de dispersion car le détecteur a une résolution temporelle de 100 ps.

La dépendance en champ magnétique des trajectoires des électrons s'explique surtout par l'existence de la force de Lorentz, ou force électromagnétique, qui s'écrit :

$$\vec{F} = q(\vec{E} + \vec{v} \wedge \vec{B}) \tag{2.9}$$

En appliquant très simplement le principe fondamental de la dynamique à un électron soumis aux champs \vec{E} et \vec{B} on montre tout de suite que la trajectoire est hélicoïdale. Cependant, cette trajectoire dépend également des conditions initiales d'émission de l'électron, et notamment, pour certains angles d'émission, celui-ci ne subira pas la composante magnétique de la force de Lorentz. Ces angles sont 0 ° et 180 °. Dans ce dernier cas, les électrons sont émis sur l'axe vers l'arrière (z négatifs), mais sont soumis comme les autres au champ électrique d'extraction et finissent donc par changer de direction en restant sur l'axe.

Sur la figure 2.16, on présente les résultats de simulations avec le logiciel SIMION des trajectoires des électrons en champs électrique et magnétique dans deux configurations : un gradient de champ magnétique de 7.5 Gauss/cm, figures a) et b), et 35 Gauss/cm, figures c) et d). Ces images mettent en évidence la trajectoire hélicoïdale des électrons, et le fait que plus le gradient de champ magnétique est fort, plus les électrons décrivent de nombreuses boucles. On voit également sur les figures de droite dans le plan (x,y), que plus l'angle d'émission est grand, plus les électrons "tournent" (les couleurs noir, rouge et vert correspondent aux angles 10°, 30° et 80°). Les résultats expérimentaux de la figure 2.15 sont donc en accord avec les simulations.

La mise en évidence de ce comportement des électrons permet d'identifier deux sources de dispersion en énergie concernant cette source d'électrons qui se veut froide (faible dispersion en énergie, de l'ordre de quelques meV) et pulsée (quelques picosecondes de durée d'impulsion).

- L'angle d'émission des électrons impacte leur trajectoire en spirale, plus l'angle est grand, plus l'électron "tourne" et plus la dispersion sera grande. Il est envisagé de placer des ouvertures sur l'axe du faisceau pour en limiter l'ouverture angulaire et donc la dispersion. Aussi, réduire au maximum le champ d'extraction pourrait réduire cette dispersion en énergie d'environ 500 meV à quelques dizaines de meV.
- Une seconde solution serait d'éteindre le champ magnétique de piégeage pendant la mesure. Cela implique notamment d'être capable de couper le courant qui circule dans les bobines pour créer le champ magnétique (plusieurs ampères) de façon très rapide et fréquente. Cela a été réalisé récemment par l'équipe, et la trajectoire des électrons est alors simplifiée et la même pour tous les électrons du paquet. La figure 2.17 montre une simulation de la trajectoire d'un paquet d'électrons en sortie du piège quand le champ magnétique est coupé. Les ellipses rouges représentent le paquet d'électrons à plusieurs instants au court de leur trajet. On voit bien que la trajectoire est alors essentiellement rectiligne.



FIGURE 2.15 – Evolution de la trajectoire des électrons en fonction du champ magnétique du piège. En haut est représentée $x(x_i, y_i, t)$ où t est le temps d'arrivée des différents électrons des différentes impulsions sur le détecteur, pour des valeurs de gradient de champ magnétique de 19 à 35 Gauss/cm. Au milieu, les trajectoires dans le plan (x,y) sont représentées à différents instants de la propagation pour 0.33 V/mm de champ électrique et un gradient de champ magnétique de 35 Gauss/cm. En bas, (i), on donne le spectre de temps de vol pour la configuration (f).



FIGURE 2.16 – Trajectoires des électrons en champ électrique de 0.33 V/mm et pour deux valeurs de gradient de champ magnétique : 7.5 Gauss/cm pour a) et b), 35 Gauss/cm pour c) et d). Les figures de gauche présentent une vue du logiciel SIMION dans l'axe z, chaque couleur correspondant à la trajectoire d'un électron émis à un angle donné. Les figures de droite présentent une vue dans le plan (x,y), vue "de face" des trajectoires des électrons. Noir, rouge et vert correspondent respectivement aux angles d'émission 10°, 30° et 80° par rapport à l'axe z.



FIGURE 2.17 – Trajectoire d'un paquet d'électrons en sortie du piège magnéto-optique quand le champ magnétique de celui-ci est coupé. Les ellipses rouges représentent l'émittance d'un paquet d'électrons à plusieurs instants au cours de son parcours.


FIGURE 2.18 – Deux polarisations du laser d'ionisation sont possibles : p ou s (p : contenue dans le plan d'incidence, s : perpendiculaire au plan d'incidence). Chaque polarisation détermine un axe d'émission des électrons après ionisation.

Influence de la polarisation et du spectre du laser d'ionisation

On a vu que différents schémas d'excitation laser étaient envisagés. Nous allons alors décrire l'influence du dernier laser utilisé (qui effectue la transition vers le continuum), sachant qu'on peut agir à la fois sur la polarisation et sur le spectre en fréquence des impulsions. Nous allons explorer ces deux éléments.

On peut choisir la polarisation du laser d'ionisation. Notamment, on peut choisir si celle-ci est perpendiculaire au plan d'incidence, et sera alors appelée polarisation s; ou bien contenue dans le plan d'incidence, et sera alors appelée polarisation p. Chacune de ces polarisation influence l'angle de sortie des électrons de l'atome. En effet, les électrons sont émis selon l'axe de polarisation du laser (émission typiquement dipolaire en forme de "8" allongé selon l'axe de polarisation). Ainsi, avec une polarisation p, définie sur la figure 2.18, les électrons sont émis majoritairement sur l'axe z. La principale conséquence est que certains électrons partirons directement vers le détecteur (traduit par un temps de vol plus court), tandis que les autres, émis vers l'arrière, partiront en sens opposé avant d'être accélérés dans la bonne direction par le champ électrique (traduit par un temps de vol plus long). Cette différence de trajectoire est une source de dispersion en énergie, et on préfèrera une polarisation s, où les électrons sont émis majoritairement sur l'axe y, et les électrons subissent la même trajectoire (symétrique par rapport à l'axe z).

Une autre caractéristique du laser d'ionisation peut influencer la dispersion en énergie des paquets d'électrons : son spectre. On illustre la situation sur la figure 2.19. Le spectre du laser d'ionisation, un titane-saphir pulsé de longueur d'impulsion de l'ordre de la centaine de femtoseconde, est large, et permet différents processus : la photoionisation et l'excitation d'atomes de Rydberg qui s'ionisent en champ. A chaque processus correspondra une certaine énergie des électrons, sachant qu'en ce qui concerne la photoionisation, plus on donne de l'énergie au dessus du seuil, plus l'électron quitte l'atome avec une grande énergie cinétique. Grâce à des filtres adaptés, le spectre des impulsions a pu être réduit à une largeur de 2 nm, soit 4 meV en énergie. Ainsi, on peut étudier trois cas :



FIGURE 2.19 – Schéma d'excitation laser avec Ti :Sa pulsé, d'impulsions femtosecondes, les différentes excitations possibles en fonction de l'énergie donnée apparaissent avec, de bas en haut : en jaune : l'excitation des atomes de Rydberg, en rouge : l'ionisation en champ des atomes de Rydberg, en noir : la limite d'ionisation, en bleu : la photoionisation. Ces différentes couleurs correspondent au spectre d'une impulsion du laser. On peut en choisir une partie en utilisant des filtres interférentiels.

- L'énergie donnée par le laser est 4 meV au dessus du seuil.
- L'énergie donnée par le laser correspond au seuil d'ionisation. On appelle ici seuil, le seuil d'ionisation en champ nul.
- L'énergie donnée par le laser est 4 meV en dessous du seuil.

Ces trois cas, avec à chaque fois les deux configurations de polarisation déjà citées, donnent les résultats présentés en figure 2.20. Il s'agit des spectres de temps de vol obtenus dans les différents cas d'énergie et de polarisation. Dans un premier temps, on va conclure quant à la polarisation du laser d'ionisation. Sur la figure 2.20, on va comparer pour chaque gamme d'énergie, les spectres obtenus avec les deux polarisations. On précise que les intensités n'ont pas toujours la même échelle. Les spectres obtenus avec la polarisation s du laser (électrons émis sur l'axe y, soit "vers le haut et vers le bas") présentent une dispersion en énergie toujours inférieure à celle déduite des spectres avec polarisation p (électrons émis sur l'axe z, soit "vers l'arrière et vers l'avant"). Ces résultats sont en accord avec les différences de trajectoires entre les électrons induites par l'émission selon l'axe z, où les électrons émis vers l'arrière doivent parcourir plus de chemin pour atteindre le détecteur.

Intéressons-nous maintenant aux gammes d'énergie étudiées. On peut ici, toujours avec la figure 2.20, étudier l'influence de l'énergie donnée par le laser (donc la façon selon laquelle les atomes sont ionisés) sur la dispersion en énergie du paquet d'électron créé. Quand l'énergie est en dessous du seuil, en principe il n'y a pas d'ionisation, seuls des atomes sont excités sur des états de Rydberg. Si on observe du signal c'est probablement parce que le filtre de l'impulsion n'est pas parfait, la queue de la distribution laser est encore présente pour photo-ioniser. De plus, il est possible que le corps noir à la température ambiante (300 K) permette aussi la photoionisation des atomes de Rydberg créés dans ce cas. Quand l'énergie correspond au seuil d'ionisation, cela signifie que les atomes sont photoionisés, mais presque aucune énergie supplémentaire n'est donnée aux électrons en quittant les atomes. On remarque que



FIGURE 2.20 – Spectres de temps de vol obtenus dans les configurations suivantes : En haut polarisation p et, de gauche à droite : énergie donnée sous le seuil d'ionisation, énergie au seuil et énergie au dessus du seuil.

En bas polarisation s et, de gauche à droite : énergie donnée sous le seuil d'ionisation, énergie au seuil et énergie au dessus du seuil. Avec l'autorisation de Dr. Olena Fedchenko car ces résultats ont été obtenus par l'équipe récemment. ces deux cas semblent donner la dispersion en énergie la plus petite. Enfin, quand l'énergie est au dessus du seuil, cela signifie que les atomes sont photoionisés, et qu'une énergie de 4 meV supplémentaire est données aux électrons. En réalité, les électrons sont émis en emportant chacun une énergie comprise entre 0 et 4 meV. C'est là que réside la principale source de dispersion en énergie dans le cas de la photoionisation. Effectivement, dans ce cas, on voit que le spectre de temps de vol est plus étalé, ce qui correspond à une différence d'énergie plus importante entre les électrons du même paquet.

Des ces dernières mesures, on peut conclure que les cas les plus favorables en vue d'une source monochromatique d'électrons sont, dans tous les cas une polarisation s pour le laser d'ionisation, et filtrer le spectre des impulsions laser de façon à ne procéder qu'à la photoionisation au seuil des atomes, pour créer les électrons presque sans énergie cinétique initiale. Dans ce cas, qui correspond donc à la figure 2.20 (k), on obtient une dispersion en énergie de 5.6 meV (560 ps correspondent à 5.6 meV en considérant la résolution temporelle de 100 ps du détecteur), bien meilleure que les 500 meV initiaux, mais encore au delà du meV espéré.

2.4 Conclusions sur le choix de la source pour l'instrument HREELM

On rappelle ici le contexte des études qui ont été présentées dans ce chapitre. Pour la réalisation d'un instrument de microscopie par perte d'énergie d'électrons (EELM) de haute résolution (énergétique et spatiale), il est nécessaire de mettre au point une source de faible dispersion en énergie, c'est-à-dire de l'ordre du meV, avec un courant typique de 1 nA, tout en ayant la possibilité de mesurer à la fois la position des électrons sur l'échantillon, et la dispersion en énergie.

2.4.1 La source continue : LAC

La source développée au Laboratoire Aimé Cotton est une source continue, basée sur l'ionisation en champ électrique d'atomes de Rydberg. En effet, une source qui fonctionnerait par photoionisation d'un jet d'atomes aurait une dispersion en énergie limitée par la taille de la zone d'ionisation, particulièrement élevée dans ce cas puisqu'il s'agit ici du waist du laser d'ionisation. En effet, on rappelle que ces paramètres sont liés par la relation : $\Delta E =$ $qF\Delta z$. De plus, pour une ionisation continue du jet, il faudrait disposer d'un laser continu particulièrement puissant. L'éventualité d'une telle source ayant rapidement été écartée pour nos applications, nous avons commencé à développer la source par ionisation en champ des atomes de Rydberg. A la lumière des études présentées, on peut citer comme avantages de cette source :

- Le courant de 1 nA est réalisable pourvu que le flux du jet initial (issu du four) soit suffisamment important, compte tenu de l'efficacité du processus d'ionisation.
- Nous avons théoriquement mis en évidence des croisements de niveaux atomiques compatibles avec les caractéristiques attendues de la source (1.93 meV avec les états f du césium, ou moins de 1 meV avec les états p du sodium). Expérimentalement, nous avons mis en évidence le mélange des états en champ électrique (la valeur du couplage par le potentiel de coeur diffère entre les prédictions théoriques du modèle et la déduction des mesures), qui permet d'obtenir une meilleure dispersion en énergie malgré qu'on ne peut en théorie exciter seulement des états p du césium (l maximum de 1) avec la configuration actuelle. On a montré également qu'en ciblant des croisements

entre niveaux de plus grand nombre quantique principal, on peut espérer une dispersion en énergie encore plus basse que celle estimée de 7 meV avec le croisement étudié expérimentalement, à savoir moins de 1 meV pour des niveaux n supérieurs à 80.

Des améliorations dans le dessin des électrodes permettant l'ionisation sont en train d'être faites au Laboratoire Aimé Cotton, et le secteur magnétique pour la mesure de dispersion a récemment été installé.

2.4.2 La source pulsée : JGU Mayence

La source développée à l'institut de physique de l'université Johannes Gutenberg de Mayence est une source pulsée, basée sur la photoionisation d'atomes de césium refroidis et piégés par laser dans un piège magnéto-optique à trois dimensions. Cette source présente un certain avantage pour l'utilisation prévue par la suite : le caractère pulsé de la source autorise l'utilisation combinée d'un spectromètre à temps de vol et d'une ligne à retard. Cela permet d'acquérir des données en trois dimensions, à savoir les coordonnées x et y de la position d'arrivée des électrons sur le détecteur, mais aussi la dispersion en énergie, déduite des différents temps d'arrivée des électrons. Cependant, ce fonctionnement pulsé, et la nature même du nuage d'atomes piégés, ne permet pas d'atteindre le courant nominal espéré pour l'instrument final. En effet, un nuage peut piéger jusqu'à 10⁹ atomes par seconde (le temps de remplissage de la zone ionisée du nuage piégé est au mieux de l'ordre de la seconde [36]), contre les 10¹⁰ nécessaires pour espérer atteindre le nA de courant.

Par ailleurs, d'autres études sont nécessaires pour confirmer les performances de cette source, à savoir réduire encore la dispersion en énergie. Nous avons déjà obtenu une réduction de la dispersion en énergie de plusieurs centaines de meV à environ 5 meV, des paquets d'électrons grâce aux deux manipulations suivantes :

- L'extinction du champ magnétique du MOT pendant le trajet des électrons dans le tube de dérive, qui évite la trajectoire hélicoïdale des électrons en champ magnétique.
- La réduction du spectre des impulsions laser du titane-saphir femtoseconde par des filtres interférentiels, qui permet de produire les électrons presque sans énergie cinétique initiale.

Nous avons également vu que la manipulation de l'espace des phases par modification en temps réel de champs électriques permettait, sur des paquets d'ions, de réduire encore la dispersion en énergie, [34]. Il reste donc à étudier la possibilité d'effectuer ces mêmes manipulations de phase sur des paquets cette fois d'électrons, pour lesquels la constante de temps de commande des champs électriques est bien plus courte (de l'ordre de la ns pour les électrons, contre la μ s pour les ions). Cependant, si on parvient effectivement à réduire la dispersion en énergie en dessous du meV, il faut trouver un moyen de mesurer cette dispersion. En effet, on a vu que la résolution temporelle du détecteur à ligne à retard est de 100 ps qui permet donc de mesurer une dispersion de l'ordre du meV. Tout en gardant le même détecteur, il faut alors trouver un moyen de mesurer une très faible dispersion en énergie. A cette fin, un pulseur de champ électrique a été récemment mis au point au sein du Laboratoire Aimé Cotton pour être utilisé à Mayence sur le dispositif actuel. L'objectif est d'augmenter artificiellement la dispersion en énergie initiale du paquet (au moment de sa formation) de façon à pouvoir la mesurer avec le détecteur à ligne à retard de résolution 100 ps. On utilise alors les relations qui lient vitesses et champ électrique :

$$\frac{dv}{dt} = \frac{q}{m}E \quad \text{ie } v(T) - v(0) = \frac{q}{m}\int_{0}^{1}Edt$$
(2.10)



FIGURE 2.21 – Schéma simplifié du dispositif utilisant le champ électrique pulsé. Les électrons sont produits au milieu des électrodes et voient toujours le même champ grâce à un pont diviseur par des résistances qui assurent les bonne tensions sur les électrodes à partir de l'impulsion initiale à gauche.

Or, si le champ E vu par les électrons est homogène (ne dépend pas de z) puisqu'on le coupe dans ce but précis, on obtient donc que la dispersion en vitesse Δv est elle constante dans le temps. Cependant, on a aussi, en différenciant la formule de l'énergie cinétique :

$$\Delta E(T) = mv(T)\Delta v \tag{2.11}$$

Ainsi, puisque la vitesse des électrons passe de v(0) à v(T) et que $v(T) \gg v(0)$, alors la dispersion en énergie des électrons passe de la valeur initiale $\Delta E(0)$ qui sera inférieure au meV, à la valeur finale $\Delta E(T)$ quand on coupe le champ qui sera bien plus grande ($\Delta E(T) \gg \Delta E(0)$) et donc mesurable avec le détecteur.

Pour réaliser cela, il faut être capable de pulser une tension de quelques centaines de V avec un temps de montée et de descente d'au plus quelques dizaines de ns. De plus, on souhaite que quand le champ électrique est allumé, il soit constant avec l'ordonnée z de propagation des électrons. C'est pourquoi on utilisera un pont diviseur de tension réalisé par autant de résistances identiques qu'il y a d'électrodes pour que la bonne tension soit appliquée au bon endroit de façon à laisser le champ constant au cours du parcours des électrons. Le dispositif est détaillé en figure 2.21, et on présente aussi sur la figure 2.22 une simulation par le logiciel SIMION des trajectoires des électrons dans un tel dispositif dans le cas d'une impulsion de 250 V. On peut alors déterminer la valeur de l'amplitude de l'impulsion initiale pour que les trajectoires restent rectilignes et non perturbées par la configuration de champ électrique.

Ainsi, il sera normalement possible de mesurer une très faible dispersion en énergie si, comme prévu, une expérience de manipulation d'espace des phases était menée et concluante.



FIGURE 2.22 – Simulation des trajectoires des électrons dans le dispositif imaginé en figure 2.21. L'amplitude de l'impulsion initiale est de 250 V répartie sur 25 électrodes. Les quatre carrés au centre représentent les bobines créant le champ magnétique pour le piégeage. Les électrons sont produits entre les deux bobines. Les lignes de champ (électrique et magnétique) sont représentées en vert, et les trajectoires des électrons (ici rectilignes) par des points rouges.

Le pulseur de champ électrique a été installé récemment, et les premières mesures arriveront d'ici peu.

Conclusion générale sur la source pour le projet HREELM

On rappelle ici le schéma de l'instrument HREELM mis au point par la collaboration (LAC/CEA/ISMO/JGU) en figure 2.23. Nous avons cherché dans ce chapitre à trouver les meilleures solutions pour l'ensemble (source + détecteur), c'est-à-dire les blocs, rouge à gauche, et violet à droite, sur la figure 2.23, pour mettre au point la source d'électrons la plus monocinétique possible (avec une dispersion inférieure au meV) et un système de détection le plus précis possible pour pouvoir non seulement mesurer la dispersion au cours des mesures, mais aussi les positions d'arrivées des électrons sur l'échantillon, donnée indispensable pour l'étude de différents matériaux ou le contrôle de réactions chimiques.

Dans le cas de la source développée au LAC, la dispersion en énergie des électrons n'a pas encore été mesurée expérimentalement, le secteur magnétique n'étant pas encore installé. De plus, la mesure donnée par le secteur magnétique serait une mesure en une dimension seulement, soit la coordonnée x d'arrivée des électrons sur le détecteur. On aura la mesure de la dispersion en énergie, mais pas la position des électrons.

Dans le cas de la source développée au JGU, son principe même de fonctionnement contraint le courant en dessous du nA du fait du trop petit nombre d'électrons piégés dans le MOT. La dispersion en énergie de l'ordre du meV n'a pas encore été montrée avec ce dispositif. En revanche, son caractère pulsé permet l'utilisation du détecteur DLD présenté, donnant accès à la fois aux coordonnées spatiales des points d'arrivée des électrons, et à la dispersion en énergie de chaque paquet.

En définitive, il est à l'heure actuelle impossible de choisir entre les deux technologies de source présentées : jet d'atomes de Rydberg ionisés par champ électrique au Laboratoire Aimé Cotton, atomes froids photoionisés par laser pulsé à Mayence; d'autant que plusieurs études restent à mener sur chacune d'elles pour confirmer leurs performances. On peut en revanche affirmer qu'il faudra sans aucun doute trouver un compromis entre ces deux sources, pour assurer non seulement la résolution de l'instrument HREELM final, mais aussi être en capacité de mesurer cette résolution (spatiale et en énergie).



FIGURE 2.23 – Schéma du dispositif HREELM : quatre ensembles mis au point par quatre équipes de recherche. Le LAC à Orsay est chargée des études de la source d'électrons/ions, l'Institut Für Physik de Mayence étudie les performances du microscope à temps de vol tandis que le SPEC du CEA Saclay doit imaginer les éléments de transfert entre les différents éléments pour permettre à l'équipe de l'ISMO d'Orsay d'effectuer les mesures HREELS et LEEM.

Deuxième partie

Les atomes de Rydberg dans la production d'anti-hydrogène

Chapitre 3

Production d'antihydrogène stable au CERN

Après les études concernant l'instrument HREELM présentées en première partie, l'expérience présente au Laboratoire Aimé Cotton a été mise en veille de façon à procéder aux premiers dessins mécaniques, et préciser la faisabilité du dispositif entier. Cette phase a pris fin il y a maintenant un an environ et un second doctorant, Raphaël Hahn, se charge aujourd'hui de finaliser l'étude de la source avec notamment la mesure de la dispersion en énergie grâce au secteur magnétique. Pendant cet arrêt de l'expérience, il nous a semblé judicieux de nous diriger vers d'autres applications des atomes de Rydberg actuellement au coeur de la recherche sur l'antimatière. Les similitudes expérimentales, à savoir la production d'un jet de césium et l'excitation des atomes sur des niveaux de Rydberg, ont confirmé que nous pouvions, au sein du laboratoire, contribuer aux activités de recherche sur l'antihydrogène menées depuis quelques années sur différentes expériences du CERN. De plus, nous pouvions ainsi profiter pleinement de l'expertise de Emiliya Dimova (Institut de physique de l'état solide de Sofia, Bulgarie) dont la venue était déjà prévue de longue date, et de Zeudi Mazzotta alors post-doc au Laboratoire Aimé Cotton. Ainsi, bien qu'il n'existait pas encore de dispositif expérimental quand j'ai commencé à travailler sur ce projet, nous avons pu avancer rapidement pour obtenir des premiers résultats.

Cette seconde partie va donc introduire l'expérience $AE\overline{g}IS$ installée sur le décélérateur à antiprotons du CERN en vue d'étudier l'antimatière, et plus particulièrement l'antihydrogène. Puis on présentera dans ce cadre le projet de désexcitation d'atomes de Rydberg d'antihydrogène, de façon théorique d'abord, pour enfin présenter les études expérimentales menées au laboratoire sur des atomes de césium. Je tiens ici à préciser qu'une grande part du travail expérimental réside dans le montage et la mise en fonctionnement du dispositif.

L'asymétrie de l'Univers et le théorème CPT

Aujourd'hui, de l'échelle la plus petite à la plus grande, nous observons presque uniquement de la matière et non de l'antimatière, tandis que celles-ci auraient dû être créées à parts égales lors du Big Bang. Ainsi une des grandes questions que se posent les physiciens est de savoir ce qu'est devenue toute cette antimatière.

Particule et antiparticule ont en principe la même masse mais des propriétés opposées, comme par exemple leur charge. Normalement, particule et antiparticule sont produites par paires et s'annihilent si elles entrent en contact l'une avec l'autre. Cela signifie qu'elles disparaissent en émettant des photons dont l'énergie dépend de la nature du couple annihilé. Ainsi, s'il n'y avait pas eu d'asymétrie entre la matière et l'antimatière, l'Univers ne serait composé que d'énergie dite résiduelle de ces annihilations successives. Cependant un peu (un sur un milliard) de matière a survécu pour former l'Univers que nous connaissons.

C'est le modèle standard qui rend compte des interactions entre particules élémentaires. Et un des grands principes de ce modèle est la conservation des symétries. L'asymétrie matière/antimatière s'expliquerait donc par la violation de la symétrie qui permet de passer d'un processus mettant en jeu une particule à un processus analogue avec son antiparticule. En physique des particules, on considère des symétries discrètes qui doivent conserver les nombres quantiques des particules. En particulier on parlera des symétries CPT :

- La symétrie C, pour conjugaison de charge, transforme une particule en son antiparticule. C'est-à-dire que si cette symétrie est respectée, alors une expérience réalisée avec des particules donnera le même résultat que la même expérience réalisée sur les antiparticules correspondantes.
- La symétrie P, pour parité, correspond à une symétrie miroir et d'une rotation, c'està-dire comme si on inversait tous les axes de coordonnées de l'espace sans que cela ne change quoique ce soit : par exemple en coordonnées cartésiennes, prendre (x,y,z) revient à prendre (-x,-y,-z).
- La symétrie T, pour temps, correspond à l'inversion du temps. Si elle est respectée, renverser l'axe du temps ne change pas les résultats d'une expérience.

Le théorème CPT en théorie quantique des champs, qui est une théorie locale, unitaire et qui respecte l'invariance de Lorentz, stipule que l'Univers doit respecter la symétrie CPT, autrement dit, si l'une des trois est violée, une seconde doit être violée également. En particulier, c'est l'invariance de Lorentz qui attire toute l'attention dans le cadre d'une brisure de symétrie, les deux autres éléments (localité et unitarité) étant très probablement toujours réalisés. Ce théorème est jusqu'à présent vérifié, et la dernière preuve de sa validité remonte à la découverte du boson de Higgs au CERN durant l'été 2012. Des brisures de symétrie CP ont déjà été observées. Cela se traduit par un mélange d'une particule avec son antiparticule. En particulier, dans ce cas, on observe des désintégrations de particules neutres selon des canaux et probabilités normalement interdits par la conservation de CP. Aujourd'hui, ces phénomènes de brisure de symétrie CP sont expliqués par l'existence de plusieurs familles de quarks (les protons et neutrons sont composés de trois quarks liés entre eux par des gluons). Cependant, une brisure de CPT expliquerait l'asymétrie matière/antimatière de l'Univers, mais n'a pas été observée. En effet, le physicien russe Andreï Sakharov, a écrit en 1967, ce que l'on nommera par la suite les conditions de Sakharov [37], toujours d'actualité, qui sont les trois éléments pouvant expliquer l'asymétrie baryonique ou l'asymérie matière/antimatière. La première condition serait comme on l'a vu la brisure des symétries C et CP. La seconde serait la violation de la conservation du nombre baryonique, nul s'il existe autant de matière que d'antimatière, positif sinon, et qui doit en principe être conservé par toute réaction. Enfin, une rupture de l'équilibre thermique pourrait expliquer une perturbation des taux de réactions en faveur de la production de matière en plus grand quantité (et donc non conservation du nombre baryonique). De plus, Sakharov a aussi émis l'hypothèse que la symétrie CP pourrait ne pas être violée si on considérait le temps continu avant et après le Big Bang, c'est-à-dire que si t = 0 est le Big Bang, alors il y a continuité entre les temps t<0 et les temps t>0. Dans ce cas, la symétrie CPT (violation de CP mais avec flèche du temps inversée) prédirait dans les temps négatifs un excès d'antimatière, induisant, sur un Univers étendu aux temps négatifs, la conservation de CPT. Pour y voir plus clair, il faudrait étudier les propriétés de l'antimatière en comparaison de la matière.

3.1 L'antimatière en laboratoire : une longue histoire

Dans un premier temps, les physiciens étaient intéressés de savoir si particule et antiparticule étaient bien symétriques. La production en laboratoire d'antimatière était alors le meilleur moyen de répondre à cette question. Je mentionne ici quelques étapes marquantes ayant mené à la formation d'un anti-atome, l'antihydrogène, constitué d'un antiproton et d'un positron.

- En 1926, E. Schrödinger et W. Heisenberg développent la théorie quantique, mais qui n'est pas encore relativiste.
- Deux ans plus tard, P. Dirac prédit l'existence des antiparticules, en utilisant à la fois la théorie quantique de Schrödinger et Heisenberg et la relativité restreinte d'Einstein. Les équations de Dirac possèdent deux solutions : particule et antiparticule qui ne se différencient que par leur charge [38]. Il sera récompensé par le prix Nobel en 1933.
- En 1932, Carl David Anderson remarque une trace inhabituelle dans sa chambre à brouillard, semblable à celle que ferait une particule de la masse d'un électron mais chargée positivement. Il appellera cette nouvelle particule le positron [39] [40]. L'autre moitié du prix Nobel de 1936 lui est attribuée.
- Les chercheurs souhaitaient avoir des outils pour créer des particules et des antiparticules en laboratoire. Et en 1934 naît le premier cyclotron, inventé par E. Lawrence à Berkeley, qui permet d'accélérer des particules jusqu'à des énergies de quelques MeV à quelques dizaines de MeV. Il sera récompensé pour cette découverte par le prix Nobel de physique en 1939. Aussi, le temps des accélérateurs de particules vient de commencer, apportant avec lui le domaine de la physique des hautes énergies.
- En 1954, le même Ernest Lawrence supervise la construction du Bevatron (BeV équivaut à GeV, giga électronvolt). Emilio Segre construit le détecteur à antiprotons.
- En 1959, Emilio Segre et Owen Chamberlain reçoivent le prix Nobel de physique pour la découverte des antiprotons quelques années plus tôt, en 1955, sur le Bevatron, [41].
- En octobre 1956, des antineutrons sont produits au Bevatron par collisions à échange de charge d'antiprotons, [42].
- Le 27 juillet 1964, au Brookhaven National Laboratory, on annonce la preuve de la violation des principes fondamentaux de la symétrie lors de la décroissance de kaons (K-mésons) neutres. C'est la première preuve de différence entre matière et antimatière, [43].
- Un premier pas vers l'anti-atome est franchi en 1965 au CERN et au Brookhaven National Laboratory : un noyau d'antimatière est créé, le deuteron composé d'un antiproton et d'un antineutron, [44].
- Le 15 septembre 1995, les premiers antiatomes d'antihydrogène sont créés au CERN, sur le Low Energy Antiproton Ring. Cela ouvre les portes vers les expériences sur l'antihydrogène.
- La construction du décélérateur d'antiprotons est approuvée au CERN en 1997.

- Par la suite, trois expériences au CERN vont produire des atomes d'antihydrogène : d'abord ATHENA et ATRAP en 2002, puis ALPHA va piéger ces atomes d'antihydrogène durant environ 1000 secondes en 2011.
- Une mesure de précision sur la masse inertielle de l'antiproton sera faite en 2011 également par l'expérience ASACUSA, [45]
- Aujourd'hui au CERN, 6 expériences reçoivent les antiprotons de basse énergie délivrés par le décélérateur à antiprotons (AD) : AEgIS, ASACUSA, ATRAP, ALPHA, GBAR et BASE.

A ce jour, plusieurs mesures ont déjà été effectuées sur l'antimatière. L'expérience ATRAP en 2013 a pu mesurer le moment magnétique de l'antiproton qui est l'exact opposé (intensité égale, spins opposés) de celui du proton. On a aussi mesuré la charge d'un atome d'antihydrogène en 2014, via l'expérience ALPHA du CERN, charge qui s'avère nulle jusqu'à la huitième décimale, comme celle de l'hydrogène. Enfin, l'expérience ALPHA a procédé en 2016 aux premières mesures spectroscopiques de l'antihydrogène, à savoir la mesure de la fréquence de la transition 1S - 2S, pour l'instant encore moins précise que pour l'atome d'hydrogène, malgré la précision à 10^{-12} sur la mesure [46].

La gravité ne faisant pas partie des forces traitées par le modèle standard, une autre question concernant l'anti-matière est la suivante : comment agit la gravité sur l'anti-matière. De façon générale, on peut dire que les physiciens aujourd'hui aimeraient répondre aux trois questions suivantes, dont une est résolue depuis longtemps :

- Comment tombe une pomme sur Terre? (mesure sur l'hydrogène)
- Comment tombe une anti-pomme sur Terre? (mesure sur l'antihydrogène)
- Comment tombe une anti-pomme sur une anti-Terre? (théorème CPT)

L'anti-hydrogène pouvant maintenant être créé et piégé, les différentes expériences d'antimatière au CERN souhaiteraient tester les effets de la gravité sur ces anti-atomes. L'expérience ALPHA a récemment réussi à montrer une première mesure de la constante de gravité pour l'antimatière $|\bar{g}| < 100$ [47], qui va dans le sens d'une valeur proche de la constante de gravité terrestre pour l'hydrogène. Dans cette thèse on s'intéressera plus particulièrement à AEGIS : Antihydrogen Experiments Gravity, Interferometry, Spectroscopy dont l'un des but est d'étudier les effets de la gravité sur l'atome d'antihydrogène.

3.2 $AE\overline{g}IS$ au CERN

Pour étudier les effets de la gravité sur l'antimatière, il est plus facile d'utiliser de l'antimatière neutre, comme un atome d'antihydrogène, plutôt qu'une antiparticule chargée, par exemple un antiproton, pour être le moins sensible possible aux forces électromagnétiques résiduelles [48] [49]. De plus, l'hydrogène est l'atome le plus simple et le plus connu, donc il est particulièrement bien choisi pour comparer matière et antimatière. Ainsi, la mesure de la constante terrestre de gravitation, \bar{g} , sur l'antihydrogène constituerait la première mesure directe de l'interaction gravitationnelle entre la matière et l'antimatière (il faut améliorer la précision par rapport aux mesures de ALPHA). De même, une mesure précise de la structure hyperfine de l'atome d'antihydrogène constituerait aussi un test d'asymétrie matière/antimatière. C'est dans ce contexte qu'intervient AEgIS (Antihydrogen Experiment : gravity, Interferometry, Spectroscopy).

3.2.1 Méthodes de production d'anti-hydrogène

Trois réactions distinctes peuvent mener à la formation d'un atome d'antihydrogène :

- La recombinaison radiative : e⁺ + p̄ → H̄ + γ
 Phénomène inverse de la photoionisation d'un atome d'antihydrogène, un positron est capturé par un antiproton dans un état lié avec l'émission d'un photon. Cependant il s'agit d'une réaction rarement observée, car à basse température (typiquement 10 K), elle est supplantée par la réaction suivante :
- La recombinaison à trois corps : $e^+ + e^+ + \overline{p} \longrightarrow \overline{H} + e^+$ Deux positrons évoluent dans le champ d'un antiproton. Le premier devient lié pour former l'antihydrogène, tandis que le second emporte l'excès d'énergie. Il s'agit d'un processus continu. La formation d'antihydrogène peut alors prendre quelques secondes.
- Le processus d'échange de charge : Ps^{*} + p̄ → H̄^{*} + e⁻
 Où Ps est le positronium, à savoir un atome exotique constitué d'un positron et d'un électron. Le * en exposant signifie "sur un état excité", et même tellement excité ici qu'il s'agit d'états de Rydberg. Les atomes de Rydberg étant très gros par définition, la section efficace de la réaction est donc augmentée. Ce processus crée les antihydrogène en mode pulsé.

Ces deux dernières techniques sont celles utilisées au CERN, et créent les atomes d'antihydrogène sur une multitude d'états très excités, typiquement des valeurs de *n* supérieures à 30. On distinguera deux types d'expériences parmi les quatre citées, les expériences qui utilisent un piège ("trap experiments") qui sont ATRAP et ALPHA, et les expériences faisceau ("beam experiments") qui sont ASACUSA et AEgIS. Aujourd'hui les limitations aux mesures de précision sont le petit nombre d'antiatomes effectivement piégés et la température encore trop élevée de ces antiatomes. Dans le cas d'AEgIS, c'est le processus pulsé d'échange de charge qui est utilisé comme moyen de production de l'antihydrogène. On va détailler la réaction par échange de charge étape par étape au sein de l'expérience AEgIS sur la figure 3.1.

- 1. Les positrons issus d'une désintégration β + sont piégés et manipulés, puis percutent une cible poreuse de silicium où ils capturent un électron pour former du positronium.
- 2. Le positronium est excité sur des états de Rydberg par laser.
- 3. Une partie des antiprotons qui arrivent à 5 MeV est piégée dans un piège de Penning.
- 4. Par échange de charge les antiprotons réagissent avec le positronium excité pour former de l'antihydrogène sur des états de Rydberg.
- 5. Les atomes d'antihydrogène sont extraits et guidés par accélération Stark.

Aujourd'hui, les études de formation de positronium sont en cours, si bien que seule la partie encadrée en vert sur la figure 3.1 est en fonctionnement actuellement. AEgIS est la première expérience à fonctionner en mode pulsé.



FIGURE 3.1 – Processus de production d'antihydrogène via positronium par échange de charge. La partie encadrée en vert correspond au statut actuel de l'expérience, l'antihydrogène n'a pas encore été formé à ce jour.

3.2.2 Schéma global d'AEgIS

Sur la figure 3.2, l'ensemble du dispositif expérimental d'AEgIS est représenté. Une fois les atomes d'antihydrogène formés par le processus décrit plus haut, ceux-ci seront accélérés pour finalement évoluer librement dans un déflectomètre de moiré. Il s'agit d'un ensemble composé de deux plans équipés de fentes, et séparés d'une distance connue d, suivis d'un détecteur pour mesurer l'ordonnée de l'impact des antiatomes. On peut ainsi retracer la trajectoire de l'antihydrogène dans le déflectomètre, et mesurer précisément la déviation de leur trajectoire par rapport à l'horizontale si la gravité terrestre les "fait tomber".

3.2.3 Notre contribution concernant AEgIS

L'objectif est de proposer une solution pour augmenter le nombre d'atomes d'antihydrogène pouvant être piégés (nous espérons un nombre multiplié par 100 par rapport à l'état de l'art). Associée à une solution pour les refroidir davantage bien en dessous des températures actuellement atteintes de 10 K (objectif mK), cette méthode devrait permettre par la suite, une mesure de la structure hyperfine de l'antihydrogène avec une précision 100 fois meilleure qu'aujourd'hui. On ne présentera pas dans cette thèse la méthode de refroidissement basée sur l'échange entre énergie cinétique et potentielle lors de la cascade radiative dans un piège. La solution que nous proposons ici consiste en la stimulation de la désexcitation des antiatomes par une lumière externe qui sera décrite dans la suite. Du fait de la rareté de l'antihydrogène, la démonstration de principe de désexcitation par lumière externe sera effectuée sur un jet de césium au Laboratoire Aimé Cotton. Le choix de l'atome de césium peut sembler a priori étrange, cependant il s'agit d'un atome alcalin dont, on l'a vu dans la première partie, les propriétés sont très semblables à celles d'un atome d'hydrogène. De plus, de façon plus pragmatique, nous disposons déjà, au Laboratoire Aimé Cotton, des lasers d'excitation du césium, atome utilisé fréquemment dans les activités du laboratoire. Le principe de l'expérience sera le même que l'on utilise césium, hydrogène ou antihydrogène,



FIGURE 3.2 – Dispositif expérimental AEgIS : les antiprotons sont piégés tandis que les positrons forment le positronium par impact sur une cible, l'antihydrogène ainsi formé est accéléré vers un déflecteur de Moiré permettant la mesure de l'effet de la gravitation terrestre sur ces antiatomes.

et les conclusions seront alors transposables à l'antihydrogène. Des simulations seront effectuées sur les atomes de césium et d'hydrogène pour confirmer les similitudes. La méthode proposée ici est une méthode continue, et peut donc être utilisée par les quatre expériences d'antimatière au CERN, indépendamment du caractère pulsé ou non de la production d'antihydrogène. Dans la suite de ce chapitre, nous allons étudier la faisabilité de la méthode proposée.

3.2.4 Le schéma de désexcitation

Du fait de la géométrie et de la chronologie de l'expérience AEgIS au CERN, nous disposons d'environ 10 μ s pour effectuer la désexcitation. En effet, les atomes d'antihydrogène ont une température de 10 K environ et donc une vitesse aux alentours de 1000 m/s. En 10 μ s, le nuage d'antiatomes aura alors parcouru 1 cm et sera ensuite hors d'atteinte. De plus, on observe que par échange de charge, les niveaux atomiques peuplés sont les niveaux de n = 20 à n = 40 environ, tandis que dans le cas de la recombinaison à trois corps, les niveaux peuplés sont de n = 40 à n = 100. L'obstacle réside alors dans la particulièrement longue durée de vie des atomes de Rydberg. Par exemple pour l'hydrogène, qui, a priori devrait avoir le même comportement que l'antihydrogène (si CPT conservé), pour passer du niveau n = 29 au niveau n' = 28, il faut 1 ms avec la seule émission spontanée. En effet, la durée de vie d'un état de Rydberg vaut environ :

$$\tau \simeq 3\left(\frac{n}{30}\right)^3 \left(l + \frac{1}{2}\right)^2 \ \mu s \tag{3.1}$$

Il faut donc stimuler les transitions jusqu'au niveau n=15 environ, niveau à partir duquel l'émission spontanée nous permet d'atteindre le niveau fondamental en moins de 10 μ s. On rappelle, parmi les règles de sélection des transitions dipolaires, que seules les transitions à $\Delta m = 0, \pm 1$ sont permises, avec m le nombre quantique magnétique. Or, on voit sur la



FIGURE 3.3 – Diagramme d'énergie des niveaux de l'hydrogène en fonction du nombre quantique magnétique m. Les fréquences des transitions à $\Delta n = 1$ apparaissent en vert (en fréquence en THz ou en longueur d'onde en mm). La largeur de la transition $\Delta m =$ -1 par exemple, élargie par diamagnétisme (voir équation (3.32)), est de 5 GHz pour n=40 vers n=39.

figure 3.3 qui représente l'énergie des niveaux en fonction de m (et indirectement de l puisque $|m| \leq +l$) en champ magnétique de 1 T, que pour de grands moments magnétiques, donc de grandes valeurs de m, les seules transitions possibles sont celles à $\Delta n = 1$. Si on veut désexciter le plus d'antiatomes possible, on ne peut pas négliger les états de grands moments magnétiques. Ainsi, la seule et unique solution pour amener les antiatomes vers le niveau n = 15 dans un premier temps, est d'effectuer toute la cascade de transitions $\Delta n = 1$ en vert sur la figure 3.3. Le choix du niveau n=15 est un peu arbitraire, mais d'après (3.1), pour une valeur moyenne de l, la durée de vie de ce niveau est d'environ 10 μ s, soit le temps dont nous disposons pour effectuer la désexcitation.

Les fréquences de ces transitions vont de 0.2 THz (en partant de n=30, 0.1 THz en partant de n=40) à un peu plus de 2 THz. Dans notre cas, il faut effectuer toutes les transitions simultanément. En effet, si on prend par exemple un système fermé à deux niveaux. Au bout d'un temps long, on aura au mieux 50 % sur le niveau 1 et 50 % sur le niveau 2. Si on veut vider chaque niveau il faut ouvrir le système et permettre les transitions vers d'autres niveaux, pour ensuite terminer par l'émission spontanée. Par exemple on peut stimuler les transitions $40 \rightarrow 39$, puis $39 \rightarrow 38$ et ainsi de suite jusqu'à n=14, et l'émission spontanée finira la désexcitation en moins de 10 μ s. Il faut donc trouver une source qui dans son spectre possède toutes les fréquences entre 0.2 et 2 THz, c'est-à-dire une source continue dans le domaine térahertz. En réalité le critère de continuité est subjectif, dans le sens où une source pulsée dont le taux de répétition est compatible avec la durée des phénomènes étudiés conviendra. C'est-à-dire si l'intervalle de temps entre les impulsions est très inférieur aux 10 μ s envisagées. De plus, nous allons déterminer la puissance nécessaire pour peupler efficacement le niveau fondamental, de façon à donner un cahier des charges précis pour cette source THz.

3.3 Cas simple à deux niveaux

3.3.1 Transitions par émission spontanée

En notant J le moment cinétique total. On considère la transition entre les sous-niveaux $|J_e m_e\rangle \rightarrow |J_g m_g\rangle$. Le taux d'émission spontanée s'écrit alors [50] :

$$\Gamma_{J_g, m_g; J_e, m_e} = \frac{\omega_0^3}{3\pi\epsilon_0 \hbar c^3} |\langle J_g \ m_g | \mathbf{d} | J_e \ m_e \rangle|^2$$
(3.2)

Or, quand on part d'un niveau $|J_e m_e\rangle$ par émission spontanée on peut aller vers 3 valeurs différentes pour m_g (transitions $\sigma +, \sigma - \text{et } \pi$), donc on somme sur tous les m_g . Ainsi on peut écrire :

$$\Gamma_{J_e m_e \to J_g \forall m_g} = \sum_{m_g} \Gamma_{J_g, m_g, J_e, m_e} = \sum_{m_g} \frac{\omega_0^3}{3\pi\epsilon_0 \hbar c^3} |\langle J_g \ m_g | \mathbf{d} | J_e \ m_e \rangle|^2$$
(3.3)

$$\Gamma_{J_e m_e \to J_g \forall m_g} = \frac{\omega_0^3}{3\pi\epsilon_0 \hbar c^3} \sum_{m_g} \sum_q |\langle J_g \ m_g | d_q | J_e \ m_e \rangle|^2$$
(3.4)

On cherche alors à écrire le terme $|\langle J_g m_g | d_q | J_e m_e \rangle|$.

Lien avec les éléments de matrice réduits

On va utiliser le théorème de Wigner-Eckart [50] qui donne (avec $\langle jm|j'm'; kq \rangle$ le coefficient de Clebsch-Gordan) :

$$\langle \alpha jm | \mathbf{T}^{(k)} | \alpha' j'm' \rangle = (-1)^{2k} \langle \alpha j | | \mathbf{T}^{(k)} | | \alpha' j' \rangle_S \langle jm | j'm'; kq \rangle$$
(3.5)

Dans cette formule, $\langle \alpha j || \mathbf{T}^{(k)} || \alpha' j' \rangle_S$ est ce qu'on appelle l'élément de matrice réduit, écrit en notation "Steck". Les éléments de matrice dipolaire réduits peuvent nous être donnés directement par un code écrit en python, Atom Calculator [51] qui les calcule pour différents atomes alcalins, et pour chaque transition proposée à 0 K ou d'autres températures.

Mais on peut aussi calculer le terme $\langle \alpha jm | \mathbf{T}^{(k)} | \alpha' j'm' \rangle$ grâce à Varshalovich [52] et Walker et Saffman [53] en posant $\alpha = n, l$:

$$\langle n'l'j'm'|r_p|nljm\rangle = (-1)^{j+l'-1/2} C_{jm1p}^{j'm'} \sqrt{2j+1} \begin{pmatrix} l & \frac{1}{2} & j\\ j' & 1 & l' \end{pmatrix} \langle n'l'||r||nl\rangle_V$$
(3.6)

Où la matrice ici représente le symbole 6j de Wigner, $C_{jm1p}^{j'm'} = \langle jm | j'm'; kq \rangle$ est un coefficient de Clebsch-Gordan et d'après [53] :

$$\langle n'l' ||r||nl\rangle_V = \sqrt{2l+1} C_{l010}^{l'0} \langle nl|r|n'l'\rangle$$
 (3.7)

et, avec ${\cal R}_{nl}$ la partie radiale de la fonction d'onde de l'atome :

$$\langle nl|r|n'l'\rangle = \int r^3 R_{n'l'}(r) R_{nl}(r) dr \qquad (3.8)$$

Ainsi, pour l'atome d'hydrogène, mais aussi pour le césium, on peut déterminer les éléments de matrice réduits grâce à des formules analytiques donnant l'intégrale de recouvrement des parties radiales des fonctions d'onde (3.8).

Il faut faire attention aux notations de l'élément de matrice réduit :

Les notations utilisées par Varshalovich [52] et Steck [50] pour l'élément de matrice réduit ne sont pas les mêmes. La relation qui lie les deux notations est la suivante :

$$\langle \alpha j || \mathbf{T}^{(k)} || \alpha' j' \rangle_V = (-1)^{2k} \sqrt{2j+1} \langle \alpha j || \mathbf{T}^{(k)} || \alpha' j' \rangle_S$$
(3.9)

On peut maintenant revenir au calcul du taux de transition, et, d'après le Varshalovich [52], équation (13.1.2 (5)), la dernière somme de (3.31), sur les indices m_g et q (polarisation) peut s'écrire simplement :

$$\Gamma_{J_e m_e \to J_g \forall m_g} = \frac{\omega_0^3}{3\pi\epsilon_0 \hbar c^3} \frac{|\langle J_g || \mathbf{d} || J_e \rangle_V|^2}{2J_e + 1}$$
(3.10)

Si l'on veut garder uniquement la notation "Steck", on obtient finalement l'équation suivante :

$$\Gamma_{J_e m_e \to J_g \forall m_g} = \frac{\omega_0^3}{3\pi\epsilon_0 \hbar c^3} \frac{2J_g + 1}{2J_e + 1} |\langle J_g || \mathbf{d} || J_e \rangle_S |^2$$
(3.11)

Avec, d'après (3.5), (3.6), (3.7) et (3.8):

$$|\langle J_g || \mathbf{d} || J_e \rangle_S| = \sqrt{(2l_e + 1)(2j_e + 1)} C_{l010}^{l'0} \begin{pmatrix} l_e & \frac{1}{2} & j_e \\ j_g & 1 & l_g \end{pmatrix} \langle n_e l_e |r| n_g l_g \rangle$$
(3.12)

On remarque que cette expression est bien indépendante du niveau m_e de départ, donc on peut le noter $\Gamma_{J_g J_e}$.

Expression analytique de l'intégrale de recouvrement des parties radiales des fonctions d'onde

Il ne reste donc plus qu'à calculer l'intégrale de recouvrement des fonctions d'ondes radiales pour le césium et l'hydrogène, et injecter les trois dernières équations dans (3.5) pour obtenir les éléments de matrice réduits puis le dipôle de transition.

Dans le livre [54], on trouve une expression de l'intégrale de recouvrement des fonctions d'onde pour l'hydrogène. Bethe et Salpeter décrivent tout d'abord les conditions dans lesquelles s'appliquent la formule qu'ils vont écrire, dont en particulier le fait que l'interaction des électrons avec le champ soit traitée comme une petite perturbation. On utilisera dans les simulations la formule donnée dans ce livre (formules (63.2) et (63.3) de [54]), issue elle-même des travaux de Gordon (F est la première fonction hypergéométrique $_2F_1$).

$$\langle nl|r|n'l \pm 1 \rangle = \frac{(-1)^{n'-l}}{4(2l-1)!} \sqrt{\frac{(n+l)!(n'+l-1)!}{(n-l-1)!(n'-l)!}} \frac{(4nn')^{l+1}(n-n')n+n'-2l-2}{(n+n')^{n+n'}} \\ \times \left[F\left(-n_r, -n'_r, 2l, -\frac{4nn'}{(n-n')^2}\right) - \left(\frac{n-n'}{n+n'}\right)^2 F\left(-n_r, -2, -n'_r, -\frac{4nn'}{(n-n')^2}\right) \right]$$
(3.13)

Ainsi, nous pouvons calculer le dipôle de transition entre tous les niveaux atomiques discrets pour l'hydrogène.

3.3.2 Transitions stimulées par le corps noir entre niveaux atomiques

On l'a vu, l'objectif de l'expérience est de rendre les transitions à $\Delta n = 1$ plus favorables en les stimulant grâce à une source lumineuse dont le spectre contient les fréquences appropriées. Dans un premier temps on considère un corps noir dont on choisira ensuite la température. On rappelle que le spectre du corps noir est donné par la loi de Planck (voir annexe B) qui donne l'exitance énergétique spectrale (en W par m^2 par Hz) en fonction de la fréquence :

$$M(\nu,T) = \frac{2h\nu^3}{c^2} \frac{1}{e^{(h\nu/kT)} - 1}$$
(3.14)

Où le terme $\frac{1}{e^{(h\nu/kT)}-1}$ est aussi appelé nombre d'occupation de chaque état quantique du système. Il donne le rapport entre l'émission spontanée et l'émission stimulée. En effet, le taux de transition entre deux niveaux en présence d'un corps noir s'écrit :

$$\Gamma_{total} = \Gamma_{spontan\acute{e}} + \Gamma_{BBR} \tag{3.15}$$

Enfin, le terme dû au corps noir n'est autre que le produit du taux de transition par émission spontanée par le nombre d'occupation. D'où :

$$\Gamma_{total} = \left(1 + \frac{1}{e^{(h\nu/kT)} - 1}\right)\Gamma_{spontan\acute{e}}$$
(3.16)

3.3.3 Photoionisation par laser ou corps noir

On vient de voir que le corps noir comme un laser peut stimuler des transitions entre niveaux atomiques discrets. Cependant, on se demande s'il est également possible que le corps noir soit à l'origine de la photoionisation de certains atomes, c'est-à-dire qu'il peut stimuler des transitions cette fois vers le continuum. Intuitivement, on s'attend à ce que les éléments de matrices réduits dont on a donné une expression au paragraphe (3.3.1) interviennent ici aussi. Mais puisqu'il ne s'agit plus de transitions entre niveaux discrets, on ne peut plus caractériser l'état d'arrivée par les nombres quantiques usuels, et utiliser les formules vues précédemment. On peut trouver dans la littérature différentes façon d'aborder le problème, comme par exemple [55] puis [56]. L'idée dans ce cas (appelé "Bound-free transitions") est de remplacer le nombre quantique principal du niveau d'arrivée (donc ici le continuum) par le terme -i/p, et on note l'énergie de cet état d'arrivée $\frac{1}{2}p^2$, à comparer avec l'énergie $-1/2n^2$ dans le cas des états liés.

Il est dit dans [56] qu'en utilisant (pour des l très inférieurs à n) des fonctions d'onde quasiclassiques, la résolution de l'intégrale de recouvrement dans le cas d'états liés donne :

$$\langle nl|r|n'l-1\rangle = \frac{l^2}{\pi\sqrt{3}}\omega^{-1}(nn')^{-3/2} \left[\pm K_{2/3}(\frac{1}{3}\omega l^3) + K_{1/3}(\frac{1}{3}\omega l^3)\right]$$
(3.17)

Dans cette expression (notations de l'article [56]) ω est l'énergie de la transition, soit, en unités atomiques :

$$\omega = \frac{1}{2|n^2 - n'^2|} \tag{3.18}$$

Finalement, en remplaçant n' par -i/p comme indiqué et en tenant compte de la normalisation en énergie des fonctions d'onde du continuum (différente des états liés), on obtient alors la relation (28) de [56]:

$$\langle nl|r|pl\pm 1\rangle = \frac{l^2 p^{3/2}}{\pi\sqrt{3}\omega n^{3/2}} \left[K_{2/3}(\frac{1}{3}\omega l^3) \pm K_{1/3}(\frac{1}{3}\omega l^3) \right]$$
(3.19)

Où ω désigne toujours l'énergie de la transition en unités atomiques qui s'écrit maintenant :

$$\omega = \frac{1}{2n^2} + \frac{1}{2}p^2 \tag{3.20}$$

La section efficace de photoionisation s'écrit comme la section efficace de transition entre niveaux discrets (en unités SI maintenant) :

$$\sigma(n,l,\omega) = a_0^2 \frac{4}{3} \pi^2 \alpha \omega \times \langle nl|r|pl \pm 1 \rangle \times partie \ angulaire \tag{3.21}$$

On utilisera cette formule dans tous les calculs par la suite, chaque fois qu'on parlera de photoionisation, peu importe la source de ce phénomène (laser fin, large, corps noir ou autre). La partie angulaire dans (3.21) est à prendre en compte si on s'intéresse à des transitions dépendantes de la polarisation et des sous-niveaux Zeeman m, ce que nous ne feront pas ici.

3.3.4 Puissance nécessaire pour effectuer les transitions, et évolution des populations

Dans cette section, on va s'intéresser aux puissances nécessaires pour effectuer les transitions désirées déjà présentées. Pour effectuer la cascade de désexcitation décrite en figure 3.3, deux choix s'offrent à nous : soit une multitude de sources fines effectuant chacune une seule transition, soit une source très large, voir même un corps noir, qui permettra d'effectuer toutes les transitions en même temps.

Dans chacun de ces cas, on va déterminer un ordre de grandeur de la puissance nécessaire. Pour des sources fines on détaillera la puissance qu'il faut pour effectuer efficacement chaque transition (transférer le plus d'atomes sur le niveau d'énergie inférieure) en fonction de la longueur d'onde de la transition. On utilisera les dipôles de transition que nous avons vus plus tôt. Dans un premier temps on rappelle les formules nécessaires puis on écrira l'équation différentielle qui régit l'évolution des populations dans l'hypothèse d'un système à deux niveaux fermé.

Taux de transition incohérent : intensité laser

On considère une transition entre un niveau 1 et un niveau 2 dont la durée de vie spontanée totale est $1/\Gamma_{12}$, la largeur de la transition sera représentée par une fonction Lorentzienne $L_{\omega_{12}}(\omega)$, centrée sur ω_{12} la pulsation de la transition. :

$$L_{\omega_{12}}(\omega) = \frac{\Gamma_{12}}{2\pi} \frac{1}{\frac{\Gamma_{12}^2}{4} + (\omega - \omega_{12})^2}$$
(3.22)

On considère un faisceau las gaussien de pulsation centrale ω_{laser} et largeur σ , on note sa densité spectrale d'intensité $I(\omega)$:

$$I(\omega) = \frac{I_{tot}}{\sigma\sqrt{2\pi}} e^{-\frac{(\omega-\omega_{laser})^2}{2\sigma^2}}$$
(3.23)



FIGURE 3.4 – Illustration des rapports de largeur entre la transition et le laser, pour calcul du produit de convolution. En bleu est tracé le profil Lorentzien en fréquence de la transition, et en jaune celui Gaussien du laser. Les unités sont arbitraires.

De façon générale, le taux de transition induit par le laser entre 1 et 2 s'écrit :

$$\Gamma = L_{\omega_{12}}(\omega) \otimes I(\omega) \times \frac{\pi d^2}{\hbar^2 \epsilon_0 c} = \int_0^{+\infty} I(\omega) L_{\omega_{12}}(\omega) d\omega \times \frac{\pi d^2}{\hbar^2 \epsilon_0 c}$$
(3.24)

Cette expression peut se simplifier dans les deux cas suivants :

- Le laser est fin devant la largeur de la transition.
- Le laser est large devant la largeur de la transition.

Dans le cas du laser fin devant la largeur de la transition, cela revient graphiquement au cas décrit par la figure 3.4a. Le produit de convolution (équation 3.24) peut être facilement calculé en sortant le terme lorentzien de l'intégrale. En effet, le laser est tellement fin par rapport à la transition, que $L_{\omega_{12}}(\omega)$ est quasiment constant sur la zone en commun avec le spectre du laser, qui peut presque être vu lui comme un Dirac. On écrit ainsi (à résonance $\omega = \omega_{12}$):

$$\begin{cases} \int_{0}^{+\infty} I(\omega) L_{\omega_{12}}(\omega) d\omega = L_{\omega_{12}}(\omega) \times \int_{0}^{+\infty} I(\omega) d\omega \\ = \frac{2I_{totale}}{\pi \Gamma_{12}} \end{cases}$$
(3.25)

Dans le cas du laser large devant la largeur de la transition, cela revient graphiquement au cas décrit par la figure 3.4b. Le produit de convolution (équation 3.24) peut être facilement calculé en sortant cette fois le terme gaussien de l'intégrale. En effet, la transition est tellement fine par rapport au profil spectral du laser, que $I(\omega)$ est quasiment constant (et vaut $I(\omega_{12})$)sur la zone en commun avec la transition, qui peut presque être vue elle comme un dirac. On écrit ainsi :

$$\begin{cases} \int_{0}^{+\infty} I(\omega) L_{\omega_{12}}(\omega) d\omega = I(\omega_{12}) \times \int_{0}^{+\infty} L_{\omega_{12}}(\omega) d\omega \\ = I(\omega_{12}) \end{cases}$$
(3.26)

Pour chaque source lumineuse utilisée pour stimuler les transitions, on se placera dans le cas de la source large devant la largeur de la transition. En effet, la largeur de la transition pour l'émission spontanée est l'inverse de la durée de vie du niveau, qui sera pour des atomes de Rydberg de l'ordre du kHz, tandis que toutes les sources que nous rencontrerons dans la suite seront larges au mieux de quelques MHz.

Evolution des populations en fonction de la puissance optique

Le taux de transition d'un niveau (n, l, m) vers un niveau (n', l', m') s'écrit :

$$\Gamma'(n,l,m,n',l',m') = \frac{I(\omega)\pi d(n,l,m,n',l',m')^2}{\hbar^2 \epsilon_0 c}$$
(3.27)

Il se trouve qu'en réalité la valeur du dipôle d de transition pour l'hydrogène ne dépend pas du nombre quantique m (si source isotrope), que l'on oubliera dans la formule du taux par la suite. Il sera plus judicieux ensuite de prendre en compte la puissance intégrée sur le spectre de la source, notée I_{tot} , plutôt que la puissance prise uniquement en la fréquence de transition $I(\omega)$. On aura : $I(\omega) = I_{tot}/\sigma$ avec σ la largeur spectrale. Pour illustrer le raisonnement, on fait le schéma 3.5 pour une transition entre les niveaux $n_2 = 15$ et $n_1 = 14$ (peu importe l'atome considéré, il s'agit ici d'un cas général). On suppose que les états du niveau n = 15 sont équipeuplés, et en particulier, pour faciliter les calculs, on prendra 1 atome par niveau. On remarque qu'il nous faudra deux polarisations : σ_- (transition $\Delta m = -1$) et σ_+ ($\Delta m = +1$) pour effectuer toutes les transitions. En fait on supposera (pour simplifier les calculs) que l'on disposera d'une source non polarisée (donc $1/3 \sigma_-$, $1/3 \sigma_+$, $1/3 \pi$). Commençons pas regarder le cas d'une transition d'un niveau bien défini (n_2, l_2, m_2) vers un second niveau (n_1, l_1, m_1). Nous sommerons ensuite les contributions de chaque sous-niveau l.

Pour un système fermé à deux niveaux, N_2 étant le nombre d'atomes sur le niveau n_2 et N_1 le nombre d'atomes sur le niveau n_1 , les seules sources de modification de ces nombres d'atomes dans le temps, sont les transitions entre ces deux niveaux. On peut alors écrire le système d'équations qui régit l'évolution des populations :

$$\begin{cases} \frac{dN_2}{dt} = -\Gamma' N_2 + \Gamma' N_1 \\ \frac{dN_1}{dt} = \Gamma' N_2 - \Gamma' N_1 \end{cases}$$
(3.28)

Si on note N_0 tel que $N_0 = N_1 + N_2$, alors, pour le niveau n_1 qui nous intéresse ici (combien d'atomes a-t-on réussi à mettre sur le niveau de *n* inférieur), on a l'équation de taux suivante :

$$\frac{dN_1}{dt} = -2\Gamma' N_1 + \Gamma' N_0 \tag{3.29}$$

Cela permet alors d'écrire, grâce aux conditions initiales :

$$N_1(t) = \frac{N_0}{2} \left(1 - e^{-2\Gamma' t} \right)$$
(3.30)



FIGURE 3.5 – Schéma des niveaux (l,m) pour $n_2=15$ et $n_1=14$. Pour chaque valeur de l il y a 2l + 1 niveaux m équipeuplés. On représente deux transitions possibles $\Delta l = -1$, avec $\Delta m = +1$ et $\Delta m = -1$ entre les niveaux 15 et 14.

Nous avons ainsi calculé le cas d'une transition. Maintenant, si on prend en compte tous les états l (chaque point du niveau $n_2=15$ sur la figure 3.5) et les transitions à $\Delta l = \pm 1$, on obtient alors :

$$N_{1}(t) = \frac{1}{2} \sum_{l=1}^{n_{2}-1} \frac{2l+1}{2} \left(1 - e^{-2\Gamma'(n_{2},l,n_{1},l-1)t} \right) + \frac{1}{2} \sum_{l=0}^{n_{2}-2} \frac{2l+1}{2} \left(1 - e^{-2\Gamma'(n_{2},l,n_{1},l+1)t} \right) \quad (3.31)$$

Application aux transitions limites

Les transitions dites ici limites sont celles qui délimitent le spectre de la source que nous cherchons. Il s'agit des fréquences de transition de n=40 à n=39 à 0.11 THz, et de n=15 à n=14 à 2.16 THz.

Cas de la source fine

On va maintenant appliquer la formule (3.31) dans le cas d'une source fine. Ici en réalité on parlera d'une source d'au moins 5 GHz de large. Cette largeur n'a pas été choisie au hasard et découle de la présence du champ magnétique sur l'expérience $AE\overline{g}IS$ au CERN. En effet, dans ce cas, en plus du hamiltonien en champ nul et du hamiltonien Stark, on doit ajouter des termes dus au champ magnétique et on a finalement en unités atomiques (d'après [57] et [58]) :

$$H = -\frac{1}{2n^2} + r \cdot F + \frac{1}{2}B \cdot (L + 2S) - \frac{1}{8}(r \times B)^2$$
(3.32)

Le dernier terme est à l'origine de l'écart en énergie entre niveaux m d'un même niveau n, l, équivalent à 5 GHz en fréquence pour le niveau n=40 dans un champ magnétique de 1 T présent dans l'expérience $AE\overline{g}IS$. Ainsi, quand on veut stimuler une transition d'un niveau n, l vers un autre niveau n', l', il faut être sûr de pouvoir stimuler les transitions depuis tous les différents m, d'où la largeur spectrale de 5 GHz.

Les figures 3.6 et 3.7 (en échelle logarithmique) présentent l'évolution du nombre d'atomes dans l'état n_1 (de *n* inférieur) en fonction de la puissance optique apportée au système fermé (on a pris 5 GHz de largeur spectrale, qui correspond à la figure 3.3). On précise que le cas du système fermé correspond à un cas défavorable, car en réalité il sera ouvert et plus d'atomes pourront être transférés vers le bas. Ainsi, les conclusions que l'on peut tirer de ces figures permettront de déterminer une puissance forcément suffisante pour effectuer les transitions. Dans le cas d'un système fermé le transfert maximum est de 50% des atomes (l'équation (3.30) sature à N₀/2), dans les figures suivante nous noterons ces 50% maximum comme une efficacité de 100%. L'efficacité est donc définie comme le nombre d'atomes transféré divisé par le nombre initial (sur 2). Sur la figure 3.6, on présente donc l'évolution du nombre N_1 d'atomes sur le niveau $n_1=14$. Le taux de transfert acceptable choix est arbitraire mais fixe une limite, par exemple 80 %. Dans ce cas, la transition est efficace pour une puissance de quelques $\mu W/cm^2$ environ. Sur la figure 3.7, on présente cette fois l'évolution du nombre d'atomes sur le niveau $n_1=39$ en fonction également de la puissance de la source. Cette fois, la transition est efficace pour quelques centièmes de $\mu W/cm^2$ de puissance. On peut donc déduire de ces figures, qu'en principe une source dont le spectre s'étend de 0.1 à 2 THz, et permettant de délivrer une puissance de l'ordre du $\mu W/cm^2$ sur une largeur de 5 GHz par transition devrait permettre d'effectuer efficacement la cascade de désexcitation décrite sur la figure 3.3.



FIGURE 3.6 – Transfert des atomes du niveau $n_2=15$ vers le niveau $n_1=14$ (système fermé) en fonction de l'intensité laser (5 GHz de large), dans le cas d'états équipeuplés et une lumière isotrope.



FIGURE 3.7 – Transfert des atomes du niveau $n_2=40$ vers le niveau $n_1=39$ (système fermé) en fonction de l'intensité laser (5 GHz de large), dans le cas d'états équipeuplés et une lumière isotrope.

Cas de la source large

Dans le cas d'une source large on peut tracer les mêmes figures que 3.6 et 3.7. Cependant, il suffit de comparer la largeurs de la source large par rapport à la source fine pour avoir directement les résultats. En effet, dans la formule (3.27), seule l'intensité $I(\omega)$ varie, et dans son expression (3.23), seule la largeur est modifiée. On en déduit que le rapport des puissances entre source large et source fine est donné par le rapport des largeurs. La source large est 400 fois plus large que la source fine étudiée, donc les puissances seront 400 fois plus importantes.

On en déduit que pour une source de 2 THz de largeur spectrale, la puissance nécessaire pour effectuer la transition de 15 vers 14 est de l'ordre de 4 mW/cm², tandis que pour la transition de 40 vers 39, il faudra 0.1 mW/cm². On note, un corps noir à 1000 K possède une puissance dans la bande 0.2 THz à 2 THz de l'ordre de la centaine de $\mu W/cm^2$, et peut donc déjà sembler une bonne source pour notre application. Cela sera étudié au prochain chapitre.

3.3.5 Prise en compte de la photoionisation

Dans les calculs précédents, il y a un élément que nous n'avons pas pris en compte, à savoir la photoionisation. En effet, les résultats précédents ne seront valides que si l'ionisation des atomes par la puissance optique apportée est négligeable devant le taux de transition entre les deux niveaux atomiques considérés (sous-entendu pendant le temps caractéristique de 10 μ s de l'expérience). La photoionisation est un phénomène indésirable pour notre application car elle est une origine de pertes d'atomes. On souhaite donc limiter au plus son influence pendant les 10 μ s de l'expérience. Dans le cas de sources fines nous devons effectuer simultanément les transitions $40 \rightarrow 39 \rightarrow 38$.. $\rightarrow 15 \rightarrow 14$. Hors certaines de ces longueurs d'ondes peuvent photoioniser certains états. Par exemple la longueur d'onde $15 \rightarrow 14$ est suffisante pour photoioniser l'état n=39. Donc pour quantifier cet effet, on procède comme suit :

- On calcule la puissance nécessaire pour effectuer la transition stimulée en 10 μ s entre les niveaux 15 et 14. Pour faciliter les calculs, on ne sommera pas les contributions de chaque niveau l dans l'expression du taux de transition. On prendra alors l=1 et l=n-1.
- On détermine en même temps la longueur d'onde de cette transition $\lambda_{15\to 14}$.
- On s'aperçoit que cette longueur d'onde λ_{15→14} ne peut permettre de photoioniser que les niveaux de np supérieurs à 39.
- On calcule l'intensité nécessaire pour photoioniser en 10 μ s chaque niveau 39 < np < 50 à cette longueur d'onde $\lambda_{15\rightarrow 14}$.
- On compare ces intensités.

Cas de la source fine

La procédure décrite plus haut nous permet de tracer la figure 3.8.

On voit ainsi, que dans ce cas d'une source fine de 5 GHz de largeur spectrale, nous n'aurons pas besoin de nous inquiéter de la photoionisation car il faudrait beaucoup plus d'intensité pour photoioniser n'importe quel niveau que celle nécessaire pour effectuer chaque transition une par une.



FIGURE 3.8 – Cas d'une source fine de 5 GHz de largeur. Comparaison des intensités nécessaires pour effectuer la transition 15 vers 14 en 10 μ s pour une grande valeur de l (l=n-1, en rouge), une petite valeur de l (l=1, en orange), et pour photoioniser en 10 μ s le niveau np à cette même longueur d'onde (139 μ m, fréquence 2.16 THz). Échelle semi-logarithmique.

Cas de la source large

On trace exactement la même figure dans le cas d'une source de 2 THz de largeur spectrale, avec le même code couleur. On obtient la figure 3.9.

D'après la figure 3.9, on voit que la transition 15 vers 14 dans le cas d'une source large ne sera pas en compétition avec la photoionisation.

Cas spécifique du corps noir

On sait que le corps noir peut induire des transitions entre deux niveaux atomiques n vers n' (n > n' ou n < n') quel que soit l'atome considéré. Or il est aussi responsable d'un effet indésirable dans notre cas : les transitions vers le continuum, soit la photoionisation par corps noir. Ainsi, pour prendre en compte ce phénomène dans nos calculs, nous avons besoin de connaître la section efficace de photoionisation par corps noir idéalement pour l'hydrogène et le césium. Nous avons vu plus tôt comment calculer la section efficace de photoionisation pour l'hydrogène peu importe la source lumineuse. La formule (3.21) reste bien sûr toujours valable dans le cas d'un corps noir, mais on peut trouver dans la littérature des formules approchées spécifiques pour le corps noir.

L'article [59] donne notamment une formule approchée du taux de photoionisation par corps noir pour les atomes d'hélium et d'hydrogène. La formule proposée est une approximation asymptotique de la formule générale du taux de photoionisation :

$$\Gamma_{ioni}(n,T) = c \int_{|E_{nl}|}^{\infty} \sigma_{nl}(\omega) \frac{u_p(\omega,T)}{\omega} d\omega$$
(3.33)

Où $u_p(\omega, T)$ est la densité spectrale d'énergie du corps noir à la température T:

$$u_p(\omega, T) = \frac{\hbar\omega^3}{4\pi^3 c^2} \frac{1}{\exp(\hbar\omega/kT) - 1}$$
(3.34)



FIGURE 3.9 – Cas d'une source large de 2000 GHz de largeur. Comparaison des intensités nécessaires pour effectuer la transition 15 vers 14 en 10 μ s pour une grande valeur de l (l=n-1, en rouge), une petite valeur de l (l=1, en orange), et pour photoioniser en 10 μ s le niveau np à cette même longueur d'onde (139 μ m, fréquence 2.16 THz). Échelle semi-logarithmique.

Par des études des dépendances de ce taux avec T et le nombre quantique principal, il est proposé :

$$\Gamma_{ioni}(n,T) \simeq 6306.1 \frac{s_0 T}{n^{75/32}} \left[1 + \frac{s_1}{n} + \frac{s_2}{n^2} \right] \times Q \tag{3.35}$$

Où Q est défini par :

$$\begin{cases} Q = \left[1 - \left|\frac{E_{nl}}{kT}\right|^{\beta-2}\right] / (\beta-2), & |E_{nl}| \ll kT, \\ Q = \exp(-|E_{nl}|/kT), & |E_{nl}| \gg kT \end{cases}$$
(3.36)

 β est un paramètre numérique sans dimension compris entre 2.22 et 2.29 pour $10 \le n \le 200$. Pour l'hydrogène, les valeurs des coefficients s_0 (en Mb mégabarn), s_1 et s_2 sont :

	s_0	s_1	s_2
ns	2.484	3.138	-8.209
np	2.479	3.596	-7.298
nd	2.469	4.537	-7.839

TABLE 3.1 – Valeurs des coefficients d'ajustement s_0 (en Mb mégabarn), s_1 et s_2 présents dans la formule du taux de photoionisation par corps noir de l'hydrogène (états s, p et d) d'après [59], équation (33).

A partir de la formule (3.35) on calcule le taux de photoionisation par corps noir en fonction du nombre quantique principal de l'atome à photoioniser. Pour différentes températures de corps noir (300 K, 600 K et 1000 K) on obtient la figure 3.10. Les conditions (3.36) de la formule (3.35) donnent deux régimes, d'où un raccord autour de n=20 sur la figure. Celle-ci nous permet de dire que la puissance d'un corps noir à 300 K, permet de photoioniser les atomes surtout de n compris entre 10 et 40, ce qui peut être gênant dans notre cas, mais la constante de temps de ce phénomène est de l'ordre de 0.1 ms, bien supérieure au délai de 10 μ s qui nous est imparti. Ainsi, l'effet du corps noir à 300 K sera négligeable pendant la durée de l'expérience. En revanche, quand la température du corps noir augmente, le taux de photoionisation va aussi augmenter et la constante de temps diminuer, par exemple jusqu'à 50 μ s pour 1000 K. Plus on augmentera la température du corps noir, plus il y aura de pertes



FIGURE 3.10 – Taux de photoionisation par corps noir de chaque niveau n avec l=1.

d'atomes par photoionisation. Or, les longueurs d'onde de photoionisation des états 10 < n < 40 se situent entre 9 et 150 μ m, donc filtrer les courtes longueurs d'onde peut être une solution pour s'affranchir de ce phénomène, d'autant que c'est le domaine le plus énergétique du corps noir. Les valeurs de n autour de 40 resteront cependant problématiques puisque la transition 15 vers 14 se fait à la même longueur d'onde 139 μ m que la photoionisation de l'état 39 par exemple.

Si on intègre la puissance du corps noir sur notre spectre d'intérêt de 0.2 à 2 THz, on obtient autour de 0.1 mW/cm^2 pour une température de 300 K, et autour de 0.25 mW/cm^2 pour une température de 1000 K. On en déduit que le corps noir peut permettre d'avoir la puissance nécessaire pour effectuer la cascade de désexcitation, mais la photoionisation risque de causer des pertes, d'où l'idée de filtrer le corps noir pour supprimer les longueurs d'onde dans le spectre qui photoionisent.

3.4 Cas de plusieurs niveaux

Dans le cadre de la cascade de désexcitation envisagée, il ne faudra plus considérer uniquement deux niveaux mais une multitude, où les transitions déjà décrites auront lieu simultanément entre tous les niveaux.

L'objectif dans cette section est de simuler les durées de vie de plusieurs états de Rydberg de l'hydrogène en présence d'un corps noir, et d'en faire varier la température pour voir son influence. Cela permettra à la fois de vérifier qu'une source externe peut effectivement accélérer la cascade de désexcitation, quantifier les pertes éventuelles d'atomes au cours du processus, et en tirer des conclusions quant à la source à utiliser pour l'expérience $AE\overline{g}IS$.

3.4.1 Etude des populations des différents niveaux excités : Laser Cooling Code C++

Puisque les atomes d'antihydrogène sont inaccessibles, et que nous travaillerons expérimentalement sur des atomes de césium, nous avons besoin de simuler les transitions d'un état de Rydberg soumis à une source externe (corps noir à une certaine température T, laser ou autre). Pour cela, plusieurs éléments doivent être éclaircis :

• On ne peut pas considérer qu'un nombre fini de transitions entre un nombre fini de

niveaux. Il faut considérer les transitions du niveau n=30 (ou n'importe quel état de départ) vers n=50, 100, 200 etc, mais aussi vers le continuum.

- Il faut modéliser le corps noir, ou la source THz à la façon d'un faisceau gaussien, car le code utilise des faisceaux gaussiens. On verra au chapitre suivant que cela est compatible avec les lampes que nous utiliserons, qui présentent des caractéristiques spatiales de faisceaux relativement gaussiens.
- Les atomes se déplacent à une vitesse v constante et ne voient donc pas tout le temps le champ du laser (ou corps noir). On rappelle que dans notre expérience au Laboratoire Aimé Cotton, les atomes serons issus d'un four. Dans l'expérience d'AEgIS à priori ils seront formés à une température donnée mais comme le but d'AEgIS est de former un jet d'antihydrogène (par accélération Stark des atomes de Rydberg) donc il peut être important d'avoir cette possibilité dans le code de simulation.

Avant d'aborder ces différents points, on va présenter le code que l'on va utiliser. Il s'agit d'un code écrit en C++, qu'on appellera Laser Cooling Code (code de refroidissement laser), par Daniel Comparat et présenté dans l'article [60]. A l'origine, ce code a été écrit pour simuler le refroidissement Sisyphe de molécules piégées dans un piège électromagnétique. Les éléments de base sont les mêmes : des molécules au lieu des atomes, mobiles, et un laser d'excitation pour stimuler des transitions. Pendant la thèse j'ai adapté ce code pour simuler la désexcitation d'atomes de Rydberg (césium et hydrogène) par une source térahertz, en premier lieu un corps noir.

L'objectif premier ici est d'écrire des équations de taux pour les populations des différents niveaux dans le cas d'atomes soumis à un couplage cohérent et incohérent. Cette situation nécessite d'utiliser le formalisme dit de l'équation pilote qui aboutit aux équations de Bloch optiques. Tout le raisonnement est détaillé dans le livre [61] de C. Cohen-Tanoudji, J. Dupont-Roc et G. Grynberg.

Les différents taux mis en jeux dans la désexcitation d'un état i quelconque, se désexcitant vers les niveaux inférieurs j un par un, sont représentés sur la figure 3.11 et sont :

• L'émission spontanée entre les deux niveaux, notée Γ_{ij} sur la figure :

$$\Gamma_{ij} = \frac{\omega_0^3 d_{ij}^2}{3\pi\epsilon_0 \hbar c^3} \tag{3.37}$$

• La photoionisation, représentée par la section efficace $\sigma_{ioni,i ou j}$ qui dépend du niveau de départ i ou j, et donnée par la formule (3.21) :

$$\Gamma_{ioni,i} = \frac{I(\omega)}{\hbar\omega} \sigma_{ioni,i} \tag{3.38}$$

On utilisera dans un premier temps la formule (3.35) pour le taux de photoionisation par corps noir. Elle n'est valable que pour les états de petites valeurs de l (0, 1 et 2), tandis qu'au CERN, les atomes d'antihydrogène seront formés sur des états de grands n, mais aussi grands l et m, on surestimera donc le phénomène de photoionisation, et les résultats expérimentaux ne pourront être que meilleurs que les résultats obtenus par simulation.

• L'émission stimulée par la source externe, notée Γ'_{ij} . Par exemple, formule (3.24) pour une source de type laser, ou le terme lié au corps noir dans la formule (3.16).



FIGURE 3.11 – Schéma de deux niveaux i et j interagissants avec un laser large spectralement ainsi que d'autres niveaux.

Ici nous aborderons un cas simplifié où il y n'y aura qu'une seule source (laser, corps noir). Dans un premier temps, on ne traitera que le cas où la source externe est large devant la largeur de la transition entre deux niveaux. Cela a déjà été traité dans ce chapitre donc on rappelle dans ce cas, équation (3.26), que le produit de convolution entre la largeur de la transition, Γ (voir figure 3.11), et le spectre de la source centrée sur la fréquence de transition ω_{ij} , vaut $I(\omega_{ij})$ avec $I(\omega)$ le spectre de la source. De fait, cela revient à étudier des interactions incohérentes, et on peut donc sommer les différentes contributions (différents taux) une à une. On peut alors écrire l'équation de taux suivante, qui régit l'évolution de la population du niveau *i* au cours du temps :

$$\frac{dP_i}{dt} = -\left(\sum_j (\Gamma_{ij} + \Gamma'_{ij}) + \Gamma_{ioni, i}\right) P_i + \left(\sum_j (\Gamma_{ji} + \Gamma'_{ji})\right) P_j \tag{3.39}$$

C'est-à-dire qu'on connaît l'évolution en temps des probabilités pour une particule d'occuper un niveau parmi N. Si on veut maintenant simuler le phénomène de façon informatique, on va utiliser la méthode de Monte-Carlo dite cinétique ou dynamique (décrit dans [62]). Les algorithmes de Monte Carlo sont utilisés pour simuler des phénomènes aléatoires. Dans ce cas précis, la méthode dynamique permet de simuler l'évolution d'un système d'un état de départ vers une multitude d'états finaux, avec des probabilités connues à l'avance et dans notre cas dépendantes du temps. C'est cette méthode qui est appliquée par le LaserCooling Code utilisé pour les simulations pendant la thèse. Au préalable, il nécessite, outre les informations usuelles sur l'espèce atomique ou moléculaire utilisée, deux fichiers d'entrée :

- Un fichier qui liste tous les niveaux à considérer (un nombre fini de niveaux) et renseigne pour chacun les nombres quantiques qui le caractérise, son énergie et la population initiale sur ce niveau.
- Un fichier qui liste toutes les transitions possibles entre les niveaux cités dans le fichier précédent et donne les énergies de transitions, les taux (ou sections efficaces pour

ionisation).

Les calculs sont menés comme suit :

- Au départ (temps t_0) N atomes sont sur un niveau $|n \ l \ m\rangle$.
- On détermine un temps T au bout duquel le système (de N atomes) quitte son état initial. Dans le cas de la méthode de Monte Carlo dynamique avec des probabilités dépendantes du temps, ce temps T est déterminé par :

$$\int_{t_0}^{t_0+T} \sum_{i=1}^N \Gamma_{tot,ij}(t) dt = -ln \ u$$
(3.40)

Où u est un paramètre choisi de façon aléatoire entre 0 et 1, et $\Gamma_{tot,ij}$ la somme des taux qui vident le niveau i.

- On tire au hasard un autre nombre aléatoire entre 0 et Γ_{tot} , qui va déterminer l'état final à l'issue de la transition. Si ce nombre est compris entre S_{k-1} et S_k , le système va vers l'état k, où $S_0 = 0$ et $S_k = \sum_{k=1}^{i} \Gamma_{ik}$. On rappelle ici le caractère Markovien de cette méthode de simulation : entre t_0 et $t_0 + T$ le système est dans l'état initial, il ne change donc d'état qu'à $t_0 + T$.
- On fait les calculs correspondants (nouveaux taux), on change le temps et on itère.

Pendant la thèse, j'ai écrit les codes avec le logiciel Mathematica qui créent les fichiers d'entrée de façon automatique. Ceux-ci dénombrent les différentes transitions (grâce aux règles de sélection sur les nombres quantiques) et leur taux associés dans le cas où un corps noir de température T_{BBR} (BBR pour Black Body Radiation en anglais, rayonnement du corps noir) est vu par les atomes. Ces codes sont écrits pour le césium et l'hydrogène mais sont adaptables à d'autres atomes pourvu que les formules donnant en particulier l'intégrale de recouvrement des fonctions d'onde radiales et la section efficace de photoionisation soient connues. J'ai également implémenté la prise en compte d'un corps noir comme source, et la photoionisation.

3.4.2 Résultats des premières simulations

Ici nous allons présenter les résultats de plusieurs simulations de durées de vie de niveaux excités de l'atome d'hydrogène. Celles-ci ont été obtenues très récemment car il a fallu vérifier auparavant les différentes formules des différents taux, et les comparer avec les résultats de la littérature, ils nécessitent plus d'investigations.

On cherche à déterminer comment le corps noir stimule les transitions, idéalement vers les niveaux inférieurs jusqu'au fondamental, et en combien de temps, en fonction de la température du corps noir, on peut espérer ramener les atomes excités dans le niveau fondamental. Ces simulations nous permettrons aussi de nous intéresser à l'évolution des populations des niveaux plus excités que le niveau de départ, ainsi que de tous les niveaux intermédiaires jusqu'au fondamental. Ces simulations nous éclaireront sur la faisabilité théorique du projet sur l'hydrogène et donc à fortiori sur l'antihydrogène.

Dans le code que nous avons décrit au paragraphe précédent, nous avons la possibilité de créer différents fichiers de sortie. Le premier donne le nombre d'atomes sur différents niveaux

(par catégories : niveau initial, niveaux supérieurs, niveaux inférieurs, niveau fondamental, atomes ionisés) en fonction du temps. Le second donne les taux de transitions entre les différents niveaux (identifiés par leur énergie) et vers le continuum à chaque pas en temps. Les paramètres d'entrée sont principalement le ou les niveaux initialement peuplés, le nombre total d'atomes considérés, la durée totale sur laquelle résoudre les équations de taux, ainsi que le pas temporel de cette résolution.

Durées de vie

Dans un premier temps, on va présenter quelques résultats obtenus lorsque seul le niveau 40d de l'hydrogène est initialement peuplé. Ce choix est arbitraire mais permet d'étudier les petits moments angulaires (l=2), cas qui sera aussi étudié expérimentalement. On obtient la figure 3.12. Celle-ci présente les courbes d'évolution de la population du niveau 40d lui-même, dont on déduit la durée de vie, quand règnent des corps noirs de différentes températures (allant de 0 K donc pas de corps noir, à 1300 K). La figure correspondante est la figure 3.12a. Le nombre total d'atomes dans ce cas est 30, la durée sur laquelle la simulation a été menée était de 100 μ s. A 30 μ s il n'y a déjà plus aucun atome sur le niveau 40d, et ce quelle que soit la température du corps noir présent. On donne alors les résultats sur la gamme temporelle entre 0 et 35 μ s. On peut remarquer que chaque courbe présente une allure en "escaliers". Ceci est du au nombre d'atomes utilisé peu élevé, et au pas de la résolution assez grand. En effet, pour considérer le niveau 40d, on a créé un fichier qui regroupe toutes les transitions possibles, du niveau n=1 à n=50, avec jusqu'à l=49, sans compter le continuum. Cela fait un très grand nombre de raies à étudier pour le code, donc chaque simulation (une par température) est très longue et peut prendre jusqu'à plusieurs dizaines d'heures (l'optimisation du temps de calcul n'a pas encore été effectuée, ce problème ne se posait pas dans le cas de particules piégées). Ainsi, jouer sur le nombre d'atomes et le pas de la résolution permet de restreindre un peu le temps de calcul.

Sur les résultats eux-mêmes présents sur les courbes 3.12a, on peut remarquer :

- La courbe noire correspond à la courbe en absence de corps noir (0 K), la décroissance dans ce cas est très lente. Par un ajustement par une fonction exponentielle décroissante, on obtient un temps caractéristique du même ordre que les 10 μs dont nous disposons pour effectuer la désexcitation. Nous rappelons tout de même que c'est en réalité le temps de population de l'état fondamental qui sera vraiment significatif.
- La courbe rouge bordeaux correspond au corps noir de plus haute température (1300 K). Dans ce cas on voit clairement que la durée de vie du niveau 40*d* est bien plus courte. L'ajustement par une fonction exponentielle décroissante par le logiciel Origin ne fonctionne pas car la courbe est très abrupte et le pas est trop grand. Cependant à l'œil, on peut prédire une valeur de $\tau \simeq 5 \ \mu$ s.

Sans courbes plus précises (au sens plus petit pas, plus grand nombre d'atomes considéré), il est difficile de comparer les courbes de différentes températures de corps noir. Mais à première vue on peut dire que la présence d'un corps noir accélère la désexcitation du niveau 40*d*. Cependant on a déjà vu que plusieurs transitions pouvaient avoir lieu et avoir pour effet de dépeupler le niveau étudié ici. En plus des transitions qui nous intéressent, celles vers les niveaux moins excités jusqu'au fondamental, il peut y avoir des transitions induites par le corps noir vers les niveaux d'énergies supérieures, voire même de la photoionisation. Ainsi, ce qui est vraiment représentatif du succès ou non du processus, c'est l'évolution de la population du niveau fondamental. Ainsi, sur la figure 3.12b, on présente l'évolution temporelle de la population du niveau fondamental de l'hydrogène quand le niveau initialement peuplé est le


(a) Population du niveau 40d. (b) Population du niveau fondamental.

FIGURE 3.12 – Evolution du nombre d'atomes sur le niveau initial 40d de l'hydrogène et sur le niveau fondamental en fonction du temps pour différentes températures de corps noir.

40d, à nouveau pour différentes températures de corps noirs. De cette figure ci on peut tirer à nouveau deux remarques :

- La courbe noire correspond à l'évolution en l'absence de corps noir (0 K). Dans ce cas, sur les 30 atomes initialement sur le niveau 40d, 29 (soit environ 97 %) arrivent finalement après un peu plus de 30 μ s sur le niveau fondamental. Le temps caractéristique de population du niveau fondamental est alors déterminé par ajustement de la courbe par une fonction exponentielle croissante. On obtient $\tau \simeq 10 \ \mu$ s, du même ordre que le délai imparti pendant l'expérience au CERN.
- La courbe rouge bordeaux correspond à la présence du corps noir de température la plus haute, ici 1300 K. Cette fois, sur les 30 atomes qui peuplaient initialement le niveau 40d, seuls 23 arrivent finalement en 30 μ s environ sur le niveau fondamental, soit environ 77 % des atomes. En regardant les données dans ce cas, on voit que 6 atomes ont été photoionisés, contre forcément aucun à 0 K. Cela représente 20 % des atomes. Le temps caractéristique de croissance de la population sur le niveau fondamental est déterminé de l'ordre de 10 μ s.

Ces premières observations vont dans le sens que la présence d'un corps noir accélère la dépopulation d'un niveau excité. Cependant la photoionisation est une source importante de perte d'atomes au cours du processus, et nous en affranchir permettrait d'améliorer ces résultats.

Pour étudier l'efficacité du processus (nombre d'atomes effectivement désexcités sur le niveau fondamental) et la compétition avec la photoionisation, il faudrait s'intéresser aux populations des autres niveaux que le niveau initial au cours du temps. En effet, jusqu'à présent nous avons pu quantifier théoriquement le nombre d'atomes qui quittent le niveau initialement peuplé. Or il peut exister deux raisons pour lesquelles un atome quitte un niveau : Soit il a été excité, soit il s'est désexcité. L'objectif sera donc d'étudier chacun de ces cas par les simulations.

L'excitation

En ce qui concerne les sources possibles d'excitation, ici aussi elles sont au nombre de deux :

- Une transition stimulée par la source externe vers un niveau supérieur.
- La photoionisation d'atomes qui peuplent différents niveaux.

Ces phénomènes seront surtout à prendre en compte dans le cas d'une source large comme un corps noir ou une lampe, car avec des sources fines, on choisit les longueurs d'onde pour ne pas exciter ni photoioniser. Cependant par exemple, on sait que la longueur d'onde par exemple de transition de n=15 vers n=14 pour l'hydrogène est la même que la longueur d'onde de photoionisation depuis le niveau n=39, à savoir 139 μ m.

Dans le cas où la source sera un corps noir, on fera varier sa température de façon à voir son influence sur l'ampleur de chacun de ces processus. On pourra aussi, par la suite, comparer avec une autre source dont on aura entré le spectre dans le code de simulation décrit.

La décroissance

On voudra également quantifier d'un côté le nombre d'atomes qui quittent le niveau initial pour descendre vers les niveaux de plus faible énergie, et d'un autre côté regarder combien d'atomes arrivent effectivement sur le niveau fondamental. C'est dans ce dernier point finalement que réside l'objectif principal de l'expérience et c'est de cette façon particulièrement que l'on pourra juger de l'efficacité théorique de la technique. Ainsi on cherchera à déterminer la vitesse de population du niveau fondamental et le nombre maximal d'atomes qui y sont transférés.

Dans le cas du corps noir, on essayera également de voir l'influence de sa température sur ces deux paramètres : la constante de temps de population du niveau fondamental et le nombre d'atomes transférés à la fin.

Enfin, nous avons la possibilité de donner en entrée un spectre de source façonné comme par exemple un corps noir filtré, il suffit de donner la transmission du filtre. Ainsi, dans le cas d'une source large de 1 THz, avec la même puissance qu'un corps noir à 1000 K, de type faisceau gaussien, on obtient la figure 3.13. Initialement, il y a 50 atomes sur l'état 40*d*. On s'aperçoit immédiatement qu'il n'y a pas de perte d'atomes sur une durée de 55 μ s, donc pas de photoionisation. De plus, le nombre quantique principal moyen de tous les atomes atteint la valeur 1 en fin de simulation. Cela signifie qu'une grande majorité des atomes ont atteint le niveau fondamental. Visuellement, on voit que le processus, bien que rapide, reste plus long que les 10 μ s voulues, mais il ne s'agit là pas d'un réel corps noir, et la température peut aussi être adaptée, ainsi que l'épaisseur de filtre.

Il est important également d'ajouter que les formules utilisées pour les simulations (taux de photoionisation) ne sont valables que pour les états de petites valeurs de l, et que nous surestimons ainsi le taux de photoionisation par rapport au cas réel.

Les états circulaires

On appelle états circulaires les états de très grands l et m. Typiquement ici on parlera de l'état n=30, l=29 et m=29. On sait que ces états, de par ces grandes valeurs de moment angulaire, seront les plus difficiles à désexciter, on souhaite ici tester dans ce cas très défavorable, différentes sources. Dans un premier temps, si aucun laser n'est allumé (ni aucune source), on obtient la courbe noire de la figure 3.14.



FIGURE 3.13 – Evolution au cours du temps, du nombre total d'atomes (en bleu foncé), et du nombre quantique principal moyen des atomes (en rouge). Le niveau initialement peuplé est le 40d (50 atomes), et la source est une source de 1 THz de large équivalente à un corps noir à 1000 K filtré par 4 mm de HDPE (décrit au chapitre 4).



FIGURE 3.14 – Evolution au cours du temps du nombre quantique principal moyen des atomes. Le niveau initialement peuplé est le n=30, l=29 et m=29 (100 atomes sur ce niveau). En noir : Aucune source lumineuse n'est utilisée, en vert : avec une source très large (30 THz) non façonnée, en rouge : la même source est façonnée.

Dans ce cas là, on voit qu'il n'y a pas de désexcitation sur les 100 μ s ici simulées, le nombre quantique principal moyen reste le même. Cela confirme la nécessité d'une source externe.

Maintenant, si on applique une source très large (30 THz), dont la puissance intégrée sur le spectre est de 10 mW (puissance relativement uniformément répartie sur tout le spectre), on obtient la courbe verte de la figure 3.14. Quand le spectre de la source large n'est pas façonné, il y a une excitation globale des atomes au lieu d'une désexcitation. Le nombre quantique principal moyen augmente au cours du temps. En effet, le taux de transition vers les états supérieurs est plus grand que le taux de transition vers le bas. On montre donc ici que pour désexciter les états circulaires avec une source large, il faudra filtrer le spectre pour atténuer autant que possible les longueurs d'onde d'excitation (supérieures à 2700 μ m notamment, donc inférieures à 0.1 THz).

A titre d'exemple, on façonne la source précédente de 30 THz de large pour favoriser les transitions vers les niveaux inférieurs (on fait en sorte que ces raies aient plus de puissance). La source ainsi façonnée délivre 0.16 μ W pour la transition $n=30 \rightarrow n=29$ et 160 μ W pour la transition $n=15 \rightarrow n=14$. Dans ce cas, on obtient la courbe rouge sur la figure 3.14. Finalement, dans ce cas ci, on voit que le nombre quantique principal moyen finit par diminuer rapidement et atteint n=7 à 100 μ s. Sur le cas très défavorable des états circulaires, nous avons trouvé dans le façonnage de spectre un moyen de forcer la désexcitation. Celle-ci est plus longue que les 10 μ s demandées, mais il est possible de jouer sur la puissance de la source, pour accélérer encore la cascade.

3.5 Conclusions

Ce chapitre nous a permis de présenter le cadre général de l'expérience que nous allons mener ensuite. En effet, bien qu'à terme, le travail que nous effectuons ici devrait être transposé sur l'expérience d'antihydrogène $AE\overline{g}IS$ du CERN, nous avons pu poser les contraintes pour réaliser au Laboratoire Aimé Cotton une démonstration de principe qui soit la plus fidèle possible au cas réel au niveau des conditions expérimentales. Ainsi, nous pouvons résumer ainsi les éléments les plus importants sur ces contraintes :

- Le schéma de désexcitation envisagé (voir figure 3.3) impose des fréquences de transition de niveau atomique en niveau atomique dans la gamme 0.1 à 2 THz.
- Le temps dont nous disposons pour agir sur les états des atomes d'antihydrogène est fixé à 10 μ s du fait de la vitesse de ces atomes.
- On résume les considérations de puissance trouvées avec un simple modèle à deux niveaux pour la source fine à 5 GHz et la source large à 2 THz dans le tableau 3.2.

	Transition $15 \rightarrow 14$	Transition $40 \rightarrow 39$
Source fine 5 GHz	$1~\mu { m W/cm^2}$	$0.01~\mu\mathrm{W/cm^2}$
Source large 2 THz	$0.4 \mathrm{~mW/cm^2}$	$4 \ \mu W/cm^2$

TABLE 3.2 – Puissances nécessaires pour effectuer les deux transitions limites 15 \rightarrow 14 à 2.16 THz, et Transition 40 \rightarrow 39 à 0.1 THz, en fonction de la source envisagée.

Un corps noir délivre tout juste assez de puissance sur toute la largeur du domaine 0.2 à 2 THz, puisque celle-ci est de plusieurs dixièmes de mW, voir tableau 3.3. Elle

s'avèrera cependant peut-être insuffisante pour la transition du niveau 15 à 14 (on se contentera d'un taux de transfert dans ce cas de 77 %).

	Puissance du corps noir sur 0.2 à 2 THz
T = 300 K	$0.06~\mathrm{mW/cm^2}$
T = 1000 K	$0.25~\mathrm{mW/cm^2}$

TABLE 3.3 – Puissances de corps noir à 300 et 1000 K sur le spectre en fréquence de 0.2 à 2 THz.

- Dans cette région du domaine des fréquences THz, certaines fréquences peuvent être à l'origine de processus indésirables d'excitation d'atomes (vers des niveaux plus élevés, ou même l'ionisation). Ce point, nous l'avons vérifié par les calculs qui en montrent l'effet sur la durée de l'expérience pour un petit et un grand moment angulaire, et nous en déduisons que la photoionisation ne sera pas un obstacle dans le cas d'une source fine à 5 GHz (figure 3.8), ni même pour la source large de 2 THz. Pour la photoionisation par corps noir, elle est négligeable sur les 10 μ s de l'expérience pour de faibles températures de corps noir, mais si on augmente la température, ce phénomène pourra devenir gênant en ionisant des atomes des niveaux les plus élevés.
- Le fait de filtrer une source large améliore les résultats, figure 3.13, car il est alors possible d'atténuer les longueurs d'onde responsables des phénomènes d'excitations. On verra dans le chapitre suivant comment réaliser cela en pratique.
- Le cas des états circulaires est très défavorable. Sans modifier le spectre d'une source large gaussienne, il est globalement plus facile d'exciter les atomes. Mais on a montré qu'en atténuant des longueurs d'onde choisies, non impliquées dans les transitions vers les niveaux inférieurs, il est possible d'améliorer la cascade de désexcitation, figure 3.14. Ces études ont été effectuées avec une puissance de 160 μ W pour la transition la plus difficile de 15 à 14. La désexcitation s'effectue en 100 μ s, donc on veut l'effectuer en réalité 10 fois plus vite, ce qui nécessitera une puissance au moins 10 fois supérieure, soit de l'ordre de quelques centaines de μ W/cm². Si on réduit la largeur des raies, la puissance nécessaire sera plus faible. Les valeurs déterminées par le modèle simple de transitions entre deux niveaux donne donc des valeurs qui seront, dans le cas des états circulaires, trop faibles. Ainsi, une puissance de 10 μ W/cm² avec une source large à 5 GHz pour les transitions entre niveaux de *n* de l'ordre de 30 ou 40, et la même puissance avec une source plus fine de 500 MHz de large pour les transitions de *n* plus faibles comme *n*=15, doit permettre la désexcitation. En effet, pour de faibles valeurs de *n*, l'effet diamagnétique élargira beaucoup moins les transitions.

Enfin, on peut conclure des différentes simulations présentées qu'un corps noir est une bonne piste de source pour désexciter des atomes de Rydberg d'hydrogène. En effet, il y a une nette accélération de la dépopulation du niveau initialement peuplé, et cela s'accentue plus la température du corps noir augmente. Cependant, l'augmentation de la température a également pour effet l'augmentation du nombre d'atomes qui sont excités et photoionisés, donc bien que le processus soit plus rapide, moins d'atomes arrivent effectivement sur le niveau fondamental. Ces résultats viennent renforcer l'idée de trouver une source qui ne présente pas dans son spectre les fréquences nuisibles, ou de trouver un moyen de filtrer une source. En effet, on a vu qu'atténuer les longueurs d'onde responsables de l'ionisation rendait la cascade bien plus efficace et rapide. De plus, nous n'avons, jusqu'à présent, pas effectué les calculs des taux de transition en champs électrique et magnétique, qui aura pour effet de mélanger les états n, m (l ne sera alors plus un bon nombre quantique pour décrire les états). Ces travaux sont en cours, il faut réussir à calculer le dipôle de transition dans ce cas où les états sont mélangés.

Enfin, toutes ces premières intuitions, bien qu'appuyées par des calculs, ne peuvent actuellement pas être confrontées à l'expérience puisque l'antihydrogène n'est pas encore formé de façon pulsée au CERN (c'est le processus pulsé qui peuple les différents états de Rydberg). C'est pourquoi, pour vérifier la faisabilité de la technique et valider le code de calcul, on a mis au point au laboratoire Aimé Cotton l'expérience qui sera détaillée dans le chapitre suivant. 114

Chapitre 4 Expérience

Jusqu'à présent, nous avons présenté le projet de désexcitation d'atomes de Rydberg d'antihydrogène avec l'idée d'améliorer grâce à la technique envisagée, la quantité d'antihydrogène piégé. Cette technique repose sur une cascade de désexcitation des niveaux de n et lélevés grâce à des transitions caractérisées par $\Delta n=1$, assurées par une source externe dans le domaine THz. Cependant, il est important d'apporter une preuve de principe attestant de la faisabilité du processus. Ainsi, pendant ma thèse, nous avons, mon directeur de thèse D. Comparat, Emiliya Dimova, Zeudi Mazzotta et moi, mis au point un dispositif expérimental permettant de tester la méthode de désexcitation, et confirmer les attentes. On rappelle ici que nous avons travaillé non pas sur de l'antihydrogène ni même sur l'hydrogène, mais plutôt sur l'atome de césium. Ce choix se justifie par plusieurs éléments dont le fait que nous disposions déjà des lasers d'excitation pour cet élément, et le fait que les études théoriques menées en amont et en parallèle de l'expérimentation doivent permettre de déduire des résultats obtenus sur le césium des conclusions quand à la faisabilité sur l'antihydrogène. Nous allons ici décrire le dispositif expérimental développé, puis les premiers résultats obtenus. On décrit brièvement le principe de l'expérience imaginée. Un jet de césium issu d'un four effusif pénètre une chambre à vide. Au centre de l'enceinte, les lasers d'excitation permettent d'amener une grande partie des atomes sur un niveau de Rydberg bien choisi (par la longueur d'onde laser). Grâce à un dispositif électrostatique, les atomes de Rydberg sont alors ionisés en champ et les résidus (ions ou électrons) sont accélérés vers un détecteur de particules chargées. Pour valider l'idée de l'accélération de la désexcitation d'atomes de Rydberg vers le niveau fondamental grâce à une source externe de THz, une lampe a été placée dans la chambre. Il suffit de l'allumer ou l'éteindre pour en déterminer les effets.

Etudes préliminaires : Le corps noir comme source THz

On rappelle qu'un certain nombre de transitions est nécessaire pour désexciter tous les atomes de Rydberg vers un niveau intermédiaire qui se désexcitera rapidement par émission spontanée vers le niveau fondamental. Cela requiert donc un spectre dans la gamme 0.2 à 2 THz associé à une grande puissance. Le chapitre 3 nous a permis de poser des limites pour ces puissances, qui dans le cas d'un spectre large (analogie avec un corps noir) sont de l'ordre de quelques μ W/cm² en allant des petites fréquences (0.2 THz) aux grandes (2 THz).

L'objectif de cette section est double :

- Déterminer si les lampes sont de bonnes sources THz.
- Identifier des filtres dans les gammes de fréquences qui nous intéressent.

• Envisager leur intégration au dispositif expérimental final au CERN.

Le principal obstacle à surmonter est lié à la cavité où les atomes d'antihydogène sont produits. Celle-ci est cryogénique, ce qui implique donc :

- La source d'ondes THz doit être placée à l'extérieur de la cavité.
- Les ondes THz doivent être guidées à travers la cavité à 300 K, celle à 77 K, puis celle à 4 K pour atteindre les anti-atomes.
- La seule puissance nécessaire à la désexcitation doit être apportée au coeur de la cavité cryogénique, de façon à ne pas chauffer inutilement cette enceinte.

Dans un premier temps, et pour des raisons de simplicité, on va tout d'abord s'intéresser à la plus simple des sources continue : une lampe, qui semble appropriée d'après [63]. Et en particulier on a fait l'acquisition au laboratoire de trois lampes différentes, dont la taille de la zone d'émission varie. Leurs spectres sont présentés dans la figure 4.1. On peut noter que leurs puissances sont très différentes (75 W par exemple pour la lampe à mercure, 21 W pour la lampe à halogénure). Mais la grandeur la plus intéressante est l'exitance, donc le rapport Puissance/Surface, d'où l'importance de la taille de la zone d'émission. En effet, le faisceau sera transporté pour atteindre le nuage d'anti-atomes. Les dimensions du nuage sont millimétriques, alors si la zone d'émission d'une lampe est plus petite, en grossissant le faisceau, on perdra en rapport Puissance/Surface. Nous disposons des lampes suivantes :

- Une lampe à nitrure de silicium (Si₃N₄), figure 4.2a, qui est un matériau qui peut monter à très haute température (1200 ° C). Cette lampe mesure quelques centimètres, et la zone d'émission est un cylindre de diamètre 1.52 mm et de longueur 4.06 mm.
- Une lampe à arc de mercure, ScienceTech ST75, figure 4.2b, plus puissante qu'un simple corps noir. Son émission mélange celle de l'arc à 5000 K et celle de l'enveloppe en quartz à 1000 K. Le port de sortie de l'installation est de 1.27 cm de diamètre.
- Une lampe à halogénure métallique, Welch-Allyn M21N002, figure 4.2c, dont la zone d'émission est bien plus petite que la lampe à arc de mercure. Cette lampe mesure quelques centimètres mais la zone d'émission elle est longue de 1.27 mm.

4.1 Les tests des sources, détecteur et différents filtres

Nous disposons d'un détecteur avec une fonction de réponse en fonction de la longueur d'onde connue, de filtres dont la fonction de transmission en fonction de la longueur d'onde est aussi connue. Ce que nous ignorons c'est la puissance émise par les différentes lampes sur la même gamme de longueur d'onde. En première approximation nous allons considérer que les lampes se comportent en fonction de la fréquence comme des corps noirs aux températures données par la figure 4.1. Le but sera de vérifier cette hypothèse et d'en déduire une température équivalente sur le spectre d'intérêt entre 0.2 et 3 THz. Dans un second temps on va chercher comment focaliser au mieux cette lumière et tenter de préciser le spectre et la taille de spot en fonction de la longueur d'onde.



FIGURE 4.1 – Spectres des différents types de lampes dont nous disposons. a) Source dite "globar", type nitrure de silicium. b) Lampe à arc de mercure, semblable à la Sciencetech ST75. c)Lampe à halogénure métallique : Welch Allyn lamp no. M21N002, 21W. Figure tirée de [63].



(a) Source dite "globar", type nitrure de silicium, ASB- IR-18K. Taille \simeq cm.



(b) Lampe à arc de mercure, Sciencetech ST75. Taille $\simeq 10$ cm.



(c) Lampe à halogénure métallique : Welch Allyn lamp no. M21N002, 21W. Taille $\simeq 0.1$ cm.

FIGURE 4.2 – Sources THz, différents types de lampes.



FIGURE 4.3 – Courbe de réponse du détecteur GENTEC QS-THZ-BL interpolée.

4.1.1 Le détecteur pyroélectrique

Le détecteur que nous utilisons est un détecteur pyroélectrique GENTEC QS-THZ-BL, dont la surface efficace est 2×2 mm. Le matériau qui constitue le détecteur est un cristal dont les paramètres de maille vont varier lorsqu'il sera exposé à une lumière infra-rouge. Cette dilatation du matériau va provoquer une variation des moments dipolaires à l'intérieur du cristal et l'apparition d'une charge de surface. Lors du retour à l'équilibre, un courant sera alors mesurable. Un circuit électronique équivalent serait un circuit RC parallèle. Cependant, une fois le détecteur revenu à l'équilibre, même s'il est toujours éclairé par la source, sans modification de température, ou longueur d'onde, il ne réagira pas de nouveau. C'est pour cela qu'il faut appliquer en entrée un signal périodique, on utilisera donc un hacheur. Il est important de noter que la réponse de ce type de détecteur dépend de la fréquence d'opération mais reste constante sur une certaine gamme, typiquement de 10 Hz à plusieurs MHz, où on se placera donc pour faire les mesures.

Le détecteur est livré avec une courbe d'absorption en fonction de la longueur d'onde entre 0.25 μ m et 425 μ m que l'on extrapole sur le reste du domaine par une constante, comme préconisé par le constructeur. De plus, le détecteur est calibré par le fabriquant à 630 nm, ce qui nous permet de connaître la réponse du détecteur à ce point ci, à savoir 111 kV/W. Grâce à la courbe d'absorption et à la valeur de la réponse pour ce point on peut en déduire la courbe de réponse du détecteur sur tout le domaine qui nous intéresse par des relations de proportionnalité et une interpolation au premier ordre des points obtenus. Il est important de préciser que l'ordre d'interpolation est l'ordre 1 (les points sont reliés par des droites), car dans le cas contraire, la façon de lier les points n'est pas linéaire et de fausses oscillations dans la courbe sont créées. La fonction de réponse est donnée en figure 4.3.

Nous souhaitons tout de même vérifier la calibration du détecteur. Pour cela il suffit de faire la mesure pour une puissance et une longueur d'onde connues. Nous utilisons donc le laser infra-rouge à 852 nm pour effectuer ce test. Deux mesures à des puissances différentes et avec des méthodes différentes sont faites.

• Première méthode : La diode laser émet un faisceau continu à 852 nm avec une puissance de 590 μ W. On utilise un hacheur mécanique (figure 4.5) et nous obtenons un



FIGURE 4.4 – Vérification de la calibration du détecteur.



FIGURE 4.5 – Hacheur mécanique : roue mise en rotation par un moteur.

signal en dents de scie (figure 4.4a) d'amplitude 7 volts (pic à pic) avec un temps de montée de 7 ms.

Pour des temps courts comme ici, on peut approximer la valeur de la tension mesurée comme suit :

$$V(t) = cste \times P\frac{t}{T} \tag{4.1}$$

Où P est la puissance reçue et T la période du signal. On en déduit donc dans ce cas :

$$V(t) \simeq \frac{7V}{7ms} \times \frac{P_{recue}}{590\mu W} t \tag{4.2}$$

• Deuxième méthode : La diode laser émet un faisceau continu à 852 nm avec une puissance de 120 μ W. On coupe le faisceau manuellement, avec une fréquence bien plus basse qu'avec le hacheur mécanique. Le signal obtenu cette fois ressemble à une succession de croissances et décroissances exponentielles, comme on le voit sur la figure 4.4b.

On peut ici écrire :

$$V(t) = V_{max}(1 - e^{-\frac{t}{\tau}})$$
(4.3)

Où V_{max} est la valeur de la tension maximale si le signal n'était pas saturé (tangente à la courbe de croissance, avec le même temps de montée). On obtient en particulier $V_{max} = 45$ V pour un temps de montée de 200 ms. On se sert de ces valeurs pour écrire l'approximation suivante pour des temps courts à nouveau :

$$V(t) \simeq \frac{45V}{200ms} \times \frac{P_{recue}}{120\mu W} t \tag{4.4}$$

Maintenant, lorsqu'on compare les coefficients directeurs des deux droites V(t) dans les deux cas précédents, on trouve qu'ils sont très proches et nous en déduisons que notre compréhension de l'effet de la fréquence du signal sur les mesures de puissance est la bonne. De plus, le facteur $\frac{V_{max}}{P(852)}$ nous donne la réponse du détecteur à 852 nm, et on obtient environ 105 kV/W, qui, si l'on prend en compte les incertitudes de nos mesures, est proche de la valeur donnée par le constructeur qui est 110 kV/W.

4.1.2 Les filtres

Ici nous avons pour but de trouver des filtres qui nous permettent de sélectionner une partie du spectre des lampes et de vérifier l'impact sur la puissance mesurée. Cela se justifie par le fait que sur l'expérience AEgiS qui constitue la finalité de nos études, nous voudrions envoyer seulement la puissance strictement nécessaire pour effectuer les transitions, idéalement 10 mW maximum. L'enceinte utilisée étant cryogénique et refroidie à 4 K, il faut en effet minimiser l'énergie apportée. Ainsi l'objectif est de couper notamment tout le spectre visible et proche infra-rouge sans dégrader le spectre térahertz. En effet, la cavité au CERN étant cryogénique, on ne veut apporter que la puissance nécessaire pour accélérer les transitions. De plus, les spectres visible et proche infra-rouge contiennent des fréquences qui peuvent ioniser les atomes et rendre le processus global moins efficace. Différents matériaux et solutions peuvent être envisagés pour filtrer les fréquences indésirables, et nombre d'entre eux sont donnés en référence [63]. On citera notamment des filtres sous formes de grilles dont les dimensions sont bien choisies pour couper les très grandes longueurs d'ondes, et différents matériaux. Au laboratoire Aimé Cotton, nous avons étudié deux matériaux relativement répandus qui sont le PTFE et le HDPE, et dans un second temps, nous avons installé sur l'enceinte expérimentale au laboratoire des hublots de quartz et de TPX (Poly-4-methylpentene-1) que nous testerons ultérieurement, mais qui peuvent à la fois filtrer et servir de fenêtres étanches pour faire entrer la lumière THz dans l'enceinte. Nous décrirons ici les tests des deux matériaux HDPE et PTFE. La transmission de ces matériaux augmente avec la longueur d'onde et atténue ainsi le visible. On les décrit brièvement :

- Le polyéthylène haute densité (HDPE) : C'est un polymère, un plastique blanc légèrement élastique qui est souvent utilisé pour faire des emballages (lait, huile, cosmétiques, flacons de médicaments)très résistants.
- Le polytetrafluoroéthylène (PTFE ou Teflon) : C'est un matériau opaque, blanc et tendre. On l'utilise dans la vie courante pour des revêtements d'ustensiles de cuisine, ou pour faire l'étanchéité sur des dispositifs filetés (plomberie).

Ce dont nous avons besoin pour effectuer nos tests, ce sont des courbes de transmission de ces matériaux. Pour cela nous consultons les données mises à disposition par Tydex Optics.

1. HDPE

Les figures 4.6a, 4.7a et 4.8a présentent les courbes de transmission données pour un



FIGURE 4.6 – Comparaison des fonctions de transmission de HDPE 2 mm d'épaisseur entre les données Tydex en rouge, et notre interpolation en bleu sur la gamme 0-800 μ m.



FIGURE 4.7 – Comparaison des fonctions de transmission de HDPE 2 mm d'épaisseur entre les données Tydex en rouge, et notre interpolation en bleu sur la gamme 0-50 μ m.

échantillon de 2 mm d'épaisseur de HDPE sur tout le domaine THz entre 0 et 1000 μ m de longueur d'onde. La courbe rouge correspond aux données mises à disposition par Tydex.

Cependant les données qui ont permis de tracer ces courbes ne sont pas disponibles, si bien qu'il a fallu extraire graphiquement des points pour faire ensuite une interpolation (à nouveau une interpolation d'ordre 1, comme vu pour la courbe de réponse du détecteur) pour récupérer une fonction exploitable. On obtient les courbes bleues des figures 4.6b, 4.7b et 4.8b. L'interpolation semble très correcte et peut être utilisée. On a superposé sur la figure 4.9 les spectres de corps noir parfaits à 1000 K et 800 K. Entre 0 et 50 μ m de longueur d'onde, soient des fréquences au delà de 5 THz, il y a une grande partie du corps noir qui peut être à l'origine de transitions indésirables (excitation ou photoionisation). D'où la nécessité de trouver un bon matériau et une bonne épaisseur pour les filtres.



FIGURE 4.8 – Comparaison des fonctions de transmission de HDPE 2 mm d'épaisseur entre les données Tydex en rouge, et notre interpolation en bleu sur la gamme 0-50 μ m.



FIGURE 4.9 – Comparaison de la transmission du filtre HDPE 2 mm et de l'irradiance de corps noirs à 1000 K et 800 K dans la gamme 0-50 μ m (au delà de 5 THz). Les unités pour l'irradiance sont arbitraires, de façon à superposer les courbes et identifier où se situe le maximum.

123



FIGURE 4.10 – Comparaison des fonctions de transmission de PTFE 0.1 mm d'épaisseur entre les données Tydex en rouge, et notre interpolation en bleu sur la gamme 0-50 μ m.

Les figures 4.11a et 4.10a présentent les courbes de transmission données par Tydex pour un échantillon de 0.1 mm d'épaisseur de PTFE.

Tout comme pour le matériau précédent, il va falloir extraire graphiquement des points de ces courbes pour extrapoler une fonction de transmission en fonction de la longueur d'onde. On obtient les fonctions tracées en bleu sur les figures 4.11b et 4.10b. On ne compare l'interpolation que sur la zone de 0 à 100 μ m sur la figure 4.11, car le reste est constant et la rupture d'échelle complique la comparaison directement à l'oeil. A nouveau, on a tracé la figure 4.12 sur laquelle on superpose la transmission de l'échantillon de PTFE de 0.1 mm d'épaisseur avec les spectres des corps noirs à 1000 K et 800 K entre 0 et 50 μ m. On voit tout de suite qu'a priori, le HDPE coupe mieux le corps noir à ces longueurs d'onde que le PTFE.

Il faut maintenant déterminer l'épaisseur de l'échantillon utilisé, pour, comme on l'a écrit plus tôt, couper la plus grande partie possible du spectre du corps noir dans le visible sans trop atténuer le reste du spectre. En effet, les courbes concernent une épaisseur de 2 mm, mais nous pouvons en déduire la transmission pour différentes épaisseurs. Il va donc falloir calculer l'épaisseur de matériau nécessaire pour couper efficacement les fréquences indésirables, en conservant assez de puissance transmise sur le reste du spectre. On appliquera ce raisonnement pour chaque matériau, à savoir ici le PTFE et le HDPE.

Hors, il existe une relation qui lie la perte d'intensité d'un faisceau lumineux aux propriétés et à l'épaisseur du milieu que celui-ci traverse. Il s'agit de la loi de Beer-Lambert-Bouguer et cela nous permet d'écrire une fonction de transmission dépendante de la longueur d'onde pour un matériau comme :

$$Transmission(\lambda) = e^{-\alpha(\lambda)L} \tag{4.5}$$

Où le coefficient α est propre au matériau, et L l'épaisseur de l'échantillon. Ainsi, à partir de la courbe pour 2 mm on peut en déduire α puis les courbes pour n'importe quelle épaisseur, comme le montrent les figures 4.13 et 4.14. On précise que dans les calculs sont prises en compte les réflexions aux interfaces. Ainsi, on va également pouvoir déterminer l'épaisseur la plus adaptée pour filtrer les fréquences nécessaires.



FIGURE 4.11 – Comparaison des fonctions de transmission de PTFE 0.1 mm d'épaisseur entre les données Tydex en rouge, et notre interpolation en bleu sur la gamme $10-1000 \ \mu m$ ou $10-100 \ \mu m$ sur l'interpolation.



FIGURE 4.12 – Comparaison de la transmission du filtre PTFE 0.1 mm et de l'irradiance de corps noirs à 1000 K et 800 K dans la gamme 0-50 μ m. Les unités pour l'irradiance sont arbitraires, de façon à superposer les courbes et identifier où se situe le maximum.

125



FIGURE 4.13 – Comparaison des fonctions de transmission de HDPE pour différentes épaisseurs sur la gamme 0-200 μ m.



FIGURE 4.14 – Comparaison des fonctions de transmission de PTFE pour différentes épaisseurs sur la gamme 0-200 μ m.



FIGURE 4.15 – Comparaison du spectre du corps noir à 1000 K (courbe noire pointillée) et du même spectre filtré par 4.4 mm de HDPE (courbe bleue).

On a déjà remarqué que le matériau HDPE était a priori celui qui coupe le mieux les petites longueurs d'onde en dessous de 30 μ m. On va donc déterminer l'épaisseur nécessaire pour conserver tout de même 50 % de transmission sur les longueurs d'onde supérieures à 50 μ m. Par la formule (4.5), et on connaissant le coefficient α pour le HDPE (déterminé à partir de la courbe interpolée pour 2 mm d'épaisseur), on peut écrire :

$$L = -\frac{1}{\alpha(\lambda)} ln \left(\frac{Transmission(\lambda)}{T_{air \ HDPE} \times T_{HDPE \ air}} \right)$$
(4.6)

Où $T_{HDPE \ air}$ par exemple est le coefficient de transmission de l'HDPE vers l'air qui vaut 1.47 (pour le passage air vers HDPE, il vaut 0.62).

Pour $\lambda = 50 \mu m$, en souhaitent une transmission de 50 % à cette longueur d'onde, on obtient une épaisseur L de 4.4 mm. On compare donc le spectre d'un corps noir à 1000 K avec le spectre de ce même corps noir filtré par une épaisseur de 4.4 mm de HDPE. On obtient la figure 4.15, sur laquelle on se rend compte qu'il est effectivement possible de largement atténuer le spectre aux petites longueurs d'onde (figure 4.15a), sans trop modifier le spectre du corps noir aux grandes longueurs d'onde (entre 0.2 et 2 THz environ, voir figure 4.15b).

Nous avons donc maintenant caractérisé le détecteur et obtenu les courbes de transmission des différents filtres, pour finalement déterminer le matériau (parmi les deux disponibles au laboratoire) et son épaisseur pour filtrer efficacement le spectre d'un corps noir aux grandes fréquences ou petites longueurs d'onde (en dessous de 30 μ m où le corps noir est le plus puissant).

4.2 Etude d'un guide

L'objectif, à terme, est de placer la source à l'extérieure de l'enceinte cryogénique sur le dispositif présent au CERN. Il va donc falloir trouver un guide d'onde efficace dans le domaine des grandes longueurs d'onde. Une première solution pourrait être d'utiliser des miroirs



FIGURE 4.16 – Schéma de propagation de rayons dans un tube permettant le calcul de transmission du tube.

paraboliques, qui collimatent le faisceau sur une longueur qui dépend de la distance focale de ces miroirs. Cependant, l'utilisation de tubes permettrait d'isoler le faisceau térahertz de l'extérieur et de protéger ses propriétés. On pense tout d'abord à un simple tube dont on discutera des caractéristiques techniques plus tard.

4.2.1 Choix du guide

Pour guider les ondes dans la gamme de fréquence térahertz, la solution technique qui semble la plus simple (suggérée dans [63]) est un tube métallique dont le rapport lon-gueur/diamètre est bien choisi (et dépend des conditions expérimentales également). Nous avons donc trois paramètres à prendre en compte et à étudier :

- La longueur et le diamètre du tube.
- Le matériau dont est fait le tube.
- L'état de surface du tube.

Le dernier critère est le plus simple à remplir. On rappelle que pour un miroir par exemple, l'état de surface est qualifié de bon, et donc ne dégrade pas la qualité du faisceau, si la taille des défauts est inférieure au dixième de la longueur d'onde incidente (critère " $\lambda/10$ "). Dans notre cas, les ondes sont millimétriques, donc les défauts doivent mesurer moins de 0.1 mm. Ce critère est simple à évaluer et usuellement rempli puisqu'il suffit que nous ne puissions pas voir les défauts à l'œil nu.

Intuitivement nous pensons que longueur et diamètre du tube sont liés l'un à l'autre, et que la longueur risque d'être fixée par la topologie de la salle d'expérience et ne sera donc pas un paramètre libre. Intéressons nous d'abord au matériau.

Le modèle qui va être utilisé est celui proposé par l'article [64] et est le suivant :

Un rayon de longueur d'onde λ entre dans le tube avec un angle α et subit ensuite une suite de réflexions jusqu'à la sortie, comme sur la figure 4.16. La trajectoire du rayon dans le tube et le nombre de réflexions peuvent être calculés géométriquement pour chaque angle d'incidence α . Pour obtenir la transmission T, il suffit de calculer les pertes induites par chacune des réflexions et d'intégrer cela entre les angles d'incidence maximum qui permettent au rayon de pénétrer le tube. Il s'agit de la formule (4) de l'article [64] :

$$T = (2/\alpha_m^2) \int_0^{\alpha_m} \alpha R(\alpha) d\alpha$$
(4.7)

Où α_m est l'angle maximal considéré, et la fonction $R(\alpha)$ est le coefficient de réflexion qui dépend de l'angle α . Cette formule permet d'arriver à une expression simple du facteur de

transmission qui dépend des dimensions du tube, de la longueur d'onde incidente, et du matériau au travers de sa résistivité. Quelques années plus tard, en 1996, un autre groupe s'est intéressé à cette question et on repris les mêmes calculs qui aboutissent à l'article [65]. Le modèle utilisé est le même, mais les chercheurs déterminent que les dépendances de la transmission en fonction des différentes polarisations (parallèle et orthogonale au plan d'incidence) se compensent. Une formule plus simple de la transmission est alors donnée. Nous avons souhaité comparer les deux formules pour voir à quel point elles diffèrent, et pouvoir en tirer des conclusions quant au matériau à choisir pour le tube. L'équation (4.7) issue de l'article [64] devient après calcul la formule suivante :

$$T = \frac{1}{2}e^{-2q} + (1 - e^{-q/2F^2})\frac{F^2}{q}$$
(4.8)

Où $q = \frac{L}{D} \sqrt{\frac{4\pi\epsilon_0 c\rho}{\lambda}}$ avec ρ la résistivité électrique du matériau, L et D respectivement la longueur et le diamètre du tube, F est l'ouverture du dispositif. La formule du second article, [65] s'écrit avec les grandeurs précédentes :

$$T \simeq e^{-q} \tag{4.9}$$

On remarque en particulier que la transmission du tube va dépendre, outre de ses dimensions, de sa résistivité électrique. On présente dans le tableau 4.1 les valeurs de résistivité électrique de différents matériaux à une température de 300 K, qui, pour les métaux, décroît quand la température baisse.

Matériau	Résistivité à 300 K (Ω m)
Cuivre	$1.68 \ 10^{-8}$
Or	$2.2 \ 10^{-8}$
Aluminium	$2.65 \ 10^{-8}$
Laiton	$7.1 \ 10^{-8}$
Fer	$9.71 \ 10^{-8}$
Platine	$1.06 \ 10^{-7}$

TABLE 4.1 – Résistivités en $(\Omega \ m)$ à 300 K de différents matériaux.

Pour un tube de 123 cm de longueur et de 2.5 cm de diamètre on obtient la figure 4.17. Ces dimensions apparaissent dans l'article [65], on peut donc ici vérifier par la même occasion la concordance des calculs entre les articles et ce que l'on a retranscrit.

On remarquera que le cuivre, sur la gamme de fréquences térahertz qui nous intéresse, offre plus de 90 % de transmission sur une distance de 123 cm (longueur étudiée dans les articles cités). En effet, le cuivre a, parmi les matériaux cités dans le tableau 4.1, la plus petite résistivité électrique. Il "conduira" donc mieux les ondes THz. On peut ajouter également que sur l'expérience AEgIS au CERN, le tube se trouvera dans un environnement cryogénique, passant de 300 K à 4 K, ce qui ne fera qu'améliorer ses propriétés de conduction. De plus, le cuivre est très facile à trouver, donc sera un bon outil pour effectuer les premiers tests. On va donc utiliser ensuite un tube de cuivre, et celui dont nous disposons est long de 29.7 cm et son diamètre interne est de 22 mm (figure 4.20). Pour ce tube on peut alors aussi tracer sa transmission en fonction de la fréquence et on obtient la figure 4.18. Ce tube transmet donc en théorie plus de 96 % du faisceau incident sur la gamme 0.1-3 THz à température ambiante.



FIGURE 4.17 – Transmission d'un tube L = 123 cm, D = 2.5 cm pour trois matériaux : Laiton, Cuivre et Aluminium avec deux formules différentes : 1 : (4.8) de l'article [64], 2 : (4.9) de l'article [65].



FIGURE 4.18 – Transmission d'un tube L = 29.7 cm, D = 22 mm en cuivre avec deux formules différentes : 1 : (4.8) de l'article [64], 2 : (4.9) de l'article [65].

4.2.2 La collimation des faisceaux des lampes

On cherche ici à savoir quels sont les profils transverses des lampes dont nous disposons, et quelle est leur divergence, pour déterminer la valeur ajoutée d'un tube. On veut déterminer le waist typique d'une lampe, et en particulier le comparer à un faisceau gaussien.

Dans un premier temps, on va mesurer le profil d'intensité de chacune des lampes et déterminer si son comportement varie avec la distance.

Pour cela, on place le détecteur sur une platine de translation dont on choisit l'axe en fonction du waist à mesurer, en face de la lampe qui elle est fixe sur la table optique. On mesure ensuite la tension donnée par le détecteur pour différentes positions sur le rail. Pour un faisceau gaussien, sa puissance varie en fonction des directions x, y et de la direction z (sens de propagation) selon l'équation :

$$P(r,z) = P_0 \left[1 - e^{-2r^2/w^2(z)} \right]$$
(4.10)

Où P_0 est la puissance totale transmise par le faisceau.

Pour plus de simplicité, on effectue les mesures dans le plan (x,z) et donc y = 0. Cela revient à écrire r = x et l'équation précédente devient :

$$P(x,z) = P_0 \left[1 - e^{-2x^2/w^2(z)} \right]$$
(4.11)

Le dispositif est présenté sur les figures 4.19 : la lampe ASB-IR-12K est disposée à gauche de l'image et le détecteur à droite sur un rail de translation, et 4.20, le tube de cuivre placé entre la lampe et le détecteur. Dans un premier temps on effectue la mesure sans le tube, mais à la même position que celle que l'on fera ensuite avec le tube de cuivre. De façon pratique, on place le détecteur (on coupe le faisceau à la main) à une position z_1 sur l'axe z, et on mesure sa réponse en volts pour différentes positions sur l'axe horizontal x. On réitère ce protocole pour différentes positions z_2 , z_3 etc... Ensuite, pour chaque jeu de données correspondant à chaque position en z on ajuste la courbe qui donne la tension mesurée par le détecteur en fonction de la position x par une fonction du type $Ae^{-B(x-C)^2}$, pour ensuite identifier les constantes A, B et C grâce à l'équation (4.11). Les résultats d'une mesure à la distance z=17 cm pour la lampe ASB-IR-12K sont présentés sur la figure 4.21. Ainsi, pour chaque ajustement, on voit non seulement si les données correspondent à l'hypothèse d'un faisceau gaussien, mais aussi on obtient un profil d'intensité du faisceau pour chaque position et on peut reconstruire la courbe qui donne la largeur de ce profil en fonction de l'ordonnée z.

Après avoir effectué cette mesure à différentes distances z entre le détecteur et la lampe, on peut tracer une courbe (figure 4.22) qui donne l'évolution du waist du faisceau en fonction de cette distance z. On peut voir qu'on obtient globalement deux droites (une courbe avec filtre, une courbe sans filtre), ce qui confirme l'hypothèse du faisceau gaussien. En effet, le waist d'un faisceau gaussien évolue avec l'ordonnée z suivant l'expression :

$$w(z) = w_0 \sqrt{1 + \left(\frac{\lambda z}{\pi w_0^2}\right)^2} \tag{4.12}$$

Qui, pour de grandes distances varie linéairement avec la distance z:

$$w(z) \simeq \frac{\lambda z}{\pi w_0^2} \tag{4.13}$$



FIGURE 4.19 – Dispositif expérimental pour la mesure du waist de la lampe ASB-IR-12K.



FIGURE 4.20 – Dispositif expérimental pour la mesure du waist de la lampe ASB-IR-12K avec tube de cuivre.



FIGURE 4.21 – Réponse du détecteur à la lampe ASB-IR-12K alimentée à 2.5 V et 0.75 A, sans filtre, à la position z=17 cm et ajustement selon une gaussienne.



FIGURE 4.22 – Comparaison du waist du faisceau de la lampe ASB-IR-12K sans et avec l'utilisation du guide de cuivre.



FIGURE 4.23 – Comparaison des waists des faisceaux des lampes mercure et Welch Allyn avec le guide de cuivre (les droites sont des ajustements linéaires des waists en fonction de la distance entre le tube et le détecteur, les points représentent les données expérimentales).

On effectue maintenant exactement les mêmes opérations en glissant un tube de cuivre de longueur 29.7 cm et de diamètre interne 22 mm. On résume ces résultats dans la figure 4.22. Que ce soit avec le tube interposé entre le détecteur et la lampe ou non, la distance z représente toujours la distance entre la lampe et le détecteur.

On déduit de cette figure que le tube de cuivre permet de transporter le faisceau sans en modifier la divergence (les pentes des droites sont les mêmes sans le tube et après celuici quand il est présent, figure 4.22). Il faudra également quantifier les pertes de puissance induites par le tube de cuivre. Nous pouvons effectuer les mesures de waist avec le tube avec deux des lampes dont nous disposons. On obtient alors la figure 4.23. Les pentes des deux droites sont les mêmes, il n'y a que l'ordonnée à l'origine qui varie, et cette variation est certainement due à des incertitudes (de l'ordre du cm) dans les mesures des distances. Le tube conserve bien la divergence de la source, quelle que soit la source.

Enfin, il est possible d'effectuer une dernière mesure pour confirmer l'hypothèse que les faisceaux des lampes sont gaussiens, il s'agit de mesurer l'évolution de la puissance en fonction de la distance entre le source et le détecteur. Cela revient directement à étudier l'évolution de la tension donnée par le détecteur en fonction de la distance.

Pour cela on va utiliser l'expression de l'intensité du faisceau en fonction des coordonnées x,y et z (direction de propagation) :

$$I = \frac{2P_0}{\pi w^2} e^{-2r/w^2} \tag{4.14}$$



FIGURE 4.24 – Réponse du détecteur à la lampe ASB-IR-12K (alimentée à 2.5 V et 0.75 A) en fonction de l'ordonnée z, sans filtre, à la position x=0 cm et ajustement selon une fonction de type $1/z^2$.

D'après la formule (4.13), on peut réécrire, pour les z grands, l'expression de l'intensité :

$$I = \frac{2P_0 w_0^2}{\pi \lambda^2 (z - z_0)^2} \tag{4.15}$$

Ainsi, pour vérifier notre hypothèse d'un faisceau gaussien, on va, sur l'axe (0,0,z), mesurer la tension de réponse du détecteur en fonction de la distance z entre le détecteur et la lampe. Pour la lampe ASB-IR-12K, on obtient la figure 4.24. On ajuste la courbe expérimentale par une fonction du type $1/z^2$.

On voit qu'il y a une bonne correspondance entre la courbe et son ajustement. On peut donc en déduire, qu'a priori le faisceau de la lampe peut, en première approximation, être considéré comme gaussien. On peut ajouter à cette première conclusion que l'utilisation d'un tube permet de collimater le faisceau et de réduire sa divergence sur une grande longueur (bien sûr le faisceau divergera à nouveau en sortie). On va maintenant s'intéresser à l'efficacité de transmission du tube en fonction des ses caractéristiques (dimensions, matériau).

Vérification de la transmission du guide

Nous aimerions vérifier l'efficacité de transport du tube expérimentalement. Puisque nous connaissons la courbe qui donne la tension de réponse du détecteur en fonction de la distance détecteur/lampe en l'absence du tube ou avec celui-ci, nous pouvons comparer ces jeux de données. Le tube mesurant environ 30 cm de long, on va donc comparer la tension donnée par le détecteur 20 cm après le tube (soit environ 50 cm entre la lampe et le détecteur, voir figure 4.25), et celle donnée 20 cm après la lampe quand il n'y a pas de tube. En faisant ces calculs sur les données expérimentales, on obtient une transmission du tube de 94.5 %, ce qui est en bon accord avec la courbe tracée en figure 4.18.

4.2.3 Mesures de puissance

Nous avons maintenant caractérisé les lampes et tubes dont nous disposons. Il reste maintenant à déterminer la puissance effectivement reçue par le détecteur, et en particulier nous assurer de l'effet des filtres (HDPE et PTFE) que nous avons présenté. L'idée initiale ici est d'allumer une lampe face au détecteur en interposant différents filtres et un tube de cuivre



FIGURE 4.25 – Configurations utilisées pour la mesure de transmission du tube. a) Mesure du signal à 20 cm de la lampe sans tube. b) Mesure du signal 20 cm après le tube.

entre ces deux éléments, afin de déterminer quelle est la puissance effectivement reçue par le détecteur. Afin de caractériser cet effet, nous avons théoriquement remplacé la lampe par un corps noir parfait et nous calculons sa température pour obtenir cette même puissance. La difficulté va résider dans le fait que les spectres des différentes sources sont très larges et il est donc impossible de savoir quelle est la contribution de puissance de chacune des longueurs d'onde du spectre, car nous ne disposons pas de spectromètre dans la gamme THz. Il va falloir raisonner avec des intégrales sur tout le spectre.

Ce que nous allons mesurer, c'est une tension donnée par le détecteur. Un paramètre important est la constante de temps de réponse de celui-ci. Nous avons pu la déterminer lors des tests de calibration du détecteur lorsque le signal était haché à la main. Le temps de croissance était de 200 ms, l'amplitude du signal effectivement mesuré était 12.5 V tandis que l'amplitude maximale était 45 V. On en déduit pour la constante de temps τ la valeur suivante : $\tau = 200ms \times \frac{12.5V}{45V}$, c'est-à-dire $\tau = 55$ ms.

On peut écrire, pour la tension donnée par le détecteur (en réalité nous avons déjà utilisé cette formule, voir l'équation (4.4)) :

$$\frac{dV}{dt} = \frac{1}{\tau} \int_0^{+\infty} PuissanceRecue(\lambda) \times ReponseDetecteur(\lambda)d\lambda$$
(4.16)

On doit donc déterminer la puissance reçue par le détecteur.

Dans un premier temps on sait que la puissance reçue est la puissance émise par la lampe atténuée par la présence du filtre. On écrit donc :

$$PuissanceRecue(\lambda) = TransmissionFiltre(\lambda) \times TransmissionTube(\lambda) \times PuissanceEmise(\lambda)$$

$$(4.17)$$

Les deux premières fonctions, la transmission du filtre et la transmission du tube, sont connues (numériquement ou analytiquement), il reste à déterminer la puissance émise. Pour



(a) Exemple d'un spectre en fréquence de lampe.

(b) Même spectre filtré par un filtre de fonction $T(\nu)$.

FIGURE 4.26 – Exemple de spectre en fréquence de lampe (a), puis le même spectre filtré (b). Les longueurs d'onde en rouge et en noir correspondent aux transitions respectivement 40 vers 39 et 15 vers 14 de l'hydrogène.

cela, on va considérer que chacune des lampes émet à la façon d'un corps noir à une certaine température effective notée T.

Par définition, la puissance est le produit de l'intensité par la surface. D'où : $P(\lambda) = I(\lambda) \times S_{detecteur}$. La surface du détecteur est l'une de ses caractéristiques et est fournie dans la documentation, ici elle est de 4 mm² (surface carrée de dimension 2 mm). De plus, on a vu au paragraphe 3.3.2 que l'excitance du corps noir s'écrit (en W/m³) :

$$I(\lambda) = \frac{2h\pi c^2}{\lambda^5} \frac{1}{e^{\frac{hc}{\lambda kT}} - 1}$$

$$(4.18)$$

Il suffit alors de trouver la température T qui vérifie l'équation (4.16) (pour les calculs numériques, du fait de la fonction de transmission du filtre qui n'est pas connue analytiquement, on intègrera sur la gamme de longueur d'onde de 0 à 20 mm).

Pour illustrer ce raisonnement, on présente un spectre en fréquence potentiel de la lampe utilisée, figure 4.26a. On ne discute pas ici de l'existence d'un tel spectre, on veut simplement montrer qu'il diffère du corps noir et peut éventuellement présenter des singularités. Ce spectre, une fois filtré par un matériau de fonction de transmission $T(\nu)$, devient le spectre de la figure 4.26b. Le détecteur, lui, reçoit donc la puissance de ce spectre filtré.

En faisant l'approximation que le spectre incident sur le détecteur est le même qu'un celui d'un corps noir à une certaine température T, alors, le détecteur donne la puissance intégrée sur ce spectre, et nous pouvons donc retrouver la température du corps noir qui donne la même puissance intégrée. De cette façon, on obtient alors la température effective donnée en rouge dans le tableau 4.2. Comme on a déjà vu que l'intensité des lampes en fonction de la distance z était décroissante en (1/z), on en déduit, d'après l'évolution des données du tableau 4.2 avec la distance, que la lampe Welch-Allyn filtrée par 70 μ m de HDPE est équivalente (en puissance intégrée) à un corps noir à environ 1200 K. La même lampe filtrée par 0.9 mm de HDPE, sera équivalente à un corps noir d'une température environ égale à 1000 K. Les températures bleues, elles, donnent alors la température du corps noir qui, une

Distance Filtre	170 mm	120 mm	94 mm	$63 \mathrm{mm}$	57 mm	21 mm
HDPE 0.9 mm	688 K 505.6 K	792 K 579.6 K		1022 K 754.5 K		
HDPE 70 μm			569 K 584 K		794 K 750 K	1018 K 964 K

fois filtré, présente la même puissance intégrée que le corps noir à la température rouge.

TABLE 4.2 – Températures d'un corps noir effectif (avec filtre en bleu clair, sans filtre en rose clair) pour la lampe Welch Allyn et différents filtres.

De ce tableau nous pouvons conclure que les lampes se comportent essentiellement comme des corps noirs, mais surtout que nous parvenons à transporter suffisamment de puissance grâce au tube pour ensuite effectuer les transitions atomiques voulues. Les valeurs obtenues dans ce tableau nous confortent également dans la compréhension de notre dispositif et notre capacité à calculer les puissances reçues par le nuage atomique par la suite.

On parle ici bien sûr à chaque fois de puissance intégrée. Sur la figure 4.27, on représente le spectre en fréquence d'un corps noir à 1000 K filtré par 0.9 mm de HDPE. On représente les courtes longueurs d'onde sur la figure 4.27a et on zoom l'échelle verticale pour voir le reste du spectre aux grandes longueurs d'onde sur la figure 4.27b. On peut voir les deux transitions dont les fréquences marquent le domaine que nous souhaitons couvrir avec une lampe. On peut calculer la puissance délivrée par le corps noir à 1000 K filtré de la figure 4.27 sur une largeur de 2 THz autour des fréquences des deux transitions (pour une première comparaison approximative) et comparer avec le corps noir non filtré. On obtient le tableau 4.3.

	Transition $15 \rightarrow 14$	Transition $40 \rightarrow 39$
Corps noir 1000 K filtré	$0.77 \mathrm{~mW/cm^2}$	0.04 mW/cm^2
Corps noir 1000 K non filtré	$0.90 \mathrm{~mW/cm^2}$	$0.07 \mathrm{~mW/cm^2}$

TABLE 4.3 – Puissances délivrée par des corps noirs à 1000 K filtré par HDPE de 0.9 mm d'épaisseur et non filtré sur une largeur de 2 THz autour des deux transitions limites $15 \rightarrow 14$ à 2.16 THz, et Transition $40 \rightarrow 39$ à 0.1 THz.

Or, on avait vu au chapitre 3 (figures 3.6 et 3.7), qu'avec une source de 2 THz de large, une puissance de quelques μ W/cm² était nécessaire pour effectuer efficacement la transition 40 vers 39, et 0.4 mW/cm² pour assurer efficacement la transition 15 vers 14. Ainsi, un corps noir à 1000 K délivre a priori la puissance nécessaire pour assurer la cascade de désexcitation. Cependant, nous savons que les lampes utilisées ne sont pas de réels corps noirs, et que leur spectre (ainsi que leur focalisation) est donc différent.

Nous avons aussi testé la lampe qui a permis d'obtenir les premiers résultats expérimentaux de désexcitation d'atomes de Rydberg de césium, la lampe ASB-IR-18K, de la même manière que la Welch-Allyn. Les caractéristiques techniques de cette lampe sont disponibles et les grandeurs d'intérêt apparaissent dans la figure 4.28a. On peut alors comparer ces données de calibration de la lampe avec les températures de corps noir équivalent déterminées pour cette même lampe pour différentes distances. On obtient la figure 4.28b. On peut ainsi dire qu'à une distance de 63 mm entre la source et le détecteur (donc le nuage d'anti-atomes) la quasi-totalité de la puissance de la lampe atteint le détecteur ou le nuage. On ajoute également que cette température, aux environs de 1000 K, correspond également à ce qui était



(a) Gamme 0 à 50 μm soit au delà de 6 THz. (b) Gamme 0 à 3000 μm, soit au delà de 0.1 THz.

FIGURE 4.27 – Spectre en fréquence d'un corps noir à 1000 K filtré par 0.9 mm de HDPE. Sur le spectre le plus large de 0 à 3000 μ m, on fait apparaître les fréquences des transitions 40 vers 39 (noir) et 15 vers 14 (rouge) de l'hydrogène.

donné par la figure 4.1 pour une source de type nitrure de silicium (a) (dont fait partie la lampe ASB-IR-18K), tirée de [63].

4.2.4 Conclusions

Toutes les mesures décrites dans cette partie nous ont permis de vérifier différents points cruciaux pour la réalisation de l'expérience finale au CERN :

- Les sources type "lampes" que nous avons utilisées permettent d'apporter à une zone de quelques millimètres carrés la puissance d'un corps noir d'environ 500 K à 1000 K (voir tableau 4.2).
- Il est possible, grâce à des filtres, de s'affranchir d'une partie du spectre indésirable des sources, notamment la partie visible pour des longueurs d'onde inférieures à 30 μm , zone dans laquelle un corps noir à 1000 K émet beaucoup de puissance indésirable à cause des transitions induites par ces fréquences. En effet, aux courtes longueurs d'onde, entre 9 et 150 μ m, on a vu au chapitre 3 que le corps noir était responsable de photoionisation des niveaux n autour de 40. Cette ionisation est à l'origine de disparition d'atomes et réduit ainsi l'efficacité de la désexcitation. De plus, cette partie du spectre ($\lambda < 30 \ \mu$ m) d'un corps noir est la plus énergétique, et contribue l'échauffement de l'enceinte. Les longueurs d'onde dont on a besoin pour effectuer la cascade de désexcitation sont dans la gamme de 100 à 1500 μ m (0.2 à un peu plus de 2 THz).
- Il est possible de guider des ondes dans la gamme de fréquences des térahertz tout en conservant suffisamment de puissance de la source. En particulier, on peut transporter environ 96 % de la puissance d'une lampe sur plusieurs dizaines de centimètres à l'aide d'un tube de cuivre, préféré aux miroirs paraboliques (faisceau se propageant dans l'air).

Temperature vs Voltage



(a) Température de la lampe ASB-IR-18K en fonction de sa tension d'alimentation (données constructeur).



(b) Températures équivalentes de corps noirs obtenues expérimentalement pour la lampe ASB IR 18K, superposées avec la température théorique de la lampe (données tirées des informations constructeur).

FIGURE 4.28 – Comparaison de la température de lampe attendue avec la température d'un corps noir équivalent dont la puissance est celle reçue par le détecteur, pour deux distances : 63 mm et 100 mm, en fonction de la tension d'alimentation de la lampe.

- Dans cette gamme, le cuivre a des propriétés de transport de faisceau tout à fait satisfaisantes.
- Par les calculs que nous avons effectué il est possible de prédire, en fonction du type de source utilisé, des formes et dimensions des guides, de la nature des matériaux filtres, la puissance effectivement reçue par les atomes du nuage au coeur de l'enceinte cryogénique.
- Malgré tout, des tests d'autres matériaux, et d'autres lampes (Sciencetech) semblent nécessaires pour affirmer que ce type de source est efficace pour la désexcitation d'atomes de Rydberg d'hydrogène (et donc d'antihydrogène).

4.3 Dispositif expérimental

Le dispositif expérimental que nous avons mis au point au Laboratoire Aimé Cotton vise à prouver la faisabilité de la technique de désexcitation d'atomes de Rydberg par une source THz. On rappelle ici que nous travaillerons sur des atomes de césium, pour lesquels nous disposons des lasers d'excitation (continue ou pulsée), dont le comportement est proche de celui de l'hydrogène puisqu'il appartient à la famille des alcalins (voir Chapitre 1). Un article de 1979 [66] présentait une méthode expérimentale de détection d'infra-rouge grâce à des atomes de Rydberg de sodium (alcalin aussi). Cette méthode fonctionne exactement sur le même principe que ce que nous voulons réaliser ici, mais en sens inverse. En effet, dans [66], l'état de Rydberg peuplé est bien connu, et les modifications de populations de l'ensemble des niveaux permet de remonter au spectre infra-rouge environnant. Dans notre cas, les états de Rydberg peuplés seront mal connus, mais le spectre THz (infra-rouge très lointain) lui est bien déterminé pour modifier précisément les populations des niveaux atomiques. Nous allons ici présenter rapidement le dispositif expérimental décrit dans [66] à partir duquel est inspiré celui utilisé dans notre contexte.



FIGURE 4.29 – Signal de résonance de la transition 26s-27p du sodium à la longueur d'onde 496 µm. Le laser a été atténué pour ne pas élargir la transition. Une largeur de 1 MHz est mesurée sur ce signal de résonance. Figure issue de [66].

4.3.1 Détection d'infra-rouge grâce aux atomes de Rydberg

Dans le dispositif utilisé dans la méthode décrite par [66], les atomes de sodium sont excités sur le niveau 26*s* par deux lasers pulsés avec un taux de répétition de 10 Hz. Les impulsions délivrent 5 kW de puissance sur une durée de 5 ns, et leur spectre est large de 0.2 cm⁻¹, soit 6 GHz environ. La source infra-rouge est un laser continu CO₂ focalisé sur une région de 1 cm de diamètre. Pour l'étude des populations des niveaux atomiques, un champ électrique de 0.9 kV/cm est appliqué entre deux plaques de cuivre et permet de ioniser les atomes présents sur le niveau 27*p*. Les électrons sont ensuite détectés par un multiplicateur d'électrons, ancêtre des galettes de micro-canaux (amplification par émission secondaire d'électrons). Un signal de résonance de la transition 26s-27p du sodium à la longueur d'onde 496 μ m est observé, figure 4.29, aux alentours de 27 V/cm de champ électrique.

L'intensité de la source infra-rouge est alors déterminée grâce à la largeur de la résonance observée par la formule :

$$\Delta \nu_{FWHM} = \frac{d}{\pi h} \sqrt{\frac{4\pi}{c}I} \tag{4.19}$$

Où d est le dipôle de la transition, I l'intensité de la source et $\Delta \nu$ la largeur mesurée. La valeur ainsi obtenue est comparée avec la valeur de l'intensité mesurée par un détecteur pyroélectrique, et les résultats sont en bon accord. Ainsi, cette expérience confirme le lien entre transitions atomiques et source infra-rouge au sein des atomes de Rydberg alcalins, et que l'un peut être utilisé pour sonder l'autre.

En s'inspirant de cette expérience, on va maintenant décrire le dispositif expérimental de désexcitation d'atomes de Rydberg par une source THz, dont le principe général est le suivant :

- 1. La formation du jet d'atomes de césium par un four.
- 2. L'excitation des atomes sur un niveau de Rydberg.



FIGURE 4.30 – Schéma d'excitation du césium de l'état fondamental vers un état de Rydberg nS ou nD en deux étapes.

- 3. La désexcitation des atomes par une lampe.
- 4. L'application d'un champ électrique pour ioniser le niveau de Rydberg d'intérêt (celui dont on veut étudier la population).
- 5. La détection des ions ou électrons créés.

4.3.2 Excitation du césium par laser

Pour tester l'idée d'une désexcitation d'atomes de Rydberg par une lumière externe, il faut dans un premier temps reproduire autant que possible les conditions de l'expérience AEgIS au CERN. Puisqu'il s'agit ici d'une démonstration de faisabilité, nous nous contenterons d'un contexte un peu plus simple que la cas réel. En effet, sur l'expérience avec l'antihydrogène, celui-ci est produit sur de nombreux états de Rydberg différents, mais aussi avec de grands moments angulaires. Dans notre cas, nous exciterons les atomes de césium sur un état de Rydberg à la fois seulement, et avec un faible moment angulaire, cela facilitant le schéma laser nécessaire. Deux étapes seront nécessaires pour amener un atome de césium de son état fondamental à un état de Rydberg, comme le montre la figure 4.30. Une transition en une seule étape demanderait une longueur d'onde de laser difficile à trouver et beaucoup de puissance.

Premier étage : transition 6s-6p

L'état fondamental de l'atome de césium est le niveau 6s, pour ne parler que des nombres quantiques n et l. Les règles de sélection dipolaires nous disent alors qu'à partir de ce niveau 6s, seuls des transitions vers des niveaux np peuvent être envisagées. Ici nous considérons donc la transition 6s-6p du césium. En réalité il faut entrer encore plus dans le détail des niveaux atomiques pour trouver quelle est la transition qui nous intéresse vraiment. On regarde donc la figure 4.31 tirée de [67]. Sur ce schéma, la transition à adresser est : F=4 vers F'=5 dont la longueur d'onde dans le vide est 852.356 nm.

Pour effectuer cette transition, nous utilisons une diode laser dont la longueur d'onde de fonctionnement est aux alentours de 852 nm. On peut régler cette longueur d'onde en modifiant la température et/ou le courant de fonctionnement de la diode. On s'assure que la valeur de la longueur d'onde correspond à la bonne transition et qu'elle est stable par un montage d'asservissement en fréquence (ou longueur d'onde) grâce à un schéma d'absorption saturée. On gardera la température stable, ni trop basse, ni trop élevée grâce à un montage PID (Proportionnel, Intégrateur, Dérivateur). Peu de puissance est nécessaire pour assurer la transition, et nous utiliserons en général une fraction de quelques dizaines de mW sur la centaine que la diode peut délivrer.

Deuxième étage : transition 6p-ns ou nd

La seconde étape de l'excitation permettra d'adresser le niveau de Rydberg de notre choix. Ici encore cependant les règles de sélection dipolaires vont restreindre le choix, et à partir d'un niveau p, seuls des niveaux s ou d seront accessibles. Pour réaliser la transition voulue, dont la longueur d'onde correspond environ à 510 nm pour des niveaux n=30 en moyenne, il faut beaucoup de puissance. Nous utiliserons donc un oscillateur paramétrique optique pulsé, accordable en longueur d'onde entre 490 nm et 520 nm environ. Il s'agit d'un OPO pompé par un laser Nd :YAG de la marque Continuum, dans la série PowerLite DLS 8000. On peut obtenir un faisceau pulsé à un taux de répétition de 10 Hz dont les impulsions sont de 6 à 8 ns de durée et d'énergie de l'ordre de 20 mJ.

4.3.3 Enceinte expérimentale

Pour la réalisation des différentes étapes expérimentales, on utilise une chambre à vide, présentée sur les figures 4.32a et 4.32b. Les faisceaux lasers nécessaires à l'excitation entrent dans l'enceinte par un hublot sur le dessus de l'enceinte. Les deux faisceaux se croisent entre les grilles qui apparaissent au centre des figures. C'est là que passe le jet d'atomes de césium (trait bleu sur la vue en trois dimensions de la figure 4.32a, et selon l'axe du tube fin de bas en haut de la figure 4.32b). Les grilles sont constituées d'un cadre en cuivre sur lequel on a fixé une grille très fine en cuivre également, sur laquelle on applique une tension bien choisie pour que sous l'influence du gradient de champ entre les deux grilles, les atomes de Rydberg se ionisent et les particules chargées formées sont extraites. A droite des grilles sur la figure 4.32b, on trouve la lampe que l'on utilise actuellement pour la désexcitation : de type nitrure de Silicium, modèle ASB-IR-18K. A sa place sur la figure 4.32a, on peut voir un tube qui permettrait de guider le faisceau d'une lampe située à l'extérieur de l'enceinte, c'est une solution envisagée pour transposer l'expérience au CERN. On va maintenant détailler l'acquisition des données.

4.3.4 Ionisation et détection des ions Cs+

Maintenant que les atomes sont excités sur des états de Rydberg, on s'intéresse à la façon dont on va étudier les populations des différents niveaux. Pour cela, on voudrait ioniser indépendamment les différents niveaux atomiques par champ électrique et différentier ensuite les ions ou électrons grâce à leur temps de vol. En effet, on a vu au premier chapitre que chaque niveau n, l est ionisé pour une valeur de champ électrique très précise qui lui est propre. Pour appliquer le champ électrique, on a placé deux grilles de très petit paramètre de maille en cuivre, espacées de 0.5 mm. Le jet de césium passe entre ces deux grilles. Ensuite, on peut



FIGURE 4.31 – Transition D2 de la structure hyperfine du césium, figure issue de [67].



(a) Visualisation 3D de l'enceinte à vide utilisée au LAC.



(b) Enceinte utilisée actuellement au LAC pour l'excitation des atomes, leur désexcitation, ionisation et détection (vue du dessus).

FIGURE 4.32 – Vue en 3D (a) et photographie (b) de l'enceinte à vide utilisée au Laboratoire Aimé Cotton pour la désexcitation d'atomes de Rydberg de césium. Le jet de césium suit le trait bleu sur la figure (a) et passe entre les grilles qui permettent de créer le champ électrique pour ioniser les atomes. Elle sont séparées de 5 mm. De part et d'autre on trouvera le détecteur (à gauche des grilles), et la lampe (figure (b)) ou le tube qui guidera la source externe (figure (a)) à droite des grilles.
porter chacune des grilles à un potentiel choisi en utilisant des alimentations extérieures. Pour la détection, nous utilisons à nouveau un montage de 2 galettes de micro-canaux montées en chevron, comme décrit au chapitre 2.

Deux voies de détection sont possibles lorsqu'on s'intéresse à l'ionisation d'atomes. Soit on détecte les ions créés, soit on détecte les électrons créés. Il existe une grande différence de masse entre les deux espèces , qui sont pour nous les ions Cs^+ et les électrons. Ainsi, le temps de vol pour les deux types de particules est très différent. Les électrons sont tellement rapides que l'écart temporel entre l'arrivée d'un électron issu d'un côté du paquet et l'arrivée d'un électron issu du côté opposé du paquet est bien en dessous de la résolution temporelle de notre dispositif. En conséquence, le signal d'ionisation sera moins large, le pic sera plus net.

Dans un premier temps, j'ai réalisé le montage électronique décrit en figure 4.33, qui est réversible, et peut être utilisé pour lire le signal en détection en ions et en électrons. Dans les deux configurations le principe est le même. On dispose d'une alimentation électrique haute tension (de 0 à 3 kV) qui doit permettre d'alimenter la face avant et la face arrière des MCP, un pont de résistances permet de répartir la tension entre les deux faces. Le signal, lu sur la face avant, est récupéré.

Les différents condensateurs dans le schéma électrique associés à des résistances permettent de stabiliser les alimentations et éviter des sauts rapides de tension. Sur la sortie, on place un pont de diodes qui permet de protéger le module électronique d'intégration du signal qui ne supporte pas de tensions au delà de 100 V.

4.3.5 L'acquisition des données

Pour effectuer l'acquisition des données, nous utilisons un "Gated Integrator and Boxcar Averager module", modèle SR250 de Stanford Research Systems. Ce système permet de définir temporellement des portes, auxquelles on donne en entrée un signal, et qui sortent le signal moyenné ou intégré sur la largeur de cette porte. Les paramètres réglables de ces portes sont leur largeur, leur sensibilité, leur délais par rapport au signal de déclenchement et leur décalage par rapport au zéro. Pour le modèle que nous utilisons, la largeur peut varier de 2 ns à 15 μ s, le délais peut varier de quelques nanosecondes à 100 ms, et la sensibilité de 1V/1V à 1V/5mV. Cela signifie simplement qu'avec par exemple une sensibilité de 1V/20mV, le module donnera un signal de 1 V d'amplitude en ayant reçu un signal de 20 mV d'amplitude. C'est l'inverse du gain introduit par le module. En ce qui concerne le décalage, il suffit d'amener le signal en sortie de porte à zéro grâce au potentiomètre quand le signal est censé être nul. Ainsi, on peut écrire une relation entre le signal d'entrée et le signal de sortie de la façon suivante :

$$V_{sortie} = S \times V_{entree} + D \tag{4.20}$$

Où S est la sensibilité et D le décalage. Il suffit alors d'inverser cette relation pour remonter au signal initial.

Puisque nous disposons de plusieurs portes, il va alors falloir définir des zones temporelles d'intérêt pour acquérir les données intéressantes. On va préciser le principe d'une mesure, à savoir mesurer la population d'un niveau nl.

- A un instant t_0 les atomes sont excités par une impulsion laser sur l'état nl de Rydberg.
- Le champ électrique entre les grilles augmente dans le temps, et à t_1 les atomes sont ionisés par le champ dont la valeur est maintenant suffisante.



FIGURE 4.33 – Montage électronique réversible (ions/électrons) d'alimentation des différentes faces du détecteur MCP et de découplage du signal.



FIGURE 4.34 – Schéma détaillant les polarités appliquées sur les grilles et la face avant du détecteur de façon à accélérer les électrons ou les ions vers le détecteur, en fonction de la configuration de détection : les valeurs des tensions pour la détection en ions sont données en haut, et en bas pour la détection en électrons.

• Accélérés par le champ électrique, les ions Cs^+ atteignent le détecteur à l'instant $t_1 + \Delta t$, Δt étant le temps de vol des ions sur la distance entre le nuage et la face avant des galettes micro-canaux. L'amplitude du signal est proportionnelle au nombre d'ions arrivés sur le détecteur.

L'intervalle entre les instants t_0 et t_1 dépend de la rampe de champ électrique appliquée sur les grilles. On peut donc modifier cette durée, soit, à constante de temps équivalente, en augmentant la tension finale demandée; soit, à tension finale équivalente, en changeant la constante de temps du circuit RC (changer la résistance ou la capacité).

De plus, on a vu précédemment (chapitre 1) qu'à chaque niveau nl de Rydberg correspond une valeur de champ électrique d'ionisation. On aimerait donc que chaque niveau de Rydberg qui sera ionisé par champ électrique donne un signal en un temps précis, cela se traduit aussi par le fait que l'ionisation des différents niveaux ait lieu à des instants relativement espacés (les t_1 pour chaque niveau sont assez distincts). Ainsi, on peut écrire, en suivant toujours le même raisonnement, que les ions issus des niveaux nl arrivent sur le détecteur à l'instant : $t_1(n, l) + \Delta t$, car Δt dépend surtout du champ électrique.

Si on souhaite séparer les signaux de deux niveaux (nl) et (n'l'), alors il faut que la quantité $|t_1 - t'_1|$ soit compatible avec la résolution temporelle de l'oscilloscope. On détaille sur la figure 4.36 le principe de la mesure grâce à une vue d'écran de l'oscilloscope qui nous permet de visualiser les portes d'intégration et le signal pendant l'acquisition.

Pour pouvoir étudier différents niveaux (sur une large gamme, par exemple n=28 et n=40), il faut pouvoir faire varier le champ électrique appliqué entre les grilles avec le temps, avec le bon taux de répétition.

En effet, le laser d'excitation qui effectue le dernier étage des transitions est pulsé, avec une fréquence de répétition de 10 Hz. Tous les éléments devront ainsi fonctionner à ce taux de répétition. En ce qui concerne le champ électrique appliqué sur les grilles, l'une sera mise à 0 V, tandis que l'autre sera portée à $\pm U$, le signe dépendant du type de particule détecté (+ pour les électrons, - pour les ions). De cette façon, il n'y a que la tension appliquée



FIGURE 4.35 – Capture d'écran de l'oscilloscope de visualisation du signal. Cela permet de régler les délais entre les différents éléments : le déclenchement de la rampe de champ électrique (en jaune) par rapport au signal laser non visible sur la fenêtre temporelle ici, et positionnement de la porte d'intégration (en vert) sur le signal (en bleu).



FIGURE 4.36 – Principe de conversion entre niveau atomique détecté et plage temporelle visible sur oscilloscope. Le niveau n=27 d'énergie plus faible s'ionisera à un plus fort champ que le niveau n=30 plus haut en énergie.

sur une grille qui doit dépendre du temps et être pulsée. Pour assurer le taux de répétition on utilise un interrupteur à haute tension (Behlke Switch GHTS30, jusqu'à 3 kV). Celui-ci peut être déclenché par un signal externe. Ensuite, pour la rampe de champ, on utilise un circuit RC série (constante de temps de l'ordre de quelques μ s), qui permet d'étendre le temps de montée de la tension à quelques millisecondes. Ainsi il est possible de distinguer temporellement des signaux issus de plusieurs niveaux atomiques, et donc de placer les portes d'intégration correctement en fonction des niveaux que l'on étudie.

Qualité du signal

On précise ici que bien que chaque niveau soit ionisé à une valeur précise de champ électrique qui lui est propre, il est possible que certains niveaux puissent être détectés par deux portes simultanément (signal à cheval entre deux portes). Ainsi, j'ai passé beaucoup de temps à écrire une matrice de corrélation qui permet d'identifier quelle est la part de chaque niveau dans le signal intégré par les différentes portes. Cela a été compliqué par le phénomène de diaphonie entre les modules électroniques qui créent les portes. Ce raisonnement, appuyé par des mesures expérimentales, est détaillé en annexe C. On a finalement choisi de n'utiliser qu'une seule porte que l'on déplace à l'endroit voulu pour acquérir le signal. Enfin, pour améliorer la qualité du signal, nous avons aussi essayé la détection en électrons, cependant dans ce cas le pic de photoionisation n'est pas visible. En effet, les ions, une fois créés, restent dans la zone jusqu'à l'application de la rampe de champ électrique du fait de leur grande masse (faible vitesse). Par contre les électrons, eux, s'en vont à cause des tout petits champs résiduels auxquels ils sont sensibles du fait de leur faible masse. Ainsi, ces électrons n'atteignent jamais le détecteur et ne sont donc pas pris en compte dans la mesure. On gagne donc en qualité du signal, mais on perd l'information sur le nombre d'atomes excités.

Cela soulève un point important concernant la rampe de champ électrique. Celle-ci est nécessaire pour ioniser et distinguer les différents états atomiques, mais elle induit un décalage entre l'excitation par laser et l'ionisation (temps auquel on peut ajouter le temps de vol, surtout si on détecte les ions). De fait, on détecte les ions ou électrons à partir du moment où l'atome s'ionise, et pas au moment où il est excité. C'est-à-dire qu'il faut ajouter cet écart temporel à toutes nos mesures, à savoir environ 2 à 3 μ s (t=0 correspond en fait à t=2 à 3 μ s).

4.4 Mesures de durées de vie d'états de Rydberg de césium

4.4.1 Simulations

Ici, les simulations sont les mêmes que celles que nous avons déjà effectuées au chapitre 3 sur l'hydrogène, mais cette fois-ci avec le césium. On cherche à confronter les simulations avec les mesures expérimentales réalisées sur le césium. On rappelle le principe.

Admettons que nous choisissons de peupler le niveau $28d_{5/2}$ du césium, et que, par l'excitation laser, N atomes peuplent ce niveau. On suppose qu'aucun autre niveau n'est peuplé. Sous l'effet d'un corps noir à une température T donnée, et sachant que le nuage d'atomes de césium est mobile à la vitesse v par rapport à la source, comment vont évoluer les populations des niveaux atomiques : niveau de départ, niveaux supérieurs jusqu'à n=40 par exemple, et niveaux inférieurs jusqu'au niveau fondamental. En effet, une vitesse des atomes par exemple de 300 m/s signifie qu'en 10 μ s, les atomes parcourent déjà 3 mm de distance, et le corps noir qu'ils voient alors est différent (pas la même puissance en fonction de la



FIGURE 4.37 – Histogramme des taux de transitions entre niveaux 30s et np du rubidium (a), figure tirée de [68] et du césium, figure obtenue par le code ARC. L'émission spontanée apparaît en rouge, et l'émission induite par le corps noir à 300 K apparaît en vert.

distance).

A priori notre interrogation directe est le temps caractéristique de décroissance de la population du niveau initial (temps nécessaire pour que 63 % des atomes quittent le niveau sur lequel on les a placé). On cherche donc à mesurer la durée de vie de ce niveau.

Transitions stimulées par le corps noir entre niveaux atomiques discrets

Avant même de commencer les premières expériences, il était intéressant de vérifier quel pouvait être l'effet d'un corps noir sur quelques transitions. Dans l'article [68], on trouvait la figure 4.37a. Celle-ci présente les taux de transitions depuis le niveau 30S du Rubidium vers les niveaux n'P, n' étant l'abscisse de l'histogramme, par émission spontanée en rouge, et par émission stimulée par un corps noir à 300 K en vert. Cette figure rend bien compte du fait que le corps noir, même à seulement 300 K, stimule les transitions vers les niveaux de nombres quantiques principaux juste inférieurs à celui de départ, mais aussi vers ceux de nombres quantiques principaux supérieurs. Et c'est là tout ce que l'on souhaite éviter. Pour rendre compte de l'ampleur de ce phénomène sur le Césium, nous avons fait le même type d'histogramme, en utilisant la formule (3.16). Pour implémenter ces calculs, on utilise la version téléchargeable du code ARC (Alkali-Rydberg-Calculator décrit dans [51]). On obtient la figure 4.37b. On s'aperçoit alors que l'effet du corps noir sur le césium est semblable en intensité à celui sur le rubidium. Le corps noir à 300 K permet bel et bien de stimuler les transitions du niveau 30s vers les niveaux p inférieurs, mais on voit aussi que les transitions vers les niveaux p jusqu'à n+5 sont également stimulées. Ainsi, il est clair que pour la suite, les transitions vers les niveaux de n supérieurs ne pourront pas être négligées.

Transitions stimulées par le corps noir vers le continuum : photoionisation

La compréhension du phénomène d'ionisation par corps noir intéresse les chercheurs depuis les années 80 [69], mais ce domaine revient au goût du jour dans les années 2000 où l'on essaye de déterminer les sections efficaces de photoionisation pour différents atomes et en particuliers pour les atomes alcalins [70]. On avait vu au chapitre 3 une formule approchée



FIGURE 4.38 – Taux de photoionisation directe par corps noir en s^{-1} en fonction du nombre quantique principal pour les niveaux nS, nP et nD du césium. Comparaison de résultats analytiques (courbes 1, 3 et 5) d'après [72] et [73] avec les résultats numériques (courbes 2, 4 et 6) présentés dans [71] dont est tirée la figure.

qui donnait le taux de photoionisation par corps noir pour l'hydrogène. Ici il s'agit du même principe, on va chercher une formule approchée spécifique pour le taux d'ionisation par corps noir du césium. Dans la littérature [71], on trouve la formule ((27) de [71]) :

$$W_{BBR} = A_l \frac{11500T}{n_{eff}^{7/3}} \left[\cos(\Delta_l^+ + \frac{\pi}{6})^2 + \cos(\Delta_l^- - \frac{\pi}{6})^2 \right] ln \left[\frac{1}{1 - \exp(-\frac{157890}{Tn_{eff}^2})} \right]$$
(4.21)

Avec n_{eff} le nombre quantique principal effectif : $n_{eff}(f) = n - \delta_l$ (voir chapitre 1), T_{eff} la température du corps noir en K et $\Delta_l^+ = \pi(\delta_l - \delta_{l+1})$ et $\Delta_l^- = \pi(\delta_{l-1} - \delta_l)$ où δ_l est le défaut quantique de l'état l (voir chapitre 1). A_l est un coefficient dont la valeur dépend du nombre quantique l, et a été déterminée pour correspondre au mieux aux calculs et résultats issus de formules analytiques. Pour le césium, les valeurs des coefficients A_l sont :

- Pour les états nS : 0.85.
- Pour les états nP : 1.1.
- Pour les états nD : 0.35.

La figure 4.38 présente justement dans le cas du césium la comparaison entre les résultats obtenus analytiquement par [72] et [73] et les résultats obtenus de façon numérique après ajustement des valeurs des coefficients. L'accord semble très bon, et nous utiliserons donc la formule numérique (4.21) pour les simulations. On précise cependant que cette formule n'est valable que pour les faibles valeurs de l. Cependant, expérimentalement, nous ne pourrons exciter que des états de faibles l si nous ne nous plaçons pas en champ électrique (pas de mélange des états, donc seuls les niveaux accessibles depuis le 6p pourront être peuplés).

4.4.2 Mesures expérimentales et comparaison avec les simulations

On va mesurer, à l'aide de la porte analogique dédiée, la population du niveau $40d_{5/2}$ (ou $28d_{5/2}$) en ionisant par champ électrique les atomes s'y trouvant. On augmente petit à petit le temps séparant l'impulsion laser $6p \rightarrow 40d$ de la mesure, en enregistrant le nombre de coups sur le détecteur à chaque instant. On effectue plusieurs séries de mesures, pour faire varier la température de la lampe (on modifie la tension/courant d'alimentation). On veut comparer ces résultats à ce que l'on obtient par les simulations via le Laser Cooling Code [60] déjà présenté dans le chapitre 3.



FIGURE 4.39 – Nombre d'atomes sur le niveau initial 40d en fonction du temps en l'absence (0 K) et en présence de corps noirs de températures allant de 400 K à 1200 K.

Durée de vie du niveau initial

du corps noir simulé.

Pour les études théoriques, on pose comme condition initiale que 100 atomes peuplent le niveau $40d_{5/2}$, et on en étudie l'évolution de la population dans le temps grâce aux simulations de Monte-Carlo dynamiques déjà présentées. On obtient la figure 4.39. Celle-ci nous permet de confirmer le caractère exponentiel de la décroissance de la population d'un niveau atomique, et également de vérifier que, comme attendu, plus la température du corps noir est élevée, plus le temps de décroissance est petit. On construit le tableau 4.40 à partir de la figure 4.39 pour résumer cela.



FIGURE 4.40 – Évolution du taux de décroissance en fonction de la température.

Sur la figure 4.39, on voit que plus la température du corps noir est grande, plus la durée de vie du niveau 40d est courte. Cela se confirme dans le tableau 4.4 où l'on voit que cette



FIGURE 4.41 – Courbes expérimentales (noir : lampe éteinte, orange : lampe allumée et alimentée à 8 V) et simulées (sans corps noir en violet, températures de corps noirs de 400 à 1200 K pour les autres courbes colorées) de durées de vie du niveau 40d. Obtenu avec la détection d'ions.

durée de vie passe d'environ 34 μ s sans aucun corps noir, à presque 8 μ s en présence d'un corps noir à 1200 K. On déduit de ces simulations qu'à priori, l'utilisation comme source THz d'un corps noir peut être une bonne solution, pourvu que la température de celui-ci soit bien choisie, et, au premier regard, supérieure à 900 K.

On va maintenant mesurer expérimentalement la durée de vie du même niveau 40*d*, avec la lampe ASB-IR-18K que l'on va considérer comme un corps noir. On obtient la figure 4.41. Sur cette figure, on a superposé les courbes avec et sans lampe allumée (respectivement orange et noir) aux courbes issues des simulations avec des corps noirs à 400, 700, 900 et 1200 K, et sans corps noir (0 K). On observe que la courbe expérimentale prise avec la lampe éteinte se situe environ entre les courbes simulées à 400 K et à 700 K, cela est compatible avec la température ambiante d'environ 300 K de la salle d'expérience et de l'intérieur de l'enceinte plus chaud encore puisque le four de césium est chauffé (environ 170 °C, soit presque 450 K). De plus, la courbe expérimentale prise avec la lampe allumée à 8 V coïncide avec la courbe simulée à 1200 K. Si on regarde la courbe 4.28a donnée à la section 4.2, on voit qu'une tension d'alimentation de la lampe de 8 V correspond environ à 900 degrés centigrade, soit environ 1220 K. Ainsi, l'expérience vérifie bien les durées de vie prévues par les simulations. Il est donc possible de diminuer la durée de vie ici du niveau 40*d* de quelques dizaines de μ s (18.8 μ s expérimentalement sans lampe) à moins de 10 μ s (3.4 μ s avec la lampe à 8 V expérimentalement) qui est l'objectif initial.

Cependant, cela ne nous informe pas sur le devenir des atomes qui ont effectivement quitté le niveau initial. En effet, si ceux-ci peuplent des niveaux d'énergies plus élevés, c'està-dire plus excités, alors notre manipulation aura été vaine. Ainsi, il faut également observer les populations des niveaux supérieurs et inférieurs (en énergie). Pour le niveau 40d on



FIGURE 4.42 – Courbes expérimentales de signal des niveaux s'ionisant à plus faible champ électrique que le 40d en fonction du temps (bleu : lampe éteinte, rouge : lampe allumée et alimentée à 6 V). Obtenu avec la détection d'électrons.

peut mesurer expérimentalement le signal d'ionisation des atomes dans des niveaux plus élevés. Le champ électrique nécessaire pour l'ionisation étant moins élevé, on a placé une porte d'intégration sur le début de la rampe de champ électrique, juste avant que la valeur d'ionisation du 40d ne soit atteinte. On peut alors détecter le signal issu de l'ionisation des atomes des niveaux 42s, 41d et 43s. On obtient les courbes de signal de la figure 4.42.

Sur cette figure on observe un signal d'ionisation des états supérieurs en énergie au 40d nettement plus important quand la lampe est allumée à 6 V (environ 1000 K) que lorsqu'elle ne l'est pas. Ce résultat est en faveur d'une population des niveaux supérieurs par le corps noir.

Le fait que le signal, dans les deux cas, ne soit pas nul à l'instant t=0, est du à l'écart temporel qui existe entre l'excitation laser et l'ionisation du fait de la rampe de champ électrique, phénomène décrit en introduction de cette section. Il manque donc les 3 premières μ s de la mesure.

De manière plus générale maintenant, nous allons nous intéresser à la distribution des populations au cours du temps. Nous allons nous intéresser aux grands et petits moments angulaires.

Dans les simulations dont les résultats sont présentés en figure 4.43, le niveau initialement peuplé (50 atomes de césium) est le niveau n = 25 et l = 24.

Tout d'abord, quand le niveau peuplé est le niveau n = 25 et l = 24, alors les seules transitions possibles dans un premier temps sont les transitions vers des niveaux dont l = 23au maximum (dans cette simulation la valeur maximale de l était 24). Quand on regarde la figure 4.43a, on s'aperçoit que seuls les niveaux d'énergie inférieure se peuplent au cours du temps, de façon très lente, de sorte que seuls les états n = 25, n = 24 et n = 23 sont peuplés au bout de 100 μs . Cela correspond, bien évidemment, à l'effet de l'émission spontanée, qui ne peut que désexciter ces atomes. En présence d'un corps noir à la température de 800 K, source d'énergie pouvant stimuler certaines transitions, nous observons un comportement tout à fait différent, figure 4.43b. La première observation, la plus immédiate, est qu'il y a





(a) Distribution des populations en fonction du temps, niveau initial n = 25, l = 24, à 0 K.

(b) Distribution des populations en fonction du temps, niveau initial n = 25, l = 24, à 800 K.

FIGURE 4.43 – Distribution des populations entre les différents niveaux atomiques du césium au cours du temps, sans source extérieure $(0 \ K)$, puis en présence d'un corps noir à 800 K. Les populations des différents niveaux sont représentées les unes sur les autres et l'épaisseur de chaque zone représente le nombre d'atomes du groupe associé.

une perte d'atomes au cours du temps. Il y avait 50 atomes à $t = 0 \ \mu s$, il en reste moins de 30 au temps $t = 100 \ \mu s$. Cette perte montre simplement que certains atomes se désexcitent vers des niveaux qui n'apparaissent pas sur le graphique, ou sont même ionisés. Pour comparer l'effet d'un grand et d'un plus petit l, on trace la figure 4.44, qui présente le même genre de graphique que 4.43 pour des niveaux de même n mais de l différents. Sur la figure 4.44a, le niveau initialement peuplé est n=25, l=15, tandis que sur la figure 4.44b, il s'agit de n=25et l=24. La température du corps noir est ici de 300 K.

Dans le cas du plus petit l, on peut observer plus de pertes d'atomes au bout de 100 μ s, et les états de n supérieurs sont globalement plus peuplés que dans le cas d'un grand l.

4.5 Conclusions et perspectives

Nous avons étudié l'évolution des populations de différents états de Rydberg au cours du temps en présence d'un corps noir, et ces premiers résultats montrent effectivement que les atomes quittent plus rapidement leur niveau initial en présence d'un corps noir, et plus la température de celui-ci est élevée, plus le processus est rapide. Cela est confirmé à la fois par les premiers résultats expérimentaux et par les simulations. Cependant, on a pu montré qu'une dépopulation du niveau initial ne signifiait pas forcément la population du niveau fondamental. En effet, il peut y avoir des excitations (dont photoionisation) qui auront comme effet de peupler des niveaux encore plus élevés. Il serait alors intéressant de pouvoir étudier directement la population du niveau fondamental. En pratique cela est plus compliqué que pour les niveaux élevés, car on ne peut pas simplement ioniser par champ électrique. Dans ce cas il faudrait alors mettre en place un schéma de lasers entre les niveaux 6s et 6p du césium. On regarde à nouveau la figure 4.31 qui présente la transition D_2 de la structure hyperfine du césium. Le premier étage d'excitation vers les états de Rydberg est la transition $6s_{1/2} F=4$



(a) Distribution des populations en fonction du temps, niveau initial n = 25, l = 15.

(b) Distribution des populations en fonction du temps, niveau initial n = 25, l = 24.

FIGURE 4.44 – Distribution des populations entre les différents niveaux atomiques du césium au cours du temps en présence d'un corps noir à 300 K. Niveau initialement peuplé : (a) n=25, l=15; (b) n=25, l=24. Les populations des différents niveaux sont représentées les unes sur les autres et l'épaisseur de chaque zone représente le nombre d'atomes du groupe associé.

vers $6p_{3/2}$ F'=5. Cependant, dans ce cas, il reste des atomes sur le niveau F=3 du niveau fondamental $6s_{1/2}$. Or, si on veut étudier l'évolution de la population de ce niveau fondamental, il faut qu'au point de départ aucun atome ne s'y trouve. On pourra donc allumer longuement avant un faisceau repompeur qui effectuera la transition $6s_{1/2}$ F=3 vers $6p_{3/2}$ F'=4 pour vider le niveau F=3. Ainsi, a priori si on allume le faisceau qui fait la transition 4-5 ainsi que l'OPO, on excite les états de Rydberg, et le niveau fondamental est vide. Pendant la désexcitation, les atomes vont peupler les niveaux F=3 et F=4 du fondamental. On rallume alors le repompeur pour mettre les atomes arrivés dans F=3 de $6s_{1/2}$ sur le niveau F=4 du $6p_{3/2}$, qu'on photoionise pour évaluer le nombre d'atomes qui le peuplent. Même si on n'étudie pas tous les atomes qui descendent sur le niveau fondamental, en fait seulement ceux qui arrivent sur F=3, cela donnera une idée de ce qu'il se passe.

Les simulations comme les résultats expérimentaux, ont montré que parmi le spectre du corps noir, se trouvent des fréquences qui peuvent exciter et ioniser les atomes. A ce sujet nous avons donc caractérisé quelques lampes que nous avons à notre disposition, et nous avons recherché des matériaux dont les propriétés en font des filtres aux petites longueurs d'onde (en dessous de 150 μ m, ou 2 THz). Nous avons alors déterminé qu'une épaisseur d'environ 4 mm de polyéthylène haute densité (HDPE) pourrait filtrer un corps noir de façon à atténuer largement les fréquences nuisibles. De plus, on a pu vérifier expérimentalement qu'un corps noir à 1000 K délivre plus que la puissance nécessaire pour effecteur toutes les transitions (on a vérifié pour les transitions limites, entre niveaux hauts et entre niveaux bas). Enfin, il ne sera pas possible sur l'expérience $AE\overline{g}IS$ de placer la source lumineuse directement dans l'enceinte cryogénique à 4 K, nous avons donc montré que le cuivre était un bon matériau pour guider les ondes THz sur plusieurs mètres a priori en conservant de l'ordre de 90% de la puissance. Pour affiner le dispositif expérimental que nous avons mis

au point au Laboratoire Aimé Cotton, et préparer l'installation d'un ensemble similaire au CERN, nous avons maintenant placé des hublots en quartz et en polyméthylpentène (TPX) qui sont transparents aux THz, de façon à pouvoir laisser entrer ce faisceau dans l'enceinte. L'étude de ces deux matériaux permettra de finaliser la question du guidage du faisceau THz jusqu'au nuage d'antihydrogène. Il restera ensuite à procéder aux mesures expérimentales des durées de vie de niveaux de Rydberg en utilisant à la fois les différentes lampes, un filtre et un tube en les plaçant à l'extérieur de l'enceinte, pour vérifier que le filtrage et le transport des ondes ondes THz est assez bon pour stimuler la désexcitation des atomes de Rydberg, en stimulant le moins possible les excitations. Enfin il faudra améliorer le lien entre les simulations et l'expérience, par exemple en affinant les calculs de sections efficaces d'ionisation (intégration sur l'infinité de niveaux du continuum). Cependant, nous allons présenter dans le chapitre suivant une alternative intéressante aux lampes ou corps noirs, à savoir un dispositif permettant de créer plusieurs raies fines dans le domaine THz.

Chapitre 5 Les sources THz

On vient de voir dans les chapitres précédents, que la puissance nécessaire pour effectuer la cascade de transition dont les fréquences se situent dans la gamme 0.2 à 2 THz est un élément primordial pour la réussite de la technique. On aimerait idéalement n'avoir que les fréquences impliquées dans les transitions, et s'affranchir des fréquences qui permettent d'exciter et d'ioniser les atomes.

La gamme des ondes THz (ou infrarouge lointain, domaine sub-millimétrique) est longtemps restée inexplorée, elle se situe entre le domaine visible et le domaine des micro-ondes.

Dans ce chapitre, nous allons nous intéresser aux différentes sources THz aujourd'hui disponibles, car leur développement est actuellement en plein essor [74] [75] [76]. En effet, la mise au point de sources et de détecteurs dans cette gamme de fréquences ouvre la voie à de nouvelles techniques, notamment d'imagerie ou de spectroscopie, pour l'analyse d'oeuvres d'art [77] ou la détection d'explosifs [78] et dans le milieu biomédical [79] par exemple, sans détérioration de l'échantillon. Dernièrement, un enjeu est d'utiliser ces gammes de fréquences pour la télécommunication (on parle déjà de télévision haute définition par THz).

Pour l'application que nous voulons en faire ici, plusieurs types de sources peuvent s'offrir à nous :

- Autant de sources fines que de transitions.
- Ou bien une source très large spectralement qui recouvre le domaine souhaité.

Dans ce chapitre, on cherche à affiner le choix de la source THz pour le projet, analyser des alternatives aux corps noirs et lampes, qui étaient les éléments les plus simples à étudier et utiliser dans un premier temps. On aimerait maintenant affiner les puissances et le spectre THz pour optimiser la cascade de désexcitation. Le but est d'identifier les sources qui répondront à la fois aux critères de puissance, mais aussi de prix, et de contraintes expérimentales (encombrement spatial par exemple). Des exemples de sources actuellement existantes, leurs domaines de fréquences et les puissances disponibles sont données par les figures 5.1 et 5.2.

Un grand nombre de sources sont représentées sur la figure 5.2 tirée de [75], et à première vue, les choix sont multiples et apparaissent en deux groupes : les sources larges et les sources fines.

5.1 Les sources larges spectralement

Les sources que l'on appelle larges spectralement, sont des sources qui comportent un grand nombre de fréquences dans leur spectre. En particulier ici, on cherchera des sources dont le spectre pourrait s'étaler de 0.2 à 2 THz (soit de 100 à 1500 μm environ en longueur



FIGURE 5.1 – Exemples de sources THz existantes, on donne leurs domaines de fréquences, et les puissances attendues. Les lignes donnent les domaines sur lesquels les dispositifs peuvent fonctionner, mais un seul dispositif ne couvre pas toute cette gamme. De plus la figure date un peu et par exemle les photomixeurs dont nous parlerons ont beaucoup progressé et le mW (et non pas μW comme indiqué) est actuellement atteignable. Figure tirée de [80].

Source	Classification	Frequency (THz)	Operation temp	Typical power output	Year	Commercial
Mercury	Thermal	Broadband	Room	~10s $\mu \rm Ws$	1950s	Bruker, Sciencetch
SiC globar	Thermal	Broadband	Room	μWs	<1950	S
Cosmic background	Thermal	Broadband	Room			
BWO	Vacuum	0.65	Room	50 mW ^b	2008	No
	electronic	0.1	Room	1.56 mW ^a	2013	No
		0.2	Room	10 kW ^b 4.56 mW ^a 20 W ^b 30 mW ^a	2015	No
Free electron	Vacuum	0.1-4.8	Room	5 kW ^b	2001	No
lasers	electronic	1.28–2.73	Room	20 W ^a 500 kW ^b 500 W ^a	2007	No
Gunn diodes	Solid state	0.1	Room	50 μW^{a}	2007	No
	electronic	0.3	Room	$23 \ \mu W^{a}$	2014	No
Frequency	Solid state	0.7 - 1.1	Room	0.625 mW ^a	2016	Virginia Diodes
multiplication devices	electronic	0.1-0.17	Room	16 mW ^a	2016	
Gas	Lasers	0.5–5 (discrete)	Room	Up to 150 mW	1970s	Edinburgh Instruments, Coherent
Quantum	Lasers	4.4	8 K	2 mW ^b	2002	No
cascade		4.4	10 K	0.02 mW ^a	2006	No
		3.4	10 K	139 mW ^a CW	2014	No
		3.4	77 K	248 mW ^a (pulsed)	2014	No
		3	178 K	1 W^{b}	2008	No
		3.15	129 K	20 mW ^a	2014	No
		3	225 K	420 mW ^b 8.4 mW ^a 20 μ W ^b 100 nW ^a 2.5 μ W ^a CW 10 μ Ws pulsed ^b 10 nW ⁺	2009	No
Difference	Lasers	5	Room	80 nW ^b	2007	No
frequency		3.5	Room	1 nW^+	2015	No
generation using	ţ.			1.9 mW ^b (predict		
2 MIR QCLs				maximum		
				100 mW)		
				200 nW^+		

^a Average power.^b Peak power.

FIGURE 5.2 – Exemples de sources THz existantes, on donne leurs domaines de fréquences, leur température de fonctionnement ainsi que les puissances attendues. Figure tirée de [75]. d'onde). Parmi les sources envisagées on compte bien sûr les corps noirs et lampes (sur la figure 5.2, Mercury et SiC globar) mais aussi d'autres technologies telles que le rayonnement synchrotron ou le laser à électrons libres dont le spectre est compatible avec nos attentes. Nous avons déjà étudié les sources de type corps noir ou lampe, et nous nous sommes assurés de leurs performances dans le domaine de fréquence qui nous intéresse. On s'attachera ici à présenter d'autres types de sources. Nous ne serons pas exhaustif mais nous privilégierons celles qui nous semblent les plus proches de notre application.

5.1.1 Le rayonnement synchrotron

Une particule chargée soumise à un champ magnétique subit une déviation de sa trajectoire. Cette déviation est accompagnée d'une perte d'énergie de la particule sous forme électromagnétique, il s'agit du rayonnement synchrotron. Le spectre de cette émission est large et dépendant de la vitesse et de la nature des particules accélérées et déviées. Le plus souvent, on construit des accélérateurs circulaires (synchrotrons) dans lesquels on injecte des électrons qui circuleront dans l'anneau de stockage : secteur de la machine optimisé pour dévier la trajectoire et récupérer la lumière synchrotron. On trouve moins souvent des synchrotrons à positrons. Ce rayonnement est utilisé en majeure partie pour des études de structures et géométries de différents objets (cristaux, matière molle). L'avantage principal de ce type de source est la grande puissance (de l'ordre du W [81]) et la grande brillance du faisceau délivré. Aujourd'hui, des instruments spécifiques ont été optimisés pour ce type d'utilisations, ce sont les lasers à électrons libres.

5.1.2 Le laser à électrons libres

Le laser à électrons libres fonctionne sur le même principe que le synchrotron : l'émission de lumière par des particules relativistes déviées de leur trajectoire par un champ magnétique. Ils sont tout d'abord accélérés de manière à devenir ultra-relativistes, puis ils pénètrent un élément magnétique appelé onduleur, qui courbe un grand nombre de fois leur trajectoire afin de produire du rayonnement synchrotron. C'est ce rayonnement qui forme le faisceau laser de sortie. A la différence du synchrotron, la distance parcourue par les particules est bien plus courte, les éléments magnétiques sont nombreux et placés de façon à combiner chaque faisceau pour obtenir en sortie un faisceau bien plus intense. Cette source est de plus cohérente et elle peut être accordable en longueur d'onde, elle est dédiée à la production de faisceau laser, à l'instar du synchrotron.

Ces deux instruments restent très volumineux, très coûteux, et leur exploitation est particulièrement compliquée (cryogénie, rayonnements ionisants), et la puissance délivrée est plusieurs ordres de grandeur au dessus de ce dont nous avons besoin. Seule une installation déjà existante dans l'enceinte du CERN, aurait pu permettre d'envisager cette solution comme source de THz pour notre dispositif.

5.1.3 La technique "Half Cycle Pulse"

Un Half Cycle Pulse ou HCP est une impulsion non symétrique temporellement, dont la durée (typiquement de l'ordre de la ps) correspond en fréquence au domaine THz. Cette impulsion est générée au sein d'un matériau semi-conducteur. Les électrons de ce matériau passent de la bande de valence à la bande de conduction grâce à l'énergie incidente de photons générés par un laser pulsé, créant un photocourant détectable. En général, le semiconducteur, souvent un mélange GaAS avec une largeur de bande d'environ 1.4 eV, est éclairé



FIGURE 5.3 – La génération de "Half Cycle Pulse", source THz pulsée.

par une impulsion femtoseconde d'un laser Ti :Sa à 770 nm. Un champ électrique de biais est appliqué sur une face du semi-conducteur, et les électrons qui passent de la bande de valence à la bande de conduction sont alors accélérés et une impulsion électromagnétique cohérente est alors rayonnée. Il s'agit d'impulsions à demi-cycle car le matériau redevient isolant ensuite, faisant ralentir les électrons à l'intérieur, qui produit un rayonnement de polarité inversée et plus long, comme on le voit à droite sur la figure 5.3. Cette technique a déjà été utilisée pour désexciter des atomes de Rydberg, [82].

La problématique dans cet article est la même que la nôtre, trouver une façon de désexciter des atomes d'antihydrogène qui peuplent des états de Rydberg dans un temps imparti. Il est démontré expérimentalement dans cet article la désexcitation de 10 % d'atomes de n=52 vers n=40 dans la limite fixée de 250 μ s. Cette limite de temps est bien insuffisante, comparée aux 10 μ s requises pour notre application. C'est la raison pour laquelle cet article n'a pas été très remarqué par la communauté du CERN. Le dispositif expérimental utilisé est présenté en figure 5.4. Au centre, les atomes de rubidium sont piégés dans un piège magnéto-optique (longueur d'onde des lasers de piégeage de 780 nm) et excités sur des états de Rydberg par un OPO pulsé aux alentours de 480 nm de longueur d'onde. A gauche, l'émetteur génère des trains d'impulsions demi-cycle (HCP) qui vont interagir avec les atomes. Pour ioniser les atomes et étudier la population des différents niveaux, le même système de grilles que sur notre dispositif expérimental est utilisé. Le champ électrique créé varie de 0 à 700 V/cm en 10 μ s. Les électrons issus de l'ionisation sont détectés par un multiplicateur d'électrons. A droite, un second matériau semi-conducteur est utilisé comme détecteur de HCP : c'est l'impulsion qui crée le courant dans le matériau cette fois. Les populations des différents niveaux atomiques pourront être reliées au nombre d'impulsions envoyées. La figure 5.5 montre un résultat obtenu par cette technique. Elle montre le pourcentage d'atomes ionisés en fonction du champ électrique appliqué après interaction des atomes avec 1600 HCP. Sachant que chacun des pics correspond donc à un niveau, on voit alors, que si initialement seul l'état n=52 est peuplé, après 1600 HCP, il y a eu une redistribution des atomes sur les différents états proches du n=52. Sur une expérience qui utilise un faisceau d'atomes d'antihydrogène, cette technique ne sera pas utilisable, car nous disposerons alors seulement de 10 μ s pour effectuer toutes les transitions. Avec cette méthode, une réduction de la durée de vie des atomes d'un facteur 4 est montrée, alors qu'il faudrait atteindre 10. Un taux de répétition de 82 MHz comme utilisé dans le cas décrit correspond à 820 impulsions HCP en 10 μ s tandis que 1600 sont nécessaires pour transférer 10 % de la population du niveau n=52 au niveau n=40.



FIGURE 5.4 – Dispositif expérimental de désexcitation d'atomes de Rydberg de rubidium par génération et détection de THz par Half Cycle Pulse. Figure issue de [82].



FIGURE 5.5 – Redistribution des populations sur des niveaux de Rydberg du rubidium par "Half Cycle Pulse". Le niveau initialement peuplé est n=52. La mesure est faite après interaction des atomes avec 1600 impulsions HCP, soit 19.5 μ s. Les traits pointillés sont les valeur de champ électrique d'ionisation des niveaux Stark rouges, et permettent d'identifier les niveaux mesurés. Figure tirée de [82].

En conclusion, cette expérience est très proche de la source 0.2-2THz dont nous avons parlé mais sa puissance est trop faible pour être efficace. Il est évident que des sources plus fines seront plus efficaces et c'est ce que nous allons étudier maintenant.

5.2 Les sources fines

L'idée dans le cas de sources fines est d'utiliser autant de sources que de transitions à effectuer, ou alors une seule source se comportant en réalité comme plusieurs sources fines. Sur la figure 5.2, on trouve parmi les sources fines les sources basées sur les matériaux semi-conducteurs, dont les lasers à cascade quantiques, qui, bien qu'accordables en longueur d'onde, ne permettent pas d'obtenir simultanément toutes les fréquences voulues.

5.2.1 Le laser à cascade quantique

Le laser à cascade quantique doit pouvoir couvrir une gamme de plusieurs THz. Nous allons détailler un peu son fonctionnement et conclure si ce type de source peut être utilisé pour la cascade de désexcitation.

Un laser à cascade quantique utilise la structure de bandes des semi-conducteurs pour émettre dans la gamme des ondes térahertz. A l'intérieur d'un solide, les électrons ne peuvent pas prendre toutes les valeurs d'énergie possibles : cette énergie est comprise dans des intervalles, que l'on appelle bandes. Il existe notamment la bande de valence et la bande de conduction dont l'écart en énergie sera responsable du caractère conducteur, semi-conducteur ou isolant d'un solide. Mais ces deux grandes bandes se divisent aussi en sous-bandes, qui elles, seront impliquées dans le mécanisme des lasers à cascade quantique. Il a été démontré en 1994 au Bell Labs par Jérôme Faist [83] qu'il est possible de fabriquer des semi-conducteurs, de telle sorte que l'empilement des sous-bandes forment des puits quantiques. Les électrons présents dans le solide peuvent alors passer d'un état à un autre par effet tunnel, par absorption (ou émission) d'un phonon ou d'un photon, ou par collision avec un autre électron, [84], [85]. Aujourd'hui, ce type de laser permet de couvrir le domaine térahertz de 1 à 5 THz environ,

[86] pour une puissance pouvant aller jusqu'à plusieurs watts en continu.

Ce genre de dispositif, bien qu'en plein développement, reste onéreux, d'autant plus que plus d'une dizaine de ce type de laser serait nécessaire, sans ajouter les contraintes liées au refroidissement, car encore aucun laser de ce type fonctionnant au delà de 1 THz ne fonctionne à température ambiante [86].

5.2.2 Les diodes

La diode fonctionne d'après les mouvements électroniques dans les différentes bandes d'énergie d'un matériau semi-conducteur, souvent GaAs ou InP. Ce sont les matériaux utilisés qui fixent les domaines de fréquences de fonctionnement, qui dépendent des temps de transfert des électrons d'une bande à une autre. Le domaine de fréquences est donc limité (plusieurs centaines de GHz), bien qu'il a été démontré le fonctionnement de mélangeurs et multiplicateurs jusqu'à 3 THz. La puissance délivrée par une diode Gunn peut aller de plusieurs centaines de mW à de faibles fréquences, mais seulement de l'ordre du mW aux hautes fréquences, typiquement le THz [87] à l'aide des multiplicateurs. Donc utiliser plusieurs diodes et plusieurs multiplicateurs pour couvrir le spectre désiré serait trop onéreux.



Dipôle électrique + Semi-conducteur

FIGURE 5.6 – Principe du photomixing : deux faisceaux incidents décalés en fréquence sont envoyés sur un semi-conducteur (antenne photo-conductrice) soumis à une tension de biais et équipé d'une lentille de silicium pour focaliser les ondes térahertz en sortie.

5.2.3 Le "THz photomixing"

Principe de fonctionnement

Dans le cas le plus simple, on envoie deux faisceaux lasers sur une antenne photoconductrice (semi-conducteur), qui crée un photocourant modulé à la fréquence de battement entre les deux faisceaux incidents, dans le domaine THz (par exemple si on prend un faisceau à 780 nm et un second à 783 nm, on obtiendra la fréquence 1.47 THz). L'onde térahertz de sortie est alors rayonnée par l'antenne, comme le montre la figure 5.6. Une lentille de silicium en sortie du dispositif permet de focaliser ou collimater le faisceau THz. Le matériau semi-conducteur est soumis à une tension de biais, d'une valeur de 10 à 15 V.

On va maintenant s'intéresser aux puissances que peut fournir un photomixeur, en fonction, notamment de la puissance optique en entrée et de la tension de biais qui lui est appliquée.

Détermination de la puissance de sortie

Le calcul de la puissance de sortie THz dans le cas de deux longueurs d'onde laser utilisées sur un photomixeur est réalisé dans [88]. Dans un premier temps on détermine la puissance incidente sur le semi-conducteur. De façon plus simple que dans [88], on peut écrire les champs optiques des deux faisceaux comme :

$$\begin{cases} E_1(t) = E_1(z)\cos(\omega_1 t + \alpha) \\ E_2(t) = E_2(z)\cos(\omega_2 t) \end{cases}$$
(5.1)

La puissance varie en fonction de l'intensité du champ électrique (intégration sur le recouvrement des faisceaux d'entrée) :

$$\begin{cases} P(t) = \int cn\epsilon_0 K(t) dS \\ avec \ K(t) = E_1^2 \cos^2(\omega_1 t + \alpha) + E_2^2 \cos^2(\omega_2 t) + 2E_1 E_2 \cos(\omega_1 t + \alpha) \cos(\omega_2 t) \end{cases}$$
(5.2)



FIGURE 5.7 – Circuit équivalent au dispositif d'un photomixer. Détermination du photocourant J. Figure de [89].

Enfin, la puissance optique d'entrée s'écrit :

$$P_{opt}(t) = P_1 + P_2 + 2\sqrt{mP_1P_2}\cos\left[(\omega_1 - \omega_2)t + \alpha\right]$$
(5.3)

On a noté $P_i = \int cn\epsilon_0 (E_i^2/2) dS$. Il existe normalement aussi un terme en $(\omega_1 + \omega_2)$. Mais ce terme oscillant à la somme des fréquences est trop rapide pour le matériau et ne donne lieu à aucun processus efficace. Afin de déterminer la puissance THz obtenue en sortie en fonction des puissances d'entrée, on considère un circuit équivalent au dispositif (introduit par [89]) illustré en figure 5.7. Sur cette figure, ω_1 et ω_2 sont les fréquences des deux ondes incidentes, V_b est la tension de biais appliquée au matériau semi-conducteur, G est la photoconductance de l'antenne térahertz et R_A est la résistance radiative de cette antenne. Enfin, J est le photocourant induit dans le semi-conducteur. C'est la photoconductance de l'antenne qui fait le lien entre les caractéristiques du circuit et les ondes incidentes (m représente le recouvrement spatial entre les ondes incidentes, α le déphasage entre celles-ci et τ_c la durée de vie des porteurs) :

$$G(t) = G_0 \left(1 + \frac{2\sqrt{mP_1P_2}\sin\left[(\omega_1 - \omega_2)t + \alpha\right]}{(P_1 + P_2)\sqrt{1 + \left[(\omega_1 - \omega_2)\tau_c\right]^2}} \right)$$
(5.4)

On peut aussi écrire :

$$G(t) = G_0 + G_1 \sin((\omega_1 - \omega_2)t - \alpha)$$
(5.5)

Avec, si on note $\xi = 2E_1E_2/(E_1^2 + E_2^2)$ [90] :

$$G_1 = \frac{G_0 \xi}{\sqrt{1 + (\omega_1 - \omega_2)^2 \tau_c^2}}$$
(5.6)

Qui est l'amplitude de la conductance modulée. A partir du circuit équivalent 5.7, on peut écrire l'équation différentielle en tension qui régit le phénomène :

$$\begin{cases} J(t) = i_C + i_{R_d} = C \frac{dV(t)}{dt} + G(t)V(t) \\ J(t) = i_{R_A} = \frac{V_b - V(t)}{R_A} \end{cases}$$
(5.7)

Le champ THz de sortie varie en fonction du temps de façon proportionnelle à la dérivée du photocourant par rapport au temps, avec J le photocourant moyen sur la largeur du gap de l'antenne :

$$E_{THZ}(t) \propto \frac{\delta J}{\delta t}$$
 (5.8)

La résolution analytique pour trouver l'expression du photocourant J(t) dans l'expression (5.7) ne sera possible que dans des conditions particulières, comme une forme harmonique de la tension V(t), un déphasage négligeable entre les ondes incidentes, et dans la limite de signal faible ($G_0R_A \ll 1$) on trouve finalement, d'après l'expression de J(t) (le courant créé par le déplacement des porteurs de charges dans le matériau), dans [88] [89] :

$$P_L(\omega = \omega_1 - \omega_2) = \frac{J_0^2 R_A}{2 \left[1 + (\omega \tau_c)^2\right] \left[1 + (\omega R_A C)^2\right]}$$
(5.9)

Où P_L est la puissance du signal en sortie du circuit équivalent, proportionnel à la puissance THz de sortie. On note $J_0 = G_0 V_b$ (composante continue du photocourant).

Dans [91] on trouve une expression simplifiée de la puissance THz de sortie, issue de la formule (5.9), dans le cas de la puissance optique également répartie entre les deux faisceaux :

$$P_{THz}(\omega_1 - \omega_2) \propto \frac{1}{2} R_A P_{opt}^2 \tag{5.10}$$

Des expressions (5.9) (5.10) on déduit :

Les porteurs sont excités par E_1E_2 et cela produit un courant à la fréquence ω_{12} et par analogie avec l'effet Joule cela rayonne en I^2 donc :

- La puissance THz de sortie augmente quadratiquement avec la tension de biais V_b .
- La puissance THz de sortie augmente de façon quadratique avec la puissance optique $P_1 + P_2$ (avec $P_1 = P_2$).
- La limite de puissance est donnée par la puissance optique maximale pouvant être supportée par le matériau semi-conducteur. A titre d'exemple, pour LT-GaAs (Low Temperature grown GaAs), le seuil de dommage se situe aux alentours de 10^{-5} W cm^{-2} , soit environ 100 mW pour une surface de l'ordre de la centaine de micromètres carrés. Ce seuil est un seuil thermique, c'est-à-dire que le dommage est du à une température trop élevée du matériau induite par une forte puissance optique incidente. Une façon d'augmenter ce seuil serait de limiter l'échauffement du matériau. Dans l'article [92] l'idée d'utiliser un substrat différent pour le LT-GaAs, à savoir du silicium, est proposée et validée expérimentalement. Une puissance de sortie deux fois supérieure est obtenue. Ainsi il est possible de choisir différents matériaux et épaisseurs pour le substrat afin d'optimiser la puissance incidente maximale et ainsi la puissance THz de sortie. Le groupe de recherche en photonique THz de l'Institut d'Electronique de Microélectronique et Nanotechnologie de Villeneuve d'Ascq est très actif dans ce domaine [93]. Suite aux Journées TéraHertz organisées par le GDR TeraMir en juin 2017 à Dunkerque, des contacts avec ce groupe ont été pris, pour discuter de la possibilité d'obtenir des puissances plus importantes avec un photomixeur à 800 nm.

Configurations possibles

Un photomixeur peut être utilisé dans différentes configurations [94] :

- Les deux faisceaux incidents sont issus de deux diodes laser indépendantes, figure 5.8.
- Les faisceaux incidents sont issus d'une diode multimode, figure 5.9. Dans ce cas, les fréquences obtenues en sortie sont données par les battements entre paires de fréquences incidentes.



FIGURE 5.8 – Utilisation d'un photomixeur avec deux diodes indépendantes en entrée.



FIGURE 5.9 – Utilisation d'un photomixeur avec une diode multimode en entrée.

Dans la référence [88], des résultats d'utilisation d'un photomixeur pour créer un peigne de fréquences THz à partir d'une diode laser multi-modes sont présentés. On rencontre notamment la figure 5.10. Celle-ci présente les spectres obtenus avec une antenne photoconductrice LT-GaAs pompée par une diode laser multi-modes dans deux cas :

- Le faisceau laser est focalisé sur l'antenne (a).
- La focalisation du faisceau est adaptée pour avoir le photocourant maximum (b).

Dans les deux cas on peut apercevoir, outre la composante continue du spectre, des pics bien distincts et régulièrement espacés en fréquence, créés par les battements entre toutes les fréquences de la diode. Nous reviendront un peu plus tard sur ce mode de fonctionnement.

• Enfin, on peut utiliser un photomixeur "à l'envers" et détecter des fréquences THz plutôt que de les émettre, figure 5.11. Dans cette configuration, c'est l'onde THz incidente qui crée un photocourant mesurable. Cette utilisation en détecteur nécessitera un dispositif de détection homodyne décrit également sur la figure 5.11.

Utilisation du photomixeur avec M faisceaux d'entrée

Pour notre application, nous avons besoin de générer de nombreuses fréquences simultanément. Utiliser autant de photomixer et de lasers que de transitions s'avèrera très coûteux. On va donc s'intéresser à une solution alternative qui serait de réaliser le photomixing de n signaux provenant du même laser. Un tel fonctionnement d'un photomixer est décrit en référence [95], et on l'a brièvement mentionné, à l'aide de la figure 5.9.

Quand on généralise les calculs précédents (formule (5.9)) au photomixing de M modes laser d'une source multimode [95], intuitivement on se rend compte qu'en sortie du dispositif, on aura autant de fréquences que de paires de fréquences incidentes (différences deux à deux). La question réside donc essentiellement dans la puissance que l'on peut obtenir pour chaque fréquence de sortie en fonction du spectre et de la puissance du faisceau incident.



FIGURE 5.10 – Spectre sub-THz obtenu à partir d'une diode laser multi-modes sur un photomixeur LT-GaAs. Figure issue de [88].



FIGURE 5.11 – Principe de la détection homodyne dans le cas de l'utilisation du photomixeur en détecteur.

Le traitement de ce cas est tout à fait analogue au cas de deux fréquences incidentes. La puissance optique d'entrée s'écrit en revanche dans ce cas :

$$P_{opt,i}(t) \propto \left[\sum_{m=1}^{M} (E_m \sin(\omega_m t + \phi_m))\right]^2$$
(5.11)

En généralisant la formule (5.10), on peut écrire que la puissance THz de sortie s'écrira :

$$P_{THz}(t) \propto \sum_{i \neq j}^{M} P_i P_j \cos\left((\omega_i - \omega_j)t\right)$$
(5.12)

On peut supposer, dans un premier temps, que dans une source laser à M modes, la puissance est répartie équitablement entre les différentes raies. On note P la puissance totale, on alors : $P_i = P/M$. La remarque immédiate est que plus on désirera avoir de raies dans le spectre THz, plus il faudra une puissance intégrée grande. L'autre solution, plus coûteuse cependant, serait d'avoir 2 ou même 3 photomixeurs, chacun créant une partie du spectre. On peut aussi se demander comment sera impactée la puissance de sortie si les puissances ne sont pas équilibrées entre toutes les raies. On peut supposer, que cela revient à avoir toujours M modes, mais avec la plus petite des puissances disponible (le reste de la puissance générant seulement un photocourant continu).

En prenant en compte le seuil de dommage noté P_{max} (typiquement 100 mW) pour la somme des puissances optiques incidentes $P_{incident} = P_1 + P_2 + ... + P_M$, on peut donc adopter deux solutions :

- 1. Tous les modes présentent la même puissance donc $P_{incident} = P_{max}/M$. Dans ce cas on crée M(M-1) raies THz de fréquences ω_{ij} chacune avec une puissance THz proportionnelle à $P_i P_j = P_{max}^2/M^2$.
- 2. On prend une puissance forte $P_1 \simeq P_{max}$ et toutes les autres plus faibles, de puissance $P_0 \ll P_{max}$. Alors dans ce cas, on crée essentiellement M 1 raies THz seulement, de fréquence ω_{1m} (les autres à ω_{ij} avec j différent de 1 sont très faibles) avec une puissance THz proportionnelle à P_1P_j donc à $P_{max}P_0/M$.

Donc on compare ces deux méthodes pour ce qui nous intéresse, et obtenir des raies THz les plus intenses possibles. Donc on compare P_{max}^2/M^2 à $P_{max}P_0/M$. Hors $P_0 < P_{max}/M$, donc on privilégiera la première solution.

Cependant, si elle crée des fréquences indésirables (par exemple une excitation ou ionisation par des fréquences trop élevées), alors on choisira la seconde solution.

De plus, si on envoie des faisceaux de puissances très inégales, seule la plus petite contribuera à la conversion en THz, le reste ne participera qu'à l'échauffement du dispositif. Par exemple, cela pourrait poser problème si on façonne un spectre dans un faisceau gaussien. Plus on s'éloignera de la fréquence centrale, plus la puissance sera réduite.

Les modèles commerciaux

Pour obtenir des fréquences THz en sortie, il existe essentiellement deux types de dispositifs de photomixeurs : l'un fonctionnant aux alentours de 800 nm pour le faisceau incident (matériau : semi-conducteur GaAs), et l'autre aux alentours de 1.5 μ m (matériau : semiconducteur InGaAs). Le principe reste le même, cependant les performances varient, comme l'indique le tableau 5.1. Ce sont essentiellement la puissance THz (figure 5.12) et la polarisation de sortie qui sont les paramètres importants. Le tableau 5.1 et la figure 5.12 sont données par TOPTICA, qui propose des solutions complètes de photomixeurs fibrés.



(a) Spectre de puissance pour un photomixeur GaAs 800 nm.

(b) Spectre de puissance pour un photomixeur InGaAs 1.5 μm.

FIGURE 5.12 – Spectres de puissances des deux types de photomixeurs couramment utilisés, la puissance optique d'entrée est typiquement de 30 mW pour construire ces spectres.

Spécifications	Dispositifs GaAs	Dispositifs InGaAs
Longueur d'onde d'excitation	$0.8~\mu{ m m}$	$1.5~\mu{ m m}$
Polarisation onde THz	Circulaire	Linéaire
Largeur de bande	environ 3 THz	environ 3 THz

TABLE 5.1 – Quelques spécifications données par Toptica sur leurs photomixeurs fibrés à $0.8 \ \mu m$ et $1.5 \ \mu m$.

Au Laboratoire Aimé Cotton, nous nous sommes dotés du photomixeur TOPTICA à 800 nm afin de mener différents tests à la fois sur les spectres réalisables mais aussi sur les puissances qui peuvent être attendues dans le domaine THz en sortie.

On rappelle les résultats des chapitres précédents en ce qui concerne les puissances que nous recherchons. Avec un photomixeur, on se placera dans le cas d'une source fine (la largeur est déterminée par le spectre d'entrée, pas par le photomixeur lui-même), de quelques GHz de large, voire même mieux. Au chapitre 3, nous avons déterminé qu'une largeur de 5 GHz et une puissance de 10 μ W/cm² assureront la transition de n=40 vers n=39 (à la fréquence 0.1 THz), tandis qu'une largeur de 500 MHz et une puissance identique de 10 μ W/cm² assureront la transition de n=15 vers n=14 (à la fréquence 2.16 THz). Si on compare avec les spectres de puissance de la figure 5.12, visiblement cela est difficile pour les grandes fréquences. Si on focalise ensuite le faisceau, il est possible d'atteindre ainsi des puissance de sortie, mais nous disposons actuellement uniquement de diodes dont la longueur d'onde est autour de 850 nm. Ainsi, dans un premier temps, pour valider le schéma optique et faire les premières mesures, aux fréquences plus faibles, le photomixeur à 800 nm sera en principe suffisant.

Nous allons maintenant proposer un dispositif de façonnage de faisceau, inspiré d'expériences déjà menées, qui permettrait de construire un spectre d'entrée aux environs de 800 nm, donnant les fréquences de 0.2 à 2 THz en sortie, et des largeurs de raies entre 5 GHz et 500 MHz avec autant de puissance que possible. En effet, on a vu que plus on veut mélanger de signaux (raies dans le spectre) plus il faudra que ces raies soient intenses si on veut avoir en sortie une puissance THz suffisante. Les progrès sont très rapides dans le domaine du développement de la technologie des photomixeur [96] et on espère d'ici peu obtenir des puissances plus élevées.



FIGURE 5.13 – Exemple de dispositif expérimental de façonnage de faisceau utilisant un VIPA ([98]) : un faisceau laser est envoyé sur un VIPA qui va disperser les différentes fréquences selon un axe sur un intervalle spectral libre (les fréquences séparées par un ISL restent superposées), puis sur un réseau qui dispersera selon l'autre axe. Une caméra permet de visualiser la figure en sortie du dispositif, selon les deux axes mentionnés x et y.

5.3 Le façonnage de faisceau pour utiliser un photomixeur

Dans cette section on va s'intéresser à un moyen de façonner un spectre qui ne comprend que les fréquences dont nous avons besoin pour la désexcitation d'atomes de Rydberg.

5.3.1 Un exemple

Pour mettre au point un dispositif expérimental de façonnage de faisceau au Laboratoire Aimé Cotton, on va s'inspirer du montage décrit dans [97], qui permet d'obtenir des raies de moins de 400 MHz de largeur. L'idée principale est de séparer spatialement les différentes fréquences (à la façon d'un réseau) du faisceau large incident pour ensuite sélectionner les raies qui composeront le spectre final. La figure 5.13 présente le dispositif qui a permis d'obtenir la largeur de raie de 357 MHz. La source est un laser Ti :Sa pulsé de taux de répétition de 890 MHz. Son faisceau est mis en forme par une lentille cylindrique et envoyé dans un VIPA (Virtually Imaged Phased Array) qui est un élément dispersif, puis dans un réseau. Le faisceau de sortie atteint ensuite une caméra sur la figure 5.13, ou l'élément qui permettra de sélectionner spatialement les fréquences à garder (par exemple un SLM, Spatial Light Modulator). L'association des deux éléments dispersifs permet d'obtenir sur la caméra le type de motif montré en bas à gauche sur la figure 5.13.

Pour comprendre ce motif, il faut décrire le fonctionnement de l'élément qui est le VIPA.

5.3.2 VIPA

Un VIPA, pour Virtually Imaged Phased Array, est un élément dispersif qui ressemble fortement à une cavité Fabry-Pérot, et consiste en deux lames de verre séparées par un matériau (air ou silice en général) d'une certaine épaisseur. Le principe de fonctionnement de ce dispositif est décrit sur les figures 5.14 et 5.15. Un faisceau focalisé par une lentille cylindrique entre par le bas du VIPA, avec un angle d'incidence permettant la propagation du faisceau ensuite entre les lames (du bas vers le haut). Une différence de chemin optique



FIGURE 5.14 – Montage optique pour détermination de la loi de dispersion d'un VIPA, figure issue de [99].



FIGURE 5.15 – Schéma de principe d'un VIPA, figure issue de [100].

entre chaque rayon de fréquence donnée est alors introduite par les réflexions et transmissions sur les parois, qui dépendent de la fréquence. On peut établir une loi de dispersion pour ce dispositif, d'après [99] et [100], les notations sont celles de la figure 5.15:

$$2n'kh\cos(\theta_i + \theta_\lambda)' = 2kt\sqrt{n'^2 - n^2\sin^2(\theta_i + \theta_\lambda)} = 2m\pi$$
(5.13)

Dans cette expression, $\delta = 2m\pi$ correspond à la différence de phase pour laquelle l'intensité est maximale, l'angle θ_i est l'angle d'incidence du faisceau initial par rapport à la normale au VIPA, et θ_{λ} est l'angle d'incidence du faisceau en sortie du VIPA par rapport à l'axe optique de la lentille de focalisation. n' est l'indice du matériau du VIPA (entre les lames), et n l'indice du milieu extérieur, t est l'épaisseur du VIPA.

En sortie du VIPA, les fréquences incidentes sont séparées sur un intervalle spectral libre. Le VIPA étale continûment le spectre sur un intervalle spectral libre (ISL) (verticalement), mais toutes les longueurs d'ondes $\lambda_i = \lambda_0(i+m)/m$ sont au même endroit. C'est là qu'intervient le second élément dispersif, le réseau, que l'on voit sur la figure 5.13. Le réseau a pour objectif lui de séparer les fréquences superposées par le VIPA à cause de cet intervalle spectral libre (les longueurs d'onde λ_i). Ainsi, par exemple le VIPA va disperser les fréquences du faisceau incident, on obtient en sortie une figure composée de points alignés de façon verticale. Le réseau sépare ensuite les fréquences séparées d'un nombre entier d'intervalles spectraux libres qui composent chacun des points précédents, et la deuxième dimension du motif apparaît. Cela donne sur une caméra une figure comme ce qui est décrit par la figure 5.16.

Intuitivement maintenant, on comprend que si cette matrice de fréquences est envoyée



FIGURE 5.16 – Dispersion des fréquences suivant deux axes par un ensemble VIPA et réseau. Issu de : Présentation de la division Temps et fréquence du NIST : "Tunable Mid-IR Frequency Comb for Molecular Spectroscopy".

par exemple sur un SLM, si chaque fréquence atteint un pixel (cas idéal) alors on peut choisir exactement les fréquences souhaitées parmi tout le spectre incident. En réalité, c'est la résolution du VIPA, du réseau et les dimensions des pixels de la caméra ou du SLM qui détermineront la précision possible sur la sélection des fréquences (ce qui revient à savoir quelles fréquences arrivent sur le même pixel).

On va tout d'abord déterminer la résolution du VIPA en fonction de ses caractéristiques (épaisseur, matériau etc). On peut calculer la distribution d'intensité en sortie pour chaque fréquence (ou longueur d'onde) qui s'écrit [99] :

$$I_{out} = E_0^{\prime 2} \frac{(1-r^2)(1-R^M r^M)^2}{(1-Rr)^2} \exp\left[-\frac{2f_c^2}{W}\sin^2\theta_x - \frac{2\pi^2 W^2}{\lambda^2}\sin^2\theta_y\right] \frac{1+F_M \sin^2(M\delta/2)}{1+F_1 \sin^2(\delta/2)}$$
(5.14)

Dans cette expression, on note :

- $F_i = 4R^i r^i (1 R^i r^i)^{-2}$ avec i = (1, M) où M est le nombre de réflexions dues à la longueur finie L du VIPA : $M \simeq L/(2t \tan \phi')$, t épaisseur du VIPA et ϕ' angle de tilt.
- Les angles θ_x et θ_y sont les angles d'incidence du faisceau de sortie par rapport à l'axe optique de la lentille de focalisation finale, respectivement selon x et selon y.
- f_c est la distance focale de la lentille cylindrique d'entrée.
- R et r sont les réflectivités en amplitude des faces du VIPA.
- W est le waist du faisceau collimaté en entrée du VIPA.

Dans le cas unidimensionnel, la formule (5.14) nous permet de tracer la figure 5.17. Le logiciel commercial "VIPA designer" mis à disposition par le fournisseur LightMachinery utilise une formule plus simple mais qui donne des résultats tout à fait corrects, et comparables. On fait apparaître en rouge la distribution d'intensité pour la longueur d'onde 860



FIGURE 5.17 – Espacement (en mm) entre les maxima d'intensité (ordre 0) pour les longueurs d'onde 860 et 860.001 nm en fonction de la distance focale (en mm) de la lentille de sortie.

nm, et en noir pour la longueur d'onde 860.001 nm. On peut observer que plus la distance focale de la lentille de sortie est grande, plus les maxima des pics d'intensité sont espacés. En revanche, les pieds de ces pics ne sont pas mieux résolus. Ainsi, si on augmente autant qu'on veut cette distance focale, le pouvoir de résolution n'est pas amélioré.

De façon théorique, le pouvoir de résolution R est donné dans [99] et s'écrit :

$$R = \frac{\lambda}{\Delta\lambda} = \frac{2m\pi}{\epsilon_1} \tag{5.15}$$

Où $\epsilon_1 = 4.15(F_1)^{-1/2}$, et $2m\pi$ a été donné par (5.13). Maintenant que nous disposons de toutes les formules pour caractériser un VIPA, nous allons nous intéresser au dispositif expérimental en cours de développement au Laboratoire Aimé Cotton.

5.3.3 Le projet au LAC

Une partie de l'équipe dont je fais partie étudie le refroidissement de molécules. Pour le refroidissement vibrationnel, ils sont amenés à façonner un spectre en fréquence à partir d'un faisceau à 850 nm environ. Pour cela, ils utilisent un réseau dispersif et une matrice de micromiroirs. Il s'agit d'une matrice de 1024 par 768 miroirs carrés de 10.8 μ m de côté. Chacun de ces miroirs est pilotable par ordinateur, et on peut donc l'utiliser pour sélectionner des fréquences. Le réseau, lui, présente 2000 traits par mm. Le dispositif actuel est décrit par la figure 5.18, et permet d'atteindre une résolution d'une dizaine de GHz au mieux, insuffisante



FIGURE 5.18 – Dispositif de façonnage de faisceau par micro-miroirs, réalisé au Laboratoire Aimé Cotton.



FIGURE 5.19 – Façonnage de faisceau laser : spectre expérimental à 4 raies de 500 mW chacune, et de largeur environ 50 GHz.

pour notre application. En effet, avec le réseau seul, la formule du pouvoir de résolution est $\nu/\Delta\nu = N$ où N est le nombre de traits couverts par le faisceau, et vaut environ 3.5 10^4 traits pour une résolution de 10 GHz. Le réseau utilisé comporte 2000 traits par mm, donc il faudrait couvrir environ 12 cm de réseau pour obtenir la résolution de 10 GHz. Cette résolution est déjà difficile à atteindre, car il est difficile de couvrir déjà plus de 1 cm du réseau en conservant les propriétés gaussiennes du faisceau, sans trop d'aberrations.

Le faisceau incident (large spectralement), à sa sortie de l'amplificateur ("Tapered Amplifier", TA), est envoyé sur le réseau afin de séparer spatialement les différentes fréquences. Celles-ci sont alors dirigées vers la matrice de micro-miroirs, qui, en s'inclinant, permettent de rejeter une partie du spectre. La partie du spectre qui est conservée effectue le chemin inverse afin de recombiner les longueurs d'onde, le faisceau est ensuite prêt à être utilisé. Un exemple de spectre obtenu est donné en figure 5.19.

L'idée est d'ajouter un VIPA dans le dispositif existant pour façonner des raies encore plus fines. En effet, si on refait le calcul avec le pouvoir de résolution du réseau seul pour une résolution de 400 MHz. On trouve qu'il faudrait couvrir plus d'une dizaine de cm de réseau pour obtenir la résolution de 400 MHz. Cela est techniquement très difficile à obtenir. Le VIPA va permettre d'atteindre cette résolution bien plus aisément. A ce titre nous avons donc fait l'acquisition d'un VIPA d'intervalle spectral libre 30 GHz de LightMachinery. Ses caractéristiques sont les suivantes :

- Le matériau situé entre les lames est un type de verre, appelé "Fused Silica", d'indice optique 1.45234.
- La distance t entre les deux lames est de 3.371 mm.
- Sa longueur L est de 16.5 mm.
- L'intervalle spectral libre est précisément de 30.35 GHz.

Le fournisseur met à disposition sur son site un logiciel de calcul de la résolution du VIPA, basé sur les expressions que nous avons déjà présentées [100]. Avec ces paramètres, on obtient, via le logiciel VIPA designer de LightMachinery, le tableau 5.2.

Finesse	72.2
Intervalle spectral libre	$30.35~\mathrm{GHz}$
Angle d'incidence	1.47 degrés
Largeur de bande	$0.42~\mathrm{GHz}$

TABLE 5.2 – Quelques paramètres disponibles via le logiciel VIPA designer, de Light-Machinery, pour le VIPA disponible au LAC.

La donnée importante sur tous les éléments montrés sur le tableau 5.2 est la largeur de bande (en largeur à mi hauteur), qui est, pour le VIPA qu'on a décrit, de 420 MHz. Cela correspond environ à la résolution qu'on peut espérer atteindre avec notre dispositif. La puissance optique du faisceau initial (de l'ordre du W) déterminera le nombre de raies THz à créer pour que chacune d'elle ait une puissance suffisante pour ensuite effectuer les transitions atomiques voulues.

Aujourd'hui, une partie de l'équipe s'attèle à façonner un spectre large autour de 800 nm, pour vérifier le nombre de raies que l'on peut façonner, la résolution sur leur largeur et la puissance que l'on peut donner à chacune. Parallèlement, avec mon directeur de thèse, j'ai mis en place un schéma de détection synchrone pour mesurer les fréquences THz et leur puissance que l'on peut obtenir avec le photomixeur Toptica à 800 nm.

On possède deux sources à 850 nm : une diode ainsi qu'un Ti :Sa. Les deux faisceaux doivent être injectés dans le photomixeur fibré avec la même polarisation. De plus, on doit pouvoir mesurer la longueur d'onde de chaque faisceau, et l'un des deux (la diode) servira aussi à l'excitation 6s-6p du césium sur l'expérience. Pour réaliser le montage optique :

- On dispose une lame demi-onde et un cube polariseur en sortie de chaque source pour régler sa polarisation.
- Chacune est injectée dans un coupleur à maintien de polarisation : 50/50 pour la diode, 90/10 pour le Ti :Sa qui est plus puissant (figure 5.20).

Sur la figure 5.20, on donne le schéma mais aussi les puissances obtenues pour une polarisation (verticale) en sortie du dispositif, avant injection dans le photomixeur.

En ce qui concerne la détection, on a réalisé un montage de détection synchrone, avec un "Lock-in amplifier" Stanford Research Systems. L'idée est de reproduire le dispositif de la figure 5.21 réalisé par le fournisseur de la lampe à arc de mercure dont nous disposons



FIGURE 5.20 – Schéma du montage optique pour injection des deux faisceaux à 850 nm dans le photomixeur avec la même polarisation.



FIGURE 5.21 – Exemple de montage de détection synchrone avec une source THz et un module Lock-in Amplifier Stanford Research System SR830.

(ScienceTech). Pour cela, on utilise le détecteur pyroélectrique présenté au chapitre 4 qui pourra mesurer la puissance THz. On place devant lui un hacheur mécanique, et une seconde source lumineuse est également hachée à la même fréquence, mesurée par une photodiode dont le signal sert de référence au module électronique. Le photomixeur est placé devant le détecteur, à la distance focale de la lentille de silicium montée sur le photomixeur.

L'objectif est d'abord de vérifier le fonctionnement du photomixeur, ainsi que de notre dispositif de détection. Donc, dans un premier temps, même si les puissances optiques sont faibles, cela reste suffisant pour cet objectif. Par la suite, on pourra changer de diode pour en choisir une de plus forte puissance, mais on peut également limiter le nombre de raccords dans le montage ou limiter la perte qu'ils induisent, en n'utilisant que des fibres de même type (FC/PC ou FC/APC) ou utiliser un amplificateur, type Tapered Amplifier (TA). Enfin, à terme, le photomixeur sera utilisé avec l'ensemble VIPA+réseau, montage dans lequel un amplificateur TA est utilisé, et la puissance devrait en principe être suffisante.

A ce jour, le photomixeur TOPTICA qui nous a été livré ne fonctionne pas encore, a été envoyé deux fois en réparation, notamment pour un défaut de connexion et de polissage de la fibre d'injection. Les mesures prévues ont donc pris plusieurs mois retard.

5.4 Conclusions

Au cours de ce chapitre, nous avons pu identifier une technologie qui pourrait permettre l'émission de faisceau THz dans la gamme 0.2 à 2 THz imposée par la désexcitation de l'atome d'antihydrogène. Il s'agit de photomixeur. Ce genre de dispositif permet la conversion de longueurs d'onde optiques en THz en faisant battre des faisceaux décalés en fréquence. Il a été montré que pour cela, il n'était pas nécessaire d'utiliser deux lasers différents, et que les différents modes d'une même diode par exemple peuvent donner lieu à un faisceau THz. De plus, dans la littérature [98], il a été montré qu'à l'aide de deux éléments dispersifs : un VIPA et un simple réseau, et un modulateur optique (SLM, matrice de micro-miroirs) il était possible de façonner un spectre dont la largeur des raies qui le composent est inférieure au GHz. Ainsi, en ajoutant un VIPA sur le montage existant au Laboratoire Aimé Cotton, destiné à l'origine au refroidissement de niveaux vibrationnels de molécules, il est théoriquement possible d'obtenir des raies de 400 MHz de large environ. Grâce à un photomixeur, on espère pouvoir obtenir de 1 μ W à 1 mW pour chaque raie, avec un très bon dispositif. le cahier des charges concernant les puissances et les largeurs nécessaires à notre application donnaient une puissance de l'ordre de 10 $\mu W/cm^2$ pour des largeurs allant de 5 GHz à 500 MHz (on peut diminuer la largeur quand n diminue car l'effet diamagnétique élargit moins les transitions). Donc le dispositif envisagé doit permettre de réaliser la désexcitation de l'antihydrogène dans les 10 μ s prévues avec un très bon photomixeur.

Les études expérimentales sont maintenant en cours. De plus, étant donnés les progrès très rapides des sources dans le domaine THz, on peut espérer pouvoir obtenir des puissances plus importantes aux grandes fréquences d'ici quelques années, ce qui faciliterait grandement les réalisations expérimentales.

Conclusion générale

Dans ce mémoire, nous avons utilisé des atomes de Rydberg dans deux applications distinctes mais reposant sur le même phénomène, à savoir l'ionisation en champ électrique de ce type d'atomes. Dans un premier temps nous avons exploité cette caractéristique de valeur très précise de champ électrique d'ionisation des atomes de Rydberg pour ioniser un grand nombre d'atomes au même instant, au même endroit, presque sans donner d'énergie cinétique à l'électron émis. Ensuite, cette caractéristique nous a été utile pour sonder les populations de niveaux de Rydberg variés. On ajoutera qu'on a également tiré parti du fait que les transitions entre niveaux atomiques de très grands nombres quantiques principaux, et de grands moments angulaires, se font à des fréquences micro-onde ou THz.

Nous avons abordé au cours de la première partie de ce manuscrit la nécessité de disposer aujourd'hui de source monochromatique d'électrons. Cette nécessité intervient notamment en physique des matériaux, où la physique de l'imagerie et de la modification d'échantillons à l'échelle moléculaire détermine les performances de la source développée au sein du projet HREELM (High Resolution Electron Energy Loss Microscope). Les critères sont nombreux, mais les trois plus importants sont la résolution en énergie, la résolution spatiale ainsi que le courant de la source. Les deux premiers chapitres de la thèse se sont attachés principalement à montrer la faisabilité d'une source de dispersion en énergie de l'ordre du meV. A cette fin, nous avons premièrement développé un modèle permettant de décrire l'ionisation d'un atome alcalin par la vision simple d'un croisement de deux niveaux atomiques en champ électrique. Il s'agit d'un modèle à deux niveaux dont les paramètres sont déterminés par l'effet du cœur ionique de l'atome de césium. En effet, c'est la présence de ce cœur qui est à l'origine du processus si particulier d'ionisation des atomes alcalins en champ électrique. Le modèle à deux niveaux décrit dans le premier chapitre a permis de d'estimer la dispersion en énergie réalisable par cette technique. Les mesures expérimentales qui ont suivi ont elles permis de montrer les limites du modèle théorique, et nous avons démontré qu'une dispersion de l'ordre de quelques meV était déjà possible, dans des conditions annoncées défavorables par la théorie. C'est le mélange des états (n, l, m) en champ électrique qui permet de surmonter la condition de croisement isolé donnée par le modèle, qui, dans le cas du césium, imposait l'excitation d'états de grandes valeurs de m pour assurer la réussite du processus. Une seconde technique de source, basée sur la photoionisation d'atomes de césium piégés dans un piège magnéto-optique a été étudiée en Allemagne, à Mayence dans le groupe du Dr. G. Schönense où j'ai été amenée à me rendre pour participer notamment à l'installation du piège. Si la source en elle-même n'autorise pas le courant suffisant, plusieurs pistes ont été suivies pour diminuer la dispersion en énergie. Dans l'hypothèse où la dispersion en énergie pouvait effectivement être réduite à moins de 1 meV, nous avons décrit le dispositif mis en œuvre pour améliorer la résolution en énergie du détecteur à ligne à retard placé après un tube de temps de vol, et être en capacité de mesurer des dispersions en énergie bien inférieures au meV. Finalement, parmi les deux sources proposées, aucune ne remplit toutes les conditions requises, et un compromis doit être trouvé. Malgré tout, atteindre une dispersion en énergie
de l'ordre du meV semble aujourd'hui être possible.

Dans la seconde partie du manuscrit, nous avons étudié un moyen de créer un plus grand nombre d'atomes d'antihydrogène dans le cadre de la recherche sur l'antimatière au CERN. Dans le cas d'une production pulsée de ces anti-atomes par mécanisme d'échange de charge, les atomes d'antihydrogène sont formés dans des états de Rydberg de très grands n, typiquement 30. Pour des études futures, et en particulier des tests de gravité, il est nécessaire que tous ces atomes d'antihydrogène se trouvent sur l'état fondamental. Du fait de la présence de tous les états l, m et en particulier donc des états de grands moments angulaires, l'idée proposée est de désexciter ces atomes par pas de $\Delta n=1$, qui nécessite alors un spectre de fréquences large, allant de 0.2 à 2 THz environ. De plus, la vitesse de l'antihydrogène formé ne nous laisse que 10 μ s pour procéder à la cascade de désexcitation. Dans un premier temps nous avons donc posé les contraintes de puissances sur la ou les sources qui effectueront les transitions. Ces puissances vont de quelques dizaines de $\mu W/cm^2$ pour une source fine (5 GHz), à plusieurs mW/cm² pour une source large (2 THz). En revanche, pour une source large, il faudra être vigilant tout de même à son spectre, car les petites longueurs d'onde sont aussi responsables de la photoionisation d'atomes, source de pertes dans notre cas. Ainsi, si bien sûr de multiples sources fines assureront la cascade, on a pu voir qu'un simple corps noir de température autour de 1000 K délivrait apparemment suffisamment de puissance également. Une telle source munie d'un filtre pour s'affranchir de la photoionisation semblerait donc être une solution envisageable et peu coûteuse. Des simulations, basées sur un algorithme de Montecarlo Cinétique vont dans le sens de ce résultat. L'idée de filtrer une source large a été étudiée et a montré qu'elle était efficace et demandait plus de puissance que celles données par le simple modèle à deux niveaux. La seconde solution proposée alors pour effectuer la cascade de désexcitation est le façonnage de faisceau, avec des raies de 5 GHz à 500 MHz de large (en allant de 0.2 THz à 2 THz), et délivrant chacune 10 μ W/cm² de puissance.

C'est ainsi que nous avons mesuré, à l'aide d'un détecteur pyroélectrique, les puissances délivrées par différentes lampes, considérées en première approximation comme des corps noirs, et caractérisé différents matériaux pour filtrer le spectre des lampes. La question était aussi de savoir s'il était possible de transporter la puissance des lampes sur une certaine distance, et trouver à ce titre un bon guide d'onde THz. Finalement, un corps noir filtré par quelques mm de polyéthylène haute densité et guidé par un tube de cuivre sur plusieurs dizaines de cm donne des résultats très satisfaisants, car la puissance délivrée reste supérieure aux spécifications formulées. Une lampe type corps noir a aussi démontré expérimentalement la réduction de la durée de vie d'états de Rydberg de césium. Le phénomène de photoionisation semble malgré tout relativement important à haute température de corps noir. Or, aujourd'hui l'offre de sources THz s'agrandit, et nous avons pu constater que la technologie de mélange de fréquences, les photomixeurs, pouvaient permettre d'atteindre par transition une puissance suffisante. C'est pourquoi l'idée du façonnage de faisceau pour utilisation du photomixeur avec un spectre de plusieurs raies a été présentée. D'après les calculs sur la résolution d'un élément dispersif, le VIPA, qui étale spatialement les fréquences sur un intervalle spectral libre, associé à un réseau qui sépare, lui, les fréquences séparées de ce même intervalle spectral libre, il est possible de façonner des raies d'une largeur de moins de 500 MHz de largeur. Cette largeur est donc compatible avec l'idée de plusieurs raies façonnées dans un même spectre. Avec un très bon photomixeur, on peut espérer que chaque raie ainsi façonnée, de largeur entre 5 GHz et 500 MHz, aura une puissance d'au moins 10 μ W/cm² qui permettra une désexcitation d'antihydrogène efficace.

Annexes

Annexe A

Compléments sur l'atome d'hydrogène et les alcalins

Dans cette annexe, on va détailler les calculs permettant d'obtenir la majorité des résultats concernant l'hydrogène et utilisés au chapitre 1. En particulier on décrira l'effet Stark de l'hydrogène, sur lequel on s'est appuyé pour ensuite décrire l'ionisation en champ électrique de l'atome de césium.

On développera également plus la méthode BKW qui permet de retrouver l'expression des énergies des niveaux atomiques des atomes alcalins, ainsi que l'expression du défaut quantique en fonction de la polarisabilité du cœur.

A.1 Atome d'hydrogène

A.1.1 Niveaux d'énergie et fonctions d'onde

Quand on étudie l'atome d'hydrogène en mécanique quantique, on est rendu à étudier deux particules en interaction coulombienne : le proton et l'électron. Comme en mécanique classique cela revient à étudier le mouvement d'une particule de masse réduite $\mu = \frac{m_p m_e}{m_p + m_e}$. Dans le référentiel du centre de masse, l'hamiltonien qui décrit cette interaction s'écrit :

$$\widehat{H} = \frac{\widehat{p}^2}{2\mu} + V(\widehat{r}) \tag{A.1}$$

Avec $V(r) = -\frac{e^2}{4\pi\epsilon_0|\hat{r}|}$ le potentiel coulombien qui est un potentiel central. On recherche les états propres, c'est-à-dire qu'on veut résoudre l'équation suivante :

$$\widehat{H}|\Psi\rangle = E|\Psi\rangle \tag{A.2}$$

En coordonnées sphériques cette équation devient :

$$\left(-\frac{\hbar^2}{2\mu}\Delta + V(r)\right)\Psi(r,\theta,\phi) = E\Psi(r,\theta,\phi)$$
(A.3)

Avec $\Delta \Psi = \frac{1}{r} \frac{\partial^2}{\partial r^2} (r\Psi) + \frac{1}{r^2} (\frac{1}{\sin\theta} \frac{\partial}{\partial \theta} (\sin\theta \frac{\partial \Psi}{\partial \theta}) + \frac{1}{\sin^2\theta} \frac{\partial^2 \Psi}{\partial \phi^2})$ où le facteur après le $\frac{1}{r^2}$ s'écrit aussi $-\frac{\hat{L}^2}{\hbar^2} \Psi$ et est l'énergie cinétique de rotation.

L'équation (A.3) devient alors :

$$\left(-\frac{\hbar^2}{2\mu}\frac{1}{r}\frac{\partial^2}{\partial r^2}r + \frac{\widehat{L}^2}{2\mu r^2} + V(r)\right)\Psi(r,\theta,\phi) = E\Psi(r,\theta,\phi)$$
(A.4)

Il y a invariance par rotation donc il existe une base propre commune à $\{\hat{H}, \hat{L}^2, \hat{L}_z\}$. C'est-à-dire que l'on peut écrire la fonction d'onde $\Psi(r, \theta, \phi)$ comme suit :

$$\Psi(r,\theta,\phi) = R(r)Y_{l,m}(\theta,\phi) \tag{A.5}$$

Où $Y_{l,m}(\theta, \phi)$ sont les harmoniques sphériques et $\widehat{L}^2 Y_{l,m}(\theta, \phi) = \hbar^2 l(l+1) Y_{l,m}(\theta, \phi)$. On obtient donc l'équation radiale suivante :

$$\left(-\frac{\hbar^2}{2\mu}\frac{1}{r}\frac{d^2}{dr^2}r + \frac{\hbar^2 l(l+1)}{2\mu r^2} + V(r)\right)R(r) = ER(r)$$
(A.6)

Et si on introduit la fonction d'onde réduite u(r) = rR(r) avec $\int_0^\infty |u(r)|^2 dr = 1$. On obtient :

$$-\frac{\hbar^2}{2\mu}\frac{d^2u}{dr^2} + V_{eff,l}(r)u(r) = E \ u(r)$$
(A.7)

Où $V_{eff,l}(r) = V(r) + \frac{\hbar^2 l(l+1)}{2\mu r^2}$ est le potentiel effectif.

On remarque qu'on a une équation pour chaque valeur de l, mais que cette équation est aussi indépendante de m. Cela signifie que chaque niveau est dégénéré 2l + 1 fois.

On peut montrer que les fonctions d'onde s'écrivent $\Psi(r, \theta, \phi) = R_{n,l}(r)Y_{l,m}(\theta, \phi)$ et que $R_{n,l}(r) = \frac{u_{n,l}(r)}{r} = [polynôme \ de \ degré \ n'] \times r^l exp(-\frac{r}{na_0})$, avec n' = n - l - 1.

Les niveaux d'énergie de l'atome d'hydrogène qui apparaissent sur la figure A.1 sont donnés par :

$$E_n = -\frac{E_I}{n^2} \tag{A.8}$$

Avec $E_I = \frac{\mu}{m_e} Ry$ est l'énergie d'ionisation de l'hydrogène, et Ry est la constante de Rydberg.

Il faut noter que dans le cas de l'atome d'hydrogène il existe des solutions analytiques à l'équation de Schrödinger car on est réduit au cas d'une particule dans un potentiel central. Cependant, ce n'est plus le cas lorsqu'on considère des atomes à plusieurs électrons, ce n'est plus un système à deux corps et il n'est plus possible de trouver des solutions exactes. On procèdera donc par des approximations semi-classique dans le cas des alcalins.

A.1.2 Effet d'un champ électrique, effet Stark

Lorsqu'on applique un champ électrique à l'atome d'hydrogène, on change la symétrie du problème (par exemple champ \overrightarrow{E} selon (\overrightarrow{Oz})). C'est-à-dire que la symétrie n'est plus sphérique et il convient donc d'adopter un système de coordonnées paraboliques. Ce système est particulièrement bien adapté puisqu'il permet d'écrire l'équation de Schrödinger pour l'atome d'hydrogène sous la forme, [6] :

$$\Psi(\zeta,\eta,\phi) = f_1(\zeta)f_2(\eta)e^{im\phi} \tag{A.9}$$



FIGURE A.1 – Schéma des niveaux d'énergie de l'atome d'hydrogène.

Avec :

$$\begin{cases} \zeta = r + z \\ \eta = r - z \\ \phi = \arctan \frac{y}{x} \end{cases}$$
(A.10)

Les surfaces définies par $\zeta = cste$ et $\eta = cste$ sont des paraboloïdes de révolution de foyer 0 et d'axe z, d'où le nom de coordonnées paraboliques. Ainsi, on peut séparer les variables et l'équation de Schrödinger peut alors s'écrire comme un système de deux équations indépendantes :

$$\begin{cases} \frac{d}{d\zeta} \left(\zeta \frac{df_1}{d\zeta}\right) + \left(\frac{E\zeta}{2} + Z_1 - \frac{m^2}{4\zeta} - \frac{F\zeta^2}{4}\right) f_1 = 0\\ \frac{d}{d\eta} \left(\eta \frac{df_2}{d\eta}\right) + \left(\frac{E\eta}{2} + Z_2 - \frac{m^2}{4\eta} - \frac{F\eta^2}{4}\right) f_2 = 0\\ Z_1 + Z_2 = 1 \end{cases}$$
(A.11)

Il n'y a donc plus un nombre quantique qui apparaît (le nombre quantique principal habituellement) mais deux, que l'on notera n_1 et n_2 , et qu'on appelle nombres quantiques paraboliques. Ces nombres vérifient l'égalité suivante :

$$n = n_1 + n_2 + |m| + 1 \tag{A.12}$$

On notera que le nombre quantique azimutal m apparaît au carré dans les équations, son signe n'intervient donc pas, et il existe alors encore une dégénérescence en m.

Pour faire le changement de base, et passer des états $|n \ l \ m \rangle$ aux états $|n \ n_1 \ m \rangle$ (puisque n_1 et n_2 sont liés), il suffit d'introduire un coefficient de Clebsch-Gordan, [7] :

$$\langle n, n_1, m | n, l, m \rangle = \langle \frac{n-1}{2} \frac{m+n_1-n_2}{2}, \frac{n-1}{2} \frac{m-n_1+n_2}{2} | lm \rangle$$
 (A.13)

Cela aura pour effet, notamment, qu'un état en champ nul se retrouvera, une fois le champ appliqué, mélangé sur tous les états paraboliques.

A.1.3 Effet Stark linéaire de l'hydrogène

On va considérer ici le champ électrique appliqué à l'atome d'hydrogène comme une perturbation, [6]. Soit \overrightarrow{E} dans le sens des z positifs. Le moment dipolaire électrique s'écrit $\overrightarrow{\mu} = -e_0 \overrightarrow{r}$, où e_0 est la charge de l'électron en valeur absolue. Ainsi, l'énergie d'interaction de l'atome avec le champ est $-\overrightarrow{\mu}$. \overrightarrow{E} , l'opérateur correspondant s'écrira donc (en coordonnées paraboliques comme précédemment) :

$$V = e_0 \mathbf{E}.\mathbf{R} = e_0 E Z = e_0 E \frac{\zeta - \eta}{2} \tag{A.14}$$

Si on considère des états $|n_1 n_2 m\rangle$ qui ont le même nombre quantique principal n, alors les seuls éléments non nuls de la matrice dipolaire seront les éléments diagonaux. Après calcul, pour correction de première approximation, on trouve que les niveaux sont décalés d'une énergie :

$$E_n^{(1)} = \frac{3}{2}e_0 a_0 E n(n_1 - n_2) \tag{A.15}$$

C'est l'effet Stark linéaire.

On obtient en particulier pour des niveaux extrêmes $(n_1 = n - 1 \text{ et } n_2 = 0)$ qu'ils sont séparés de $\frac{3}{2}e_0a_0En(n-1)$, ce qui est proportionnel à n^2 . Ainsi, plus l'électron est éloigné du noyau, plus son moment dipolaire est grand.

En revanche, en champ nul, un niveau est dégénéré $2n^2$ fois, tandis qu'en champ, il y a (2n - 1) niveaux non dégénérés. La levée de dégénérescence n'est donc pas complète au premier ordre, et il faudrait calculer l'effet quadratique.

Un calcul jusqu'au quatrième ordre a été effectué afin de déterminer les énergies Stark en unités atomiques [13] :

$$\begin{aligned} & \left(E_n(F,n,n_1,m) = \\ & -\frac{1}{2n^2} + \frac{3}{2}n(n_1 - n_2)F \\ & -\frac{1}{16n^4}(17n^2 - 3(n_1 - n_2)^2 - 9m^2 + 19)F^2 \\ & +\frac{3}{32}n^7(n_1 - n_2)(23n^2 - (n_1 - n_2)^2 + 11m^2 + 39)F^3 \\ & -\frac{1}{1024}n^{10}(5487n^4 + 35182n^2 - 1134m^2(n_1 - n_2)^2 + 1806n^2(n_1 - n_2)^2 \\ & -3402n^2m^2 + 147(n_1 - n_2)^4 - 549m^4 + 5754(n_1 - n_2)^2 - 8622m^2 + 16211)F^4 \end{aligned}$$
(A.16)

Les états tels que $n_1 < n_2$ sont appelés états rouges, leur énergie de liaison augmente, et au contraire, les états dont l'énergie de liaison diminue, $n_2 < n_1$, sont appelés états bleus. L'état le plus rouge d'une multiplicité (ie $n_1 = 0$) croise l'état le plus bleu (ie $n_2 = 0$) de la multiplicité inférieure au champ de croisement F_c qui vaut $\frac{1}{3n^5}$ en unités atomiques.

Nous disposons maintenant des éléments permettant de comprendre le processus d'ionisation en champ électrique de l'atome d'hydrogène.



FIGURE A.2 – Diagramme Stark de l'hydrogène autour du niveau n=15 et m=0, calculé avec la formule (1.14).

A.2 Alcalins : méthode BKW

Les énergies des différents états d'un atome alcalin s'écrivent sous une forme proche de celle que l'on a utilisé pour l'atome d'hydrogène :

$$E_n = -\frac{Ry}{\alpha_{Cs}(n-\delta_l)^2} \tag{A.17}$$

Où Ry est la constante de Rydberg, et δ_l qu'on appelle le défaut quantique.

Il existe plusieurs méthodes pour retrouver ce résultat. L'une d'elles, l'approximation BKW (pour Brillouin, Kramers et Wentzel, développée en 1926), est une méthode semi-classique qui permet de retrouver l'expression des fonctions d'onde dans le cas d'un atome hydrogénoïde. De fait, on pourra utiliser cette méthode pour écrire le potentiel de cœur de l'atome alcalin. L'idée sur laquelle repose cette approximation est de développer les fonctions d'onde asymptotiquement au premier ordre de la puissance de \hbar , aussi appelé quantum d'action. En effet, l'équation de Schrödinger dérive de l'équation des ondes et il est donc naturel de retrouver les résultats de la mécanique classique quand \hbar tend vers 0.

Soit $\Psi(r)$ la fonction d'onde d'une particule de masse non nulle μ évoluant dans un potentiel central (Ψ est solution stationnaire de l'équation Schrödinger). On écrit $\Psi(R)$ à l'aide des puissances de \hbar comme indiqué plus haut.

$$\Psi(r) = e^{\frac{i}{\hbar} \left[\sigma_0(r) + \frac{\hbar}{i} \sigma_1(r) + \left(\frac{\hbar}{i}\right)^2 \sigma_2(r) \right]}$$
(A.18)

Si on ne considère que l'ordre 0, en injectant l'expression (A.18) dans l'équation de Schrödinger, on obtient les résultats de l'approximation classique, à savoir :

$$\Psi(r) \approx e^{\frac{i}{\hbar} \pm \int p} \tag{A.19}$$

Avec p l'impulsion de la particule, définie par $p(r) = \sqrt{2\mu(E - V(r))}$.

L'approximation BKW, elle, consiste à considérer l'ordre 1 en \hbar . On utilise donc à nouveau l'expression (A.18) dans l'équation de Schrödinger en ne gardant que les termes en \hbar et donc en σ_1 , et on utilise les résultats donnés par l'ordre 0. On montre alors (dans [6]et [21]) qu'on peut écrire $\Psi(R)$ sous la forme :

dispose donc des éléments suivants :

$$\Psi^{BKW}(r) = \frac{C^+}{\sqrt{|p(r)|}} e^{\frac{i}{\hbar} \int p} + \frac{C^-}{\sqrt{|p(r)|}} e^{-\frac{i}{\hbar} \int p}$$
(A.20)

Cette approximation n'est valable que si le potentiel V varie lentement, de façon à ce que la particule s'adapte au nouveau potentiel (mathématiquement, cela se traduit par $\left|\frac{d\overline{\lambda}}{dr}\right| \ll 1$ avec $\overline{\lambda} = \frac{\hbar}{p(r)}$ est la longueur d'onde de De Broglie réduite). Cette condition de validité apparaît quand on considère la résolution de l'équation de Schrödinger à l'ordre 2. De plus, cette approximation BKW ne sera pas valable aux points dits de retournements classiques, qui sont les valeurs de r pour lesquelles p(r) s'annule (correspondant classiquement au fait que la particule fait demi-tour). Il faudra alors utiliser un développement limité du potentiel, ce qui donne une fonction d'Airy comme fonction d'onde (détaillé dans [21]). On

- L'expression de la fonction d'onde en approximation BKW en dehors des points de retournements classiques.
- L'expression de la fonction d'onde pour ces deux points particuliers.

Il reste alors à étudier le raccordement de ces deux expressions différentes entre les deux points de retournement, soit entre la zone classiquement interdite (V(r) > E) et la zone classiquement permise (V(r) < E). Il est montré que pour joindre la zone interdite vers la zone permise, la condition de raccord des constantes donne que la fonction d'onde doit s'écrire :

$$\Psi(r) = \frac{C}{\sqrt{p(r)}} \cos\left(\frac{1}{\hbar} \left| \int_{R_{ret}}^{r} p(r') dr' \right| - \frac{\pi}{4} \right)$$
(A.21)

Ainsi, si l'on veut que cette fonction soit valable à la fois pour les deux points de retournements (interne et externe), il est alors nécessaire que la somme des phases des cosinus soit un multiple de π . De plus, la condition de normalisation $\int |\Psi(r)|^2 dr = 1$ permet de déterminer la constante C, pourvu qu'on fasse l'approximation suivante : le cosinus varie rapidement (grande vitesse de la particule) entre les deux points de retournement (R_{int} et R_{ext}) et on peut prendre la valeur moyenne du cosinus au carré qui est $\frac{1}{2}$ au lieu de calculer le cosinus carré de l'intégrale quand on normalise la fonction d'onde. On obtient alors la condition de raccordement et la fonction d'onde pour les états liés :

$$\begin{cases} \frac{1}{\pi\hbar} \int_{R_{int}}^{R_{ext}} p(r) dr = n + \frac{1}{2} \\ \Psi(r) = \sqrt{\frac{2\omega\mu}{\pi p(r)}} \cos\left(\frac{1}{\hbar} \int_{R_{int}}^{r} p(r') dr' - \frac{\pi}{4}\right) \end{cases}$$
(A.22)

Dans la condition de raccordement (première ligne du système (A.22)), le nombre n est le nombre quantique principal et correspond au nombre de zéro de la fonction d'onde Ψ . De plus, ω dans la seconde ligne est la pulsation du mouvement classique et est définie par :

$$\omega = \frac{2\pi}{T} = \frac{2\pi}{2\mu \int_{R_{int}}^{R_{ext}} p^{-1}(r)dr}$$
(A.23)

Ainsi, on comprend bien que le traitement de l'atome de Rydberg alcalin, et ici le césium, est très proche de celui fait usuellement pour l'atome d'hydrogène, à quelques différences près dues à la présence de ce potentiel de cœur qui intervient à courte distance. On peut utiliser l'approximation BKW qui donne l'expression de la fonction d'onde des états liés pour calculer l'effet du potentiel de cœur (décalage en énergie du à sa présence), en écrivant celui-ci comme une perturbation du hamiltonien \hat{H} . Pour cela il suffit de calculer :

$$\delta E_{coeur} = \langle nl | V_{coeur} | nl \rangle \tag{A.24}$$

On utilise alors l'expression de la fonction d'onde donnée dans le système (A.22) et l'expression du potentiel de coeur (potentiel de polarisation dans [101]) qui est : $-\frac{\alpha}{2r^4}$, avec α la polarisabilité du cœur. On utilisera le fait que la fonction d'onde peut s'écrire en fonction du nombre quantique principal n plutôt que de la pulsation de l'orbite classique ω (voir [101]) :

$$\sqrt{\frac{2\omega}{\pi}} = \sqrt{\frac{2}{\pi n^3}} \tag{A.25}$$

On obtient alors l'expression suivante pour l'écart en énergie créé par le potentiel de cœur (le cosinus oscille assez rapidement pour ne retenir que la valeur moyenne du cosinus au carré) :

$$\delta E_{coeur} = -\frac{\alpha}{2\pi n^3} \int_{R_{int}}^{R_{ext}} \frac{dr}{r^4 p(r)}$$
(A.26)

On rappelle l'expression du moment radial de l'électron p(r):

$$p(r) = \sqrt{\mu \left(2E_{nl} + \frac{1}{r} - \frac{(l+1/2)^2}{r^2}\right)}$$
(A.27)

On a ici utilisé la correction de Langer, qui transforme le terme l(l+1) en $(l+1/2)^2$ ([101]). D'après cette expression du moment, puisqu'on cherche l'écart par rapport à l'énergie de l'hydrogène en $1/2n^2$, on obtient alors :

$$\delta E_{coeur} = \frac{\alpha}{2\pi} \int_{R_{int}}^{\infty} \frac{dr}{r^3 \sqrt{2r - (l + 1/2)^2}}$$
(A.28)

Ceci revient à calculer, en faisant le changement de variable $2r = ((l+1/2)/\sin\phi)^2$:

$$\delta E_{coeur} = \frac{4\alpha}{\pi n^3 (l+1/2)^5} \int_0^{\pi/2} \sin^4 \phi d\phi$$
 (A.29)

L'intégrale sur ϕ valant $\frac{3\pi}{16}$, on peut finalement écrire que l'écart en énergie du à la présence du cœur chargé positivement peut s'écrire sous la forme :

$$\delta E_{coeur} = \frac{\delta_l}{n^3} \tag{A.30}$$

Où δ_l est ce que l'on appelle le défaut quantique (qui est aussi le déphasage de la fonction d'onde du césium par rapport à l'hydrogène) et s'écrit :

$$\delta_l = \frac{3\alpha}{4(l+1/2)^5}$$
(A.31)

En utilisant la formule du développement limité des expressions de la forme $(1 + x)^{\beta}$, on peut montrer que l'énergie d'un état n, l d'un atome alcalin s'écrit :

$$E_{nl} = \frac{1}{2n^2} - \frac{\delta_l}{n^3} = \frac{1}{2(n-\delta_l)^2}$$
(A.32)

On ajoute, que grâce à (A.30), on obtient directement le couplage entre deux états (n, l, m) et (n', l', m') par le potentiel de cœur :

$$\langle n, l, m | V_{coeur} | n', l', m' \rangle \sim -\frac{\delta_l}{\sqrt{n^3 n'^3}}$$
 (A.33)

En effet, il s'agit du même calcul, mais entre les états (n, l, m) et (n', l', m'). Au lieu de n^3 on obtient alors $\sqrt{n^3}\sqrt{n'^3} = \sqrt{n^3n'^3}$.

Annexe B

Le corps noir

Dans cette annexe on s'intéresse au taux de transition par émission spontanée du Césium entre deux niveaux de Rydberg notamment. Pour cela on va calculer les éléments de matrice dipolaire qui régissent l'interaction entre un atome et un champ extérieur. On calculera aussi les taux de transition stimulés par le corps noir.

Avant toute chose, présentons ce qui est appelé corps noir. Par définition un corps noir est un corps qui absorbe tout le rayonnement électromagnétique qu'il reçoit. C'est-à-dire qu'il ne réfléchit, ni ne diffuse, ni ne transmet ce rayonnement incident. On rencontre beaucoup de corps noirs au quotidien, le plus remarquable étant le Soleil. Une particularité de ce type d'objet est que la puissance qu'il émet dépend de sa température mais aussi de la fréquence émise. En réalité il n'existe pas de corps noir parfait, qui absorbe tous les rayonnements à toutes les fréquences.

B.1 La luminance énergétique et la luminance spectrale

Pour pouvoir décrire précisément le comportement d'un corps noir, il faut définir quelques notions, telles que la luminance énergétique et la luminance spectrale.

Tout corps, dit noir ou pas, émet ce que l'on appelle un rayonnement thermique. Celui-ci dépend entre autres de la température du corps. On nomme alors luminance énergétique la puissance émise dans une direction bien définie rapportée à l'unité d'angle solide et à l'unité de surface de l'émetteur (perpendiculaires à la direction choisie), comme l'indique la figure B.1.

Bien sûr, la puissance émise n'est pas la même pour toutes les fréquences, et c'est ainsi qu'on définit la luminance spectrale L_{ν} , qui, intégrée sur tout le spectre, redonne la luminance



FIGURE B.1 – Eléments géométriques pour le calcul de la luminance énergétique.

énergétique L:

$$L = \int_0^\infty L_\nu \, d\nu \tag{B.1}$$

B.2 La densité spectrale

La luminance du corps noir (notion de puissance) peut être directement reliée à la densité volumique d'énergie électromagnétique. Celle ci est bien connue en électromagnétisme et s'exprime en fonction des champs électrique \overrightarrow{E} et magnétique \overrightarrow{B} :

$$u(t) = \frac{\epsilon_0}{2} |\vec{E}|^2 + \frac{1}{2\mu_0} |\vec{B}|^2$$
(B.2)

Ici aussi on peut exprimer la densité volumique d'énergie à l'aide d'une densité spectrale u_{ν} , comme pour la luminance :

$$u(t) = \int_0^\infty u_\nu(\nu, T) \, d\nu \tag{B.3}$$

On peut montrer dans le cas d'un corps noir que luminance spectrale et densités spectrales sont des fonctions qui ne dépendent en réalité que de la fréquence et de la température :

$$L_{\nu} = \frac{c}{4\pi} u_{\nu}(\nu, T) \tag{B.4}$$

B.3 Approche corpusculaire

Le modèle le plus réaliste de corps noir est une enceinte très opaque dont la température est constante, elle est fermée à l'exception d'un petit trou dont les dimensions sont assez petites pour que la présence de cette ouverture ne perturbe en rien le confinement du rayonnement. Puisque l'on parle de champ électromagnétique, on peut tout aussi bien parler de photons. Et le rayonnement confiné dans l'enceinte décrite peut être vu comme un ensemble de photons piégés, on parle de gaz de photons. On rappelle qu'un photon est associé à une onde plane monochromatique décrite par un vecteur d'onde $\vec{k} = \frac{2\pi\nu}{c}\vec{u}$ (où \vec{u} est un vecteur unitaire). Il a une énergie $E = h\nu$ et une quantité de mouvement $\vec{p} = \hbar \vec{k}$. Le photon est un boson, et présente deux états de spin entier : +1 pour l'hélicité droite, -1 pour l'hélicité gauche. Ainsi, la statistique qui s'applique au gaz de photon est celle de Bose. Si on suppose que l'enceinte dont on parle est un cube de dimension L, on va déterminer U l'énergie électromagnétique à l'intérieure d'une telle boîte. Pour cela, on suppose aussi que les ondes présentes dans la boîte sont des ondes planes stationnaires, avec plusieurs modes possibles (modes d'oscillations).

L'énergie d'un mode est quantifiée, c'est-à-dire que seulement certaines énergies sont autorisées :

$$E_n = (n + \frac{1}{2})h\nu = (n + \frac{1}{2})\hbar\omega$$
(B.5)

Où n est un entier positif. Cela revient donc à dire que chaque mode d'oscillation peut exister dans une infinité d'états d'énergies, chaque énergie étant séparée de la valeur $\hbar\omega$. Par convention, lorsqu'on dit qu'un mode a une énergie E_n , cela signifie que ce mode contient n photons d'énergie $\hbar\omega$.

On va maintenant rechercher $P(E_n)$, qui est la probabilité pour qu'un mode ait une énergie E_n .

La statistique de Bose nous dit alors que cette probabilité peut s'écrire :

$$P(E_n) = Ae^{-E_n/kT} \tag{B.6}$$

Où A est un facteur de normalisation à déterminer. Pour cela on utilise le fait que la somme des probabilités sur tous les états possibles doit être égale à un. Soit :

$$\sum_{n=0}^{\infty} P(E_n) = A \sum_{n=0}^{\infty} e^{-E_n/kT} = A \sum_{n=0}^{\infty} e^{-n\hbar\omega/kT}$$
(B.7)

Et on reconnaît ici une somme de la forme $\sum_{n=0}^{\infty} x^n = 1 + x + x^2 + \dots$ avec $x \equiv e^{-\hbar\omega/kT}$ (qui est un nombre inférieur à 1) et qui converge en $\frac{1}{(1-x)}$. On en déduit donc que le facteur de normalisation que nous recherchons vaut (1-x) et qu'on peut ainsi écrire :

$$P(E_n) = (1 - e^{-\hbar\omega/kT})e^{-E_n/kT}$$
 (B.8)

Cela revient aussi à donner la probabilité P(n) pour qu'un mode de fréquence ω comporte n photons :

$$P(n) = (1 - e^{-\hbar\omega/kT})e^{-n\hbar\omega/kT}$$
(B.9)

La quantité qui nous intéresse maintenant est le nombre d'occupation d'un mode, soit le nombre moyen de photons qui occupe un mode de fréquence ω . On le note $\langle n \rangle$. On est donc ramené à calculer la somme suivante : $\langle n \rangle = \sum_{n=0}^{\infty} nP(n)$. On s'intéressera alors à la somme $\sum_{n=0}^{\infty} ne^{-n\hbar\omega/kT}$

 $\sum_{n=0}^{\infty} n e^{-n\hbar\omega/kT}.$

On remarque que celle-ci peut s'écrire sous la forme $-\frac{\delta}{\delta B} \sum e^{-Bn}$. Et si on utilise à nouveau l'expression de la somme des puissances de x, avec ici $x \equiv e^{-B}$ on obtient :

$$-\frac{\delta}{\delta B}\sum e^{-Bn} = -\frac{\delta}{\delta B}\left(\frac{1}{1-e^{-B}}\right) \tag{B.10}$$

On en déduit :

$$\langle n \rangle = \frac{e^{-\hbar\omega/kT}}{(1 - e^{-\hbar\omega/kT})} = \frac{1}{e^{\hbar\omega/kT} - 1}$$
(B.11)

De ce nombre d'occupation découle également la fonction de distribution de Planck : $\langle E_n \rangle = \frac{\hbar \omega}{e^{\hbar \omega/kT} - 1}.$

Cependant nous n'avons toujours pas déterminé l'énergie électromagnétique contenue dans la boîte considérée. Pour cela il nous faut à présent dénombrer les modes à l'intérieur de la cavité. Il suffit de déterminer le volume élémentaire d'un mode.

On a une superposition d'ondes planes de fréquence ν et de vecteur d'onde k. Chacune d'elle doit vérifier les conditions aux limites périodiques imposées par la boîte (en trois dimensions). Les coordonnées du vecteur d'onde peuvent alors s'écrire :

$$\begin{cases}
k_x = \frac{2\pi}{L} n_x \\
k_y = \frac{2\pi}{L} n_y \\
k_z = \frac{2\pi}{L} n_z
\end{cases}$$
(B.12)

Avec les n_x , n_y , n_z des entiers relatifs. Chaque mode occupera alors le volume suivant :

$$\Delta k_x \Delta k_y \Delta k_z = \frac{1}{2} \left(\frac{2\pi}{L}\right)^3 \tag{B.13}$$

Le facteur $\frac{1}{2}$ traduit les deux hélicités du photon.

On cherche maintenant à savoir, dans l'espace des vecteurs d'onde, combien de modes on

peut placer dans une coquille sphérique élémentaire, c'est-à-dire de volume $4\pi k^2 dk$. Soit dg cette quantité :

$$dg = \frac{4\pi k^2 dk}{\Delta k_x \Delta k_y \Delta k_z} = V \frac{k^2 dk}{\pi^2}$$
(B.14)

Soit, en fonction de la fréquence ω :

$$dg = V \frac{\omega^2 d\omega}{\pi^2 c^3} \tag{B.15}$$

La suite est maintenant triviale, il suffit de multiplier le nombre de modes par unité de volume à l'énergie moyenne d'un mode (fonction de distribution de Planck) pour obtenir l'énergie électromagnétique contenue dans la cavité par unité de volume :

$$u_{\omega}(\omega)d\omega = \frac{dg}{V} \times \langle E_n \rangle = \frac{\hbar\omega^3 d\omega}{\pi^2 c^3 (e^{\hbar\omega/kT} - 1)}$$
(B.16)

La grandeur $u_{\omega}(\omega)$ est appelée densité spectrale d'énergie, et elle est liée à l'exitance énergétique spectrale $M(\omega)$ comme suit : $u(\omega) = \frac{4}{c}M(\omega)$. En effet, cela est équivalent à la formule (B.4), puisque le lien entre luminance spectrale et exitance spectrale est : $M_{\nu} = \pi L_{\nu}$ ou $M_{\omega} = \pi L_{\omega}$ pour une distribution isotrope (loi de Lambert). On précise qu'on prend souvent en physique atomique, ou en spectroscopie, pour intensité l'exitance, qui est le flux émis par une surface, et l'irradiance, qui est le flux reçu par une surface, toutes deux exprimées en W/m². Pour la suite, on utilisera surtout l'exitance M comme intensité émise par le corps noir I en fonction de la longueur d'onde. On peut montrer par un changement de variable simple que :

$$\begin{cases} I(\lambda, T) = \frac{2h\pi c^2}{\lambda^5} \frac{1}{e^{\frac{hc}{\lambda kT} - 1}} \\ I(\nu, T) = \frac{2h\nu^3}{c^2} \frac{1}{e^{\frac{h\nu}{kT} - 1}} \end{cases}$$
(B.17)

Car :

$$I = \int u_{\lambda}(\lambda, T) d\lambda = \int u_{\nu}(\nu, T) d\nu$$
 (B.18)

Annexe C

Elements expérimentaux

Dans cette annexe, je vais présenter une étude faite dans le but d'améliorer la qualité du traitement des données expérimentales. Je rappelle brièvement quelles mesures sont faites. Dans le but de mesurer la population du niveau de Rydberg qu'on choisit d'exciter, on place une porte d'intégration sur la zone temporelle où le signal d'ionisation en champ électrique de ce niveau apparaît. Cependant, la rampe de champ électrique utilisée ne permet pas tout à fait de séparer très clairement les signaux issus des différents niveaux. Cela signifie que dans la porte d'intégration citée, il est possible qu'une partie des signaux des niveaux d'énergies supérieures ou inférieures apparaisse également. En réalité, on utilise trois portes d'intégration en tout. On cherche donc à mesurer, pour chacune des ces trois portes, quelle est la contribution de chaque niveau sur le signal effectivement mesuré.

C.1 Matrice de corrélation

Un moyen de quantifier ce phénomène est de construire une matrice dans laquelle on fait apparaître, pour chaque niveau dont on étudie la désexcitation (champ électrique approprié), le signal mesuré par chacune des portes placées sur la zone attendue de signal d'un niveau. Ce protocole a été réalisé par exemple dans la référence [102]. Dans l'expérience présentée dans cet article, une rampe de champ électrique est également utilisée pour ioniser différents niveaux de Rydberg du césium à des instants distincts, de façon à pouvoir utiliser aussi des portes d'intégration pour mesurer le signal. En particulier, les niveaux étudiés sont les niveaux $23d_{5/2}$, 24s, $23p_{1/2}$ et $23p_{3/2}$ qui apparaissent sur la figure C.1a tirée de [102]. Cette figure représente les signaux de temps de vol des ions émis par l'ionisation des atomes des différents niveaux. A partir d'une telle figure, il est possible de construire la matrice de signal induit par l'ionisation d'un des niveaux dans chaque porte. Cet exemple ci donne la matrice de la figure C.1a.

Ce genre de matrice rend compte de la corrélation entre différentes portes d'intégration qui acquièrent du signal simultanément via les termes non diagonaux, mais elle permet également de convertir la mesure de signal (tension) en nombre d'atomes ionisés.

Dans notre cas, on cherche à construire le même type de matrice. Dans un premier temps on s'intéresse au niveau $40d_{5/2}$ du césium. Pour pouvoir peupler ce niveau, la longueur d'onde du second laser d'excitation (OPO pulsé) doit être de 19596.2 cm^{-1} . On applique une tension de 95 V. Cela signifie qu'à la fin de la rampe de champ électrique, la tension appliquée sur la seconde grille est de 95 V, et le champ électrique entre les grilles est donc de 190 V/cm. A cette valeur, les niveaux $40d_{5/2}$ et ceux qui lui sont proches (39d, 41s, 42s, 41d et 43s)



(a) Signaux de temps de vol des niveaux $23d_{5/2}$, 24s, $23p_{1/2}$ et $23p_{3/2}$ du césium. Le champ électrique atteint 79 V/cm en fin de rampe. les zones grisées correspondent aux délimitations des portes d'intégration (de gauche à droite d, s et p). Figure tirée de l'article [102].



(b) Matrice obtenue grâce à la mesure des signaux de temps de vol dans chaque porte d'intégration. Tirée de [102].

FIGURE C.1 – Construction de la matrice de corrélation entre les portes d'intégration pour l'expérience décrite dans [102].

ont des temps de vol suffisamment différents pour que les signaux sur le détecteur soient relativement distincts. On paramètre ensuite trois portes d'intégration (visibles sur la figure C.2) :

- Une porte englobe le signal issu de l'ionisation des atomes du niveau concerné $(40d_{5/2})$, sa largeur est de 1 μs . Elle est notée porte/box 2.
- Une porte dans laquelle doivent apparaître les signaux produits par les ions créés par l'ionisation des atomes des niveaux d'énergie supérieure (plus faible champ d'ionisation), sa largeur est de 4 μs . Elle est notée porte/box 1.
- Une porte dans laquelle doivent apparaître les signaux produits par les ions créés par l'ionisation des atomes des niveaux d'énergie inférieure (champ d'ionisation plus fort), sa largeur est de 5 μs . Elle est notée porte/box 3.

C'est la corrélation entre ces trois portes que l'on cherche à déterminer. Autrement dit, quand du signal apparaît dans une porte, comment les autres réagissent-elles? De plus, la matrice permettra également de compter les atomes ionisés (si le détecteur est bien étalonné). Dans un premier temps, trois modules électroniques permettent de créer les trois portes. On balaye alors la longueur d'onde du dernier laser d'excitation autour du niveau 40d, qui permet de voir l'ionisation des atomes des niveaux qui apparaissent dans le tableau C.1.

Niveau	Nombre d'onde (cm^{-1})	U_{set} (V)
39d	19591.9	96
41s	19593.8	92
40d	19596.2	86
42s	19597.96	82
41d	19600.2	77
43s	19601.8	74



FIGURE C.2 – Positionnement des trois portes d'intégration, la porte en violet est sur le signal d'ionisation du niveau 40d, les deux autres portes sont situées de part et d'autre pour détecter les signaux des niveaux supérieurs (avant) et inférieurs (après).

TABLE C.1 – Liste des niveaux visibles autour du niveau 40d du césium. On donne la longueur d'onde OPO pour leur ionisation, ainsi que la valeur seuil (U_{set} de la tension appliquée pour les ioniser.

On obtient alors la figure C.3a (sensibilités et largeurs des portes prises en compte). Le signal est donc mesuré en $V/\mu s$. De cette figure, on déduit la matrice de la figure C.3b.

Cependant, cette matrice ne correspond pas à la matrice carrée 3x3 que l'on attend. En réalité, on ne regarde que ce qui arrive dans les portes, au niveau du 40d, avant et après, sans faire la distinction des niveaux supérieurs ou inférieurs. Or, on sait que :

- Le signal du niveau 40d ne doit apparaître que dans la porte 2 (violet).
- Les niveaux 39d et 41s ne doivent apparaître que dans la porte 3 (vert).
- Les niveaux 42s, 41d et 43s ne doivent apparaître que dans la porte 1 (orange).

Ainsi, la mesure que l'on vient de décrire ne permet effectivement pas de construire une matrice carrée à la façon de l'article [102]. On s'aperçoit en revanche qu'on peut distinguer un phénomène de diaphonie entre les trois modules électroniques qui créent les portes d'intégration. Pour s'en assurer, on trace le signal mesuré par une porte en fonction de la deuxième, pour les trois portes. On obtient la figure C.4. Sur cette figure, on peut voir que le signal des portes 2 et 3 varie linéairement avec le signal de la porte 1. Ceci est surtout valable pour la porte 2, pour laquelle la pente de la droite est importante.

Par la suite, pour éviter ces perturbations des signaux à cause de la diaphonie, on décide de n'utiliser qu'une seule porte, que l'on déplacera entre chaque mesure. Cela rendra le protocole plus long mais les résultats bien plus nets.

Finalement, nous avons récemment changé de mode de détection, et nous détectons maintenant les électrons et non plus les ions. On cherche alors à refaire les mêmes mesures. On travaille avec des tensions de grilles différentes car nous avons changé les composants du circuit RC de la rampe de champ. On obtient les figures C.5a et C.5b qui sont des balayages de la longueur d'onde de l'OPO sur la même gamme qu'avant.

On déduit de la figure C.5, sans faire pour l'instant de calculs plus détaillés, que la porte



(a) Balayage en nombre d'onde de 19580 à 19605 cm⁻¹ pour détecter les niveaux 39d à 43s, voir tableau C.1. La tension appliquée entre les grilles est 95V, soit un champ de 190 V/cm environ. On a utilisé 3 portes d'intégration simultanément.

(b) Matrice obtenue grâce à la mesure des signaux de (a) dans chaque porte d'intégration. valeurs en $V/\mu s$.

FIGURE C.3 – Construction de la matrice de corrélation entre les portes d'intégration pour notre cas, utilisation de trois portes simultanément, avec trois dispositifs électroniques distincts. Détection des ions autour du niveau 40d.



FIGURE C.4 – On trace les signaux mesurés par les portes 2 et 3 en fonction du signal mesuré par la porte 1. La tension appliquée sur les grilles était de 150 V (soit un champ électrique de 300 V/cm) pour cette mesure, d'où un signal fort, ici non traité (sensibilité et largeur de porte), qui permet de mettre en évidence la diaphonie.



(a) Tension appliquée de 110 V, le signal du niveau 40d est presque exclusivement situé dans la porte violette.

(b) tension appliquée de 170 V, les signaux de tous les niveaux apparaissent presque exclusivement dans la porte orange.

FIGURE C.5 – Balayage en nombre d'onde de 19580 à 19605 cm⁻¹ pour détecter les niveaux 39d à 43s, voir tableau C.1. La tension appliquée entre les grilles est 110 V et 170 V, soient des champs de 220 V/cm et 340 V/cm environ. On a utilisé une seule porte, que l'on a déplacée entre les mesures. Détection des électrons.

centrée sur le signal du niveau 40d semble ne pas lire exclusivement ce signal, bien que le pic apparaisse au bon nombre d'onde 19596.2 cm⁻¹. On voit effectivement que la courbe en violet sur la figure C.5a est étalée sur les nombres d'onde de 19595 cm⁻¹ à 19600 cm⁻¹ environ. Si on regarde dans le tableau C.1, cela correspond aux niveaux 41s à 41d. Cependant, l'amplitude du signal est bien supérieure pour le niveau 40d. La figure C.5b, elle, permet de quantifier le nombre d'atomes qui sont excités. En effet, à 170 V, tous les niveaux qui sont ionisés donnent un signal dans la porte orange.

C.2 Conclusion

Les mesures acquises en utilisant trois portes d'intégration en détection d'ions n'étaient pas suffisamment propres du fait de la diaphonie entre les portes. Nous avons donc décidé de n'en utiliser qu'une, et de passer en détection d'électrons. Cependant, la détection en électrons vient ici apporter un obstacle, à savoir que le pic de photoionisation n'est pas visible. Les électrons ont une très faible masse, ce qui les rend sensibles au moindre petit champ électrique. De ce fait, après l'ionisation, les électrons créés, qui, dans un cas idéal devraient rester dans la zone de création avant le début de la rampe de champ qui les accélère, sentent les petites inhomogénéités du champ électrique et sont ainsi perdus car ils n'atteignent jamais le détecteur. On perd donc l'information sur le nombre total d'atomes initialement excités. Par la suite, il faudra trouver un compromis entre les différentes solutions envisagées, potentiellement la détection d'ions avec une seule porte d'intégration.

Bibliographie

- F. Tautz and J. Schaefer, "Ultimate resolution electron energy loss spectroscopy at h/si (100) surfaces," *Journal of applied physics*, vol. 84, no. 12, pp. 6636–6643, 1998.
- [2] R. Tromp, J. Hannon, A. Ellis, W. Wan, A. Berghaus, and O. Schaff, "A new aberrationcorrected, energy-filtered leem/peem instrument. i. principles and design," *Ultramicro*scopy, vol. 110, no. 7, pp. 852–861, 2010.
- [3] L. Maniguet, F. Roussel, F. Charlot, and F. Robaut, "Principes de base et évolution de la microscopie électronique à balayage," in 4èmes Journées Scientifiques et Techniques du Réseau des Microscopistes de l'INRA, 2013.
- [4] S. Weber, C. Tresp, H. Menke, A. Urvoy, O. Firstenberg, H. P. Büchler, and S. Hofferberth, "Calculation of rydberg interaction potentials," *Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics*, vol. 50, no. 13, p. 133001, 2017.
- [5] S. Haroche, "Interaction des atomes de rydbergavec des champs extérieurs.." Collège de France, 2013-2014.
- [6] L. Landau and E. Lifchitz, *Physique théorique*, vol. 3. Mécanique quantique. Editions Mir, 1975.
- [7] D. Park, "Relation between the parabolic and spherical eigenfunctions of hydrogen," *Zeitschrift für Physik*, vol. 159, pp. 155–157, Apr 1960.
- [8] A. J. McCulloch, B. M. Sparkes, and R. E. Scholten, "Cold electron sources using laser-cooled atoms," *Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics*, vol. 49, no. 16, p. 164004, 2016.
- [9] D. Delande, Atomes de Rydberg en champs statiques intenses. PhD thesis, Ecole Normale Supérieure, 1988.
- [10] T. Yamabe, A. Tachibana, and H. J. Silverstone, "Theory of the ionization of the hydrogen atom by an external electrostatic field," *Physical Review A*, vol. 16, no. 3, p. 877, 1977.
- [11] C. Bordas and H. Helm, "Electric-field ionization of rydberg states of h₃," Phys. Rev. A, vol. 47, pp. 1209–1219, Feb 1993.
- [12] R. J. Damburg and V. V. Kolosov, "An asymptotic approach to the stark effect for the hydrogen atom," *Journal of Physics B : Atomic and Molecular Physics*, vol. 11, no. 11, p. 1921, 1978.
- [13] H. J. Silverstone, "Perturbation theory of the stark effect in hydrogen to arbitrarily high order," *Phys. Rev. A*, vol. 18, pp. 1853–1864, Nov 1978.

- [14] J. Dalibard, "Une brève histoire des atomes froids.." Collège de France, 2014-2015.
- [15] J. J. McClelland, A. V. Steele, B. Knuffman, K. A. Twedt, A. Schwarzkopf, and T. M. Wilson, "Bright focused ion beam sources based on laser-cooled atoms," *Applied physics reviews*, vol. 3, no. 1, p. 011302, 2016.
- [16] J. J. Balmer, Annalen der Physik und Chemie. No. vol. 25, J.A. Barth, 1885.
- [17] J. R. Rydberg Den Konglia Svenska Vetenkaps Akademiens Handlingar, vol. 23, no. 11, 1889.
- [18] T. F. Gallagher, *Rydberg atoms*, vol. 3. Cambridge University Press, 2005.
- [19] J. Raimond, P. Goy, G. Vitrant, and S. Haroche, "Millimeter-wave spectroscopy of cesium rydberg states and possible applications to frequency metrology," *Le Journal de Physique Colloques*, vol. 42, no. C8, pp. C8–37, 1981.
- [20] J. Deiglmayr, H. Herburger, H. Saßmannshausen, P. Jansen, H. Schmutz, and F. Merkt, "Precision measurement of the ionization energy of cs i," *Phys. Rev. A*, vol. 93, p. 013424, Jan 2016.
- [21] D. Comparat, Molécules froides : Formation de molécules froides par photoassociation d'atomes froids de césium. Mise en évidence de forces à longue portée entre atomes froids excités de césium. PhD thesis, Université Paris XI, 1999.
- [22] M. Førre and J. P. Hansen, "Selective-field-ionization dynamics of a lithium m = 2 rydberg state : Landau-zener model versus quantal approach," *Phys. Rev. A*, vol. 67, p. 053402, May 2003.
- [23] P. Giannakeas, C. H. Greene, and F. Robicheaux, "Generalized local-frametransformation theory for excited species in external fields," *Phys. Rev. A*, vol. 94, p. 013419, Jul 2016.
- [24] D. A. Harmin, "Analytical study of quasidiscrete stark levels in rydberg atoms," Phys. Rev. A, vol. 30, pp. 2413–2428, Nov 1984.
- [25] M. G. Littman, M. L. Zimmerman, and D. Kleppner, "Tunneling rates for excited states of sodium in a static electric field," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 37, pp. 486–489, Aug 1976.
- [26] W. van de Water, D. R. Mariani, and P. M. Koch, "Ionization of highly excited helium atoms in an electric field," *Phys. Rev. A*, vol. 30, pp. 2399–2412, Nov 1984.
- [27] Y. Avishai and Y. B. Band, "Landau-zener problem with decay and dephasing," *Phys. Rev. A*, vol. 90, p. 032116, Sep 2014.
- [28] M. B. Kenmoe, S. E. M. Tchouobiap, C. K. Sadem, A. B. Tchapda, and L. C. Fai, "Non-adiabatic and adiabatic transitions at level crossing with decay : two- and threelevel systems," *Journal of Physics A : Mathematical and Theoretical*, vol. 48, no. 9, p. 095303, 2015.
- [29] V. M. Akulin and W. P. Schleich, "Landau-zener transition to a decaying level," *Phys. Rev. A*, vol. 46, pp. 4110–4113, Oct 1992.

- [30] J. Rault, T. Menteş, A. Locatelli, and N. Barrett, "Reversible switching of in-plane polarized ferroelectric domains in batio 3 (001) with very low energy electrons," *Scientific reports*, vol. 4, p. 6792, 2014.
- [31] O. Fedchenko, S. Chernov, A. McCulloch, M. Vielle-Grosjean, D. Comparat, and G. Schönhense, "Extraction dynamics of electrons from magneto-optically trapped atoms," *Applied Physics Letters*, vol. 111, no. 2, p. 021104, 2017.
- [32] G. Khalili, Réalisation d'une source d'électrons par ionisation d'un jet d'atomes e césium refroidis par laser. PhD thesis, Université Paris-Sud, 2015.
- [33] S. B. van der Geer, M. J. de Loos, T. van Oudheusden, W. P. E. M. op 't Root, M. J. van der Wiel, and O. J. Luiten, "Longitudinal phase-space manipulation of ellipsoidal electron bunches in realistic fields," *Phys. Rev. ST Accel. Beams*, vol. 9, p. 044203, Apr 2006.
- [34] M. Reijnders, N. Debernardi, S. van der Geer, P. Mutsaers, E. Vredenbregt, and O. Luiten, "Time-dependent manipulation of ultracold ion bunches," *Journal of Applied Phy*sics, vol. 109, no. 3, p. 033302, 2011.
- [35] A. Oelsner, M. Rohmer, C. Schneider, D. Bayer, G. Schönhense, and M. Aeschlimann, "Time- and energy resolved photoemission electron microscopy-imaging of photoelectron time-of-flight analysis by means of pulsed excitations," *Journal of Electron Spec*troscopy and Related Phenomena, vol. 178-179, pp. 317 – 330, 2010. Trends in X-ray Photoelectron Spectroscopy of solids (theory, techniques and applications).
- [36] J. J. McClelland, A. V. Steele, B. Knuffman, K. A. Twedt, A. Schwarzkopf, and T. M. Wilson, "Bright focused ion beam sources based on laser-cooled atoms," *Applied physics reviews*, vol. 3, no. 1, p. 011302, 2016.
- [37] A. Sakharov, "Violation of cp invariance c asymmetry and baryon asymmetry of the universe," Sov. Phys. Usp, vol. 34, p. 392, 1991.
- [38] P. A. Dirac, "The quantum theory of the electron," in *Proceedings of the Royal Society of London A : Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, vol. 117, pp. 610–624, The Royal Society, 1928.
- [39] C. D. Anderson, "The apparent existence of easily deflectable positives," Science, vol. 76, no. 1967, pp. 238–239, 1932.
- [40] P. M. S. Blackett and G. P. S. Occhialini, "Some photographs of the tracks of penetrating radiation," *Proceedings of the Royal Society of London A : Mathematical, Physical* and Engineering Sciences, vol. 139, no. 839, pp. 699–726, 1933.
- [41] O. Chamberlain, E. Segrè, C. Wiegand, and T. Ypsilantis, "Observation of antiprotons," *Physical Review*, vol. 100, no. 3, p. 947, 1955.
- [42] B. Cork, G. R. Lambertson, O. Piccioni, and W. A. Wenzel, "Antineutrons produced from antiprotons in charge-exchange collisions," *Physical Review*, vol. 104, no. 4, p. 1193, 1956.
- [43] J. H. Christenson, J. W. Cronin, V. L. Fitch, and R. Turlay, "Evidence for the 2 π decay of the k 2 0 meson," *Physical Review Letters*, vol. 13, no. 4, p. 138, 1964.

- [44] T. Massam, T. Muller, B. Righini, M. Schneegans, and A. Zichichi, "Experimental observation of antideuteron production," *Il Nuovo Cimento A*, vol. 63, pp. 10–14, Sep 1965.
- [45] M. Hori, A. Soter, D. Barna, A. Dax, R. Hayano, and S. Friedreich, "Two-photons laser spectroscopy of antiprotonic helium and the antiproton to electron mass ratio," *Nature*, vol. 475, pp. 484–488, Jul 2011.
- [46] C. Ø. Rasmussen, N. Madsen, and F. Robicheaux, "Aspects of 1s-2s spectroscopy of trapped antihydrogen atoms," *Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics*, vol. 50, no. 18, p. 184002, 2017.
- [47] C. Amole, M. Ashkezari, M. Baquero-Ruiz, W. Bertsche, E. Butler, A. Capra, C. Cesar, M. Charlton, S. Eriksson, J. Fajans, *et al.*, "Description and first application of a new technique to measure the gravitational mass of antihydrogen," *Nature communications*, vol. 4, p. 1785, 2013.
- [48] H. Dittus, C. Lämmerzahl, and H. Selig, "Testing the universality of free fall for charged particles in space," *General Relativity and Gravitation*, vol. 36, no. 3, pp. 571–591, 2004.
- [49] T. W. Darling, F. Rossi, G. I. Opat, and G. F. Moorhead, "The fall of charged particles under gravity : A study of experimental problems," *Rev. Mod. Phys.*, vol. 64, pp. 237– 257, Jan 1992.
- [50] D. A. Steck, "Quantum and atom optics." Available online at http://steck.us/teaching, 2 2017.
- [51] N. Šibalić, J. D. Pritchard, C. S. Adams, and K. J. Weatherill, "ARC : An open-source library for calculating properties of alkali Rydberg atoms," ArXiv e-prints, Dec. 2016.
- [52] D. A. Varshalovich, A. N. Moskalev, and V. K. Khersonskii, Quantum Theory of Angular Momentum. Singapore : World Scientific, 1988.
- [53] T. G. Walker and M. Saffman, "Consequences of zeeman degeneracy for the van der waals blockade between rydberg atoms," *PRA*, vol. 77, p. 032723, Mar. 2008.
- [54] H. A. Bethe and E. E. Salpeter, Quantum mechanics of one-and two-electron atoms. Springer Science & Business Media, 2012.
- [55] A. Burgess, "Tables of hydrogenic photoionization cross-sections and recombination coefficients," *Memoirs of the Royal Astronomical Society*, vol. 69, p. 1, 1965.
- [56] N. Delone, S. Goreslavsky, and V. Krainov, "Dipole matrix elements in the quasiclassical approximation," *Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Phy*sics, vol. 27, no. 19, p. 4403, 1994.
- [57] E. Solovev, "Second order perturbation theory for the hydrogen atom in crossed electric and magnetic fields," *Zhurnal Eksperimental'noi i Teoreticheskoi Fiziki*, vol. 85, pp. 109–114, 1983.
- [58] J. Main, M. Schwacke, and G. Wunner, "Hydrogen atom in combined electric and magnetic fields with arbitrary mutual orientations," *Physical Review A*, vol. 57, no. 2, p. 1149, 1998.

- [59] I. Glukhov, E. Nekipelov, and V. Ovsiannikov, "Blackbody-induced decay, excitation and ionization rates for rydberg states in hydrogen and helium atoms," *Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics*, vol. 43, no. 12, p. 125002, 2010.
- [60] D. Comparat, "Molecular cooling via sisyphus processes," Phys. Rev. A, vol. 89, p. 043410, Apr 2014.
- [61] C. Cohen-Tannoudji, J. Dupont-Roc, and G. Grynberg, Photons et atomes. Introduction à l'électrodynamique quantique : Introduction à l'électrodynamique quantique. SAVOIRS ACTUELS, EDP Sciences, 2012.
- [62] A. Chotia, M. Viteau, T. Vogt, D. Comparat, and P. Pillet, "Kinetic monte carlo modeling of dipole blockade in rydberg excitation experiment," *New Journal of Physics*, vol. 10, no. 4, p. 045031, 2008.
- [63] E. Bründermann, H. Hübers, and M. Fitzgerald Kimmit, *Terahertz Techniques*, vol. Springer Series in Optical Sciences 151. Springer, 2012.
- [64] R. C. Ohlmann, P. L. Richards, and M. Tinkham, "Far infrared transmission through metal light pipes*," J. Opt. Soc. Am., vol. 48, pp. 531–533, Aug 1958.
- [65] E. Fu, "Transmission of submillimeter waves through metal light pipes," J. Opt. Soc. Am. B, vol. 13, pp. 702–705, Apr 1996.
- [66] T. W. Ducas, W. P. Spencer, A. G. Vaidyanathan, W. H. Hamilton, and D. Kleppner, "Detection of far-infrared radiation using rydberg atoms," *Applied Physics Letters*, vol. 35, no. 5, pp. 382–384, 1979.
- [67] D. A. Steck, "Cesium d line data," 2003.
- [68] I. I. Beterov, I. I. Ryabtsev, D. B. Tretyakov, and V. M. Entin, "Quasiclassical calculations of blackbody-radiation-induced depopulation rates and effective lifetimes of rydberg ns, np, and nd alkali-metal atoms with $n \leq 80$," *Phys. Rev. A*, vol. 79, p. 052504, May 2009.
- [69] W. P. Spencer, A. G. Vaidyanathan, D. Kleppner, and T. W. Ducas, "Photoionization by blackbody radiation," *Phys. Rev. A*, vol. 26, pp. 1490–1493, Sep 1982.
- [70] W. Li, M. W. Noel, M. P. Robinson, P. J. Tanner, T. F. Gallagher, D. Comparat, B. Laburthe Tolra, N. Vanhaecke, T. Vogt, N. Zahzam, P. Pillet, and D. A. Tate, "Evolution dynamics of a dense frozen rydberg gas to plasma," *Phys. Rev. A*, vol. 70, p. 042713, Oct 2004.
- [71] I. I. Beterov, D. B. Tretyakov, I. I. Ryabtsev, V. M. Entin, A. Ekers, and N. N. Bezuglov, "Ionization of rydberg atoms by blackbody radiation," *New Journal of Physics*, vol. 11, no. 1, p. 013052, 2009.
- [72] L. D'yachkov and P. Pankratov, "Semiclassical formula for radial integrals of boundbound dipole transitions," *Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Phy*sics, vol. 24, no. 9, p. 2267, 1991.
- [73] L. D'yachkov and P. Pankratov, "On the use of the semiclassical approximation for the calculation of oscillator strengths and photoionization cross sections," *Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics*, vol. 27, no. 3, p. 461, 1994.

- [74] M. Hangyo, "Development and future prospects of terahertz technology," Japanese Journal of Applied Physics, vol. 54, no. 12, p. 120101, 2015.
- [75] S. S. Dhillon, M. S. Vitiello, E. H. Linfield, A. G. Davies, M. C. Hoffmann, J. Booske, C. Paoloni, M. Gensch, P. Weightman, G. P. Williams, E. Castro-Camus, D. R. S. Cumming, F. Simoens, I. Escorcia-Carranza, J. Grant, S. Lucyszyn, M. Kuwata-Gonokami, K. Konishi, M. Koch, C. A. Schmuttenmaer, T. L. Cocker, R. Huber, A. G. Markelz, Z. D. Taylor, V. P. Wallace, J. A. Zeitler, J. Sibik, T. M. Korter, B. Ellison, S. Rea, P. Goldsmith, K. B. Cooper, R. Appleby, D. Pardo, P. G. Huggard, V. Krozer, H. Shams, M. Fice, C. Renaud, A. Seeds, A. Stöhr, M. Naftaly, N. Ridler, R. Clarke, J. E. Cunningham, and M. B. Johnston, "The 2017 terahertz science and technology roadmap," *Journal of Physics D : Applied Physics*, vol. 50, no. 4, p. 043001, 2017.
- [76] K. Zhong, W. Shi, D. Xu, P. Liu, Y. Wang, J. Mei, C. Yan, S. Fu, and J. Yao, "Optically pumped terahertz sources," *Science China Technological Sciences*, vol. 60, no. 12, pp. 1801–1818, 2017.
- [77] C. L. Koch Dandolo, A. Cosentino, and P. U. Jepsen, "Inspection of panel paintings beneath gilded finishes using terahertz time-domain imaging," *Studies in Conservation*, vol. 60, no. sup1, pp. S159–S166, 2015.
- [78] F. Huang, B. Schulkin, H. Altan, J. F. Federici, D. Gary, R. Barat, D. Zimdars, M. Chen, and D. B. Tanner, "Terahertz study of 1,3,5-trinitro-s-triazine by time-domain and fourier transform infrared spectroscopy," *Applied Physics Letters*, vol. 85, no. 23, pp. 5535–5537, 2004.
- [79] G.-S. Park, Y. H. Kim, H. Han, J. K. Han, J. Ahn, J.-H. Son, W.-Y. Park, and Y. U. Jeong, *Convergence of Terahertz Sciences in Biomedical Systems*. Springer, 2012.
- [80] D. J. Paul, "Picturing people : non-intrusive imaging," State of the Science Review, vol. Foresight Exploiting the Electromagnetic Spectrum, 2005.
- [81] S. Tammaro, O. Pirali, P. Roy, J.-F. Lampin, G. Ducournau, A. Cuisset, F. Hindle, and G. Mouret, "High density terahertz frequency comb produced by coherent synchrotron radiation," *Nature communications*, vol. 6, p. 7733, 2015.
- [82] P. Mandal and A. Speck, "Half-cycle-pulse-train induced state redistribution of rydberg atoms," *Physical Review A*, vol. 81, no. 1, p. 013401, 2010.
- [83] J. Faist, F. Capasso, D. L. Sivco, C. Sirtori, A. L. Hutchinson, and A. Y. Cho, "Quantum cascade laser," *Science*, vol. 264, no. 5158, pp. 553–556, 1994.
- [84] Y. Chassagneux, Photonique pour les lasers à cascade quantique térahertz. PhD thesis, Université Paris Sud XI, 2009.
- [85] S. Barbieri, J. Alton, H. E. Beere, J. Fowler, E. H. Linfield, and D. A. Ritchie, "2.9thz quantum cascade lasers operating up to 70k in continuous wave," *Applied Physics Letters*, vol. 85, no. 10, pp. 1674–1676, 2004.
- [86] M. A. Belkin and F. Capasso, "New frontiers in quantum cascade lasers : high performance room temperature terahertz sources," *Physica Scripta*, vol. 90, no. 11, p. 118002, 2015.

- [87] H. Eisele, "Second-harmonic power extraction from inp gunn devices with more than 1 mw in 260-320 ghz frequency range," *Electronics Letters*, vol. 34, no. 25, pp. 2412–2413, 1998.
- [88] M. Tani, O. Morikawa, S. Matsuura, and M. Hangyo, "Generation of terahertz radiation by photomixing with dual- and multiple-mode lasers," *Semiconductor Science and Technology*, vol. 20, no. 7, p. S151, 2005.
- [89] E. Brown, K. McIntosh, F. Smith, M. Manfra, and C. Dennis, "Measurements of opticalheterodyne conversion in low-temperature-grown gaas," *Applied physics letters*, vol. 62, no. 11, pp. 1206–1208, 1993.
- [90] P. Latzel, High efficiency THz photomixers based on indium metallic wafer bonding. PhD thesis, Université de Lille 1, IEMN, 2014.
- [91] E. Peytavit, C. Coinon, and J.-F. Lampin, "Low-temperature-grown gaas photoconductor with high dynamic responsivity in the millimeter wave range," *Applied Physics Express*, vol. 4, no. 10, p. 104101, 2011.
- [92] S. Verghese, K. McIntosh, and E. Brown, "Highly tunable fiber-coupled photomixers with coherent terahertz output power," *IEEE Transactions on microwave theory and techniques*, vol. 45, no. 8, pp. 1301–1309, 1997.
- [93] J. Klier, G. Torosyan, N. S. Schreiner, D. Molter, F. Ellrich, W. Zouaghi, E. Peytavit, J.-F. Lampin, R. Beigang, J. Jonuscheit, et al., "Influence of substrate material on radiation characteristics of thz photoconductive emitters," *International Journal of Antennas and Propagation*, vol. 2015, 2015.
- [94] E. Pliński, "Terahertz photomixer," Bulletin of the Polish Academy of Sciences : Technical Sciences, vol. 58, no. 4, pp. 463–470, 2010.
- [95] M. Scheller and M. Koch, "Terahertz quasi time domain spectroscopy," Optics express, vol. 17, no. 20, pp. 17723–17733, 2009.
- [96] S. Blin, R. Paquet, M. Myara, B. Chomet, L. Le Gratiet, M. Sellahi, G. Beaudoin, I. Sagnes, G. Ducournau, P. Latzel, *et al.*, "Coherent and tunable thz emission driven by an integrated iii–v semiconductor laser,"
- [97] A. J. Metcalf, V. Supradeepa, D. E. Leaird, A. M. Weiner, et al., "Fully programmable two-dimensional pulse shaper for broadband line-by-line amplitude and phase control," *Optics express*, vol. 21, no. 23, pp. 28029–28039, 2013.
- [98] J. T. Willits, A. M. Weiner, and S. T. Cundiff, "Line-by-line pulse shaping with spectral resolution below 890 mhz," Opt. Express, vol. 20, pp. 3110–3117, Jan 2012.
- [99] X. Hu, Q. Sun, J. Li, C. Li, Y. Liu, and J. Zhang, "Spectral dispersion modeling of virtually imaged phased array by using angular spectrum of plane waves," *Optics express*, vol. 23, no. 1, pp. 1–12, 2015.
- [100] S. Xiao, A. M. Weiner, and C. Lin, "A dispersion law for virtually imaged phasedarray spectral dispersers based on paraxial wave theory," *IEEE journal of quantum electronics*, vol. 40, no. 4, pp. 420–426, 2004.

- [101] B. M. Karnakov and V. P. Krainov, WKB Approximation in Atomic Physics. Mathematical Methods in Physics, Springer Verlag Berlin Heidelberg, 1 ed., 2013.
- [102] J. Gurian, P. Cheinet, P. Huillery, A. Fioretti, J. Zhao, P. Gould, D. Comparat, and P. Pillet, "Observation of a resonant four-body interaction in cold cesium rydberg atoms," *Physical review letters*, vol. 108, no. 2, p. 023005, 2012.



Titre :Atomes de Rydberg: Étude pour la production d'une source d'électrons monocinétique, Désexcitation par radiation THz pour l'antihydrogène.

Mots clés : source d'électrons, atomes de Rydberg, ionisation, Térahertz, antihydrogène

Résumé : Depuis les années 1975, les atomes de Rydberg sont étudiés et maintenant utilisés en information quantique pour leurs propriétés particulières d'interaction. Cependant, ces objets physiques peuvent se retrouver impliqués dans différentes autres applications, où leurs caractéristiques remarquables en font de parfaits outils. Dans ce mémoire, nous nous intéresserons à deux applications distinctes faisant intervenir des atomes de Rydberg de césium. Tout d'abord, nous verrons comment utiliser de tels atomes pour produire une source d'électrons monocinétique, grâce au mécanisme d'ionisation singulier de ce type d'atomes à une valeur précise de champ électrique dépendante du niveau d'excitation. Les électrons ainsi produits sont ensuite extraits et leur dispersion en énergie mesurée. On montrera notamment de façon théorique et d'après les premières mesures expérimentales réalisées pendant la thèse, que l'on peut espérer obtenir une dispersion en énergie des électrons produits par cette technique de l'ordre du meV, résolution jamais atteinte à ce jour. Ce type de source devient aujourd'hui un outil indispensable pour accéder à la mise au point et l'étude de nouveaux matériaux par contrôle de réactions chimiques à l'échelle moléculaire, et à la cartographie des

phonons. Dans un second temps, nous verrons qu'il est possible de désexciter un nuage d'atomes de Rydberg de niveaux variés grâce à une source externe dans le domaine térahertz. Ce projet s'inscrit dans le cadre des expériences d'étude de l'antimatière menées actuellement au CERN, qui visent à élucider le mystère de l'asymétrie matière/antimatière. Les méthodes actuelles de production de l'antihydrogène, forment des nuages de ces anti-atomes dans différents états de Rydberg. Pour les étudier, il est alors nécessaire de désexciter le plus d'atomes d'antihydrogène possible vers le niveau fondamental. Nous présenterons la méthode envisagée, ainsi que les résultats obtenus expérimentalement sur un dispositif créé pendant la thèse pour montrer la faisabilité de la technique. Ces premiers résultats montrent qu'il est possible d'accélérer la désexcitation d'un atome de Rydberg sur un état très élevé grâce à une lampe se comportant comme un corps noir. Nous détaillerons les améliorations envisagées, en particulier pour adapter le spectre des fréquences THz à utiliser et empêcher la photoionisation des atomes, par des filtres ou par le façonnage spectral via l'utilisation d'un photomixeur.

Title : Rydberg atoms: Study for the production of a monocinetic electron source, De-excitation using a THz source for anti hydrogen.

Keywords : electron source, Rydberg atoms, ionization, Terahertz, antihydrogen

Abstract : Since 1975, Rydberg atoms have been studied and now used in quantum information for their particular interaction properties. However, these physical objects can be involved in various other applications, where their remarkable characteristics make them perfect tools. In this paper, we will focus on two distinct applications involving cesium Rydberg atoms. First, we will see how to use such atoms to produce a source of monocinetic electrons, thanks to the singular ionization mechanism of this type of atoms at a precise value of electric field dependent on the excitation level. The electrons thus produced are then extracted and their energy dispersion measured. Theoretically and according to the first experimental measurements made during the thesis, we will show that we can hope an energy dispersion of the electrons produced by this meV technique, a resolution never reached before. Today, this type of source is becoming an indispensable tool for the development and study of new materials by molecular scale chemical reaction control and for phonon map-

ping. In a second step, we will see that it is possible to de-energize a cloud of Rydberg atoms of various levels thanks to an external source in the tera-hertz domain. This project is part of the ongoing anti-matter experiments at CERN, which aim to unravel the mystery of the matter/anti-matter asymmetry. The current methods of production of antihydrogen, forms clouds of these anti-atoms in different Rydberg states. To study them, it is then necessary to de-energize as many antihydrogen atoms as possible to the fundamental level. We will present the method envisaged, as well as the results obtained experimentally on a device created during the thesis to show the feasibility of the technique. These first results show that it is possible to accelerate the deenergization of a Rydberg atom on a very high state thanks to a lamp behaving like a black body. We will detail the improvements envisaged, in particular to adapt the spectrum of the THz frequencies to use and prevent the photoionization of atoms, by filters or by spectral shaping via the use of a photomixer.