



HAL
open science

Étude métrologique de la transition 1S–3S de l'atome de deutérium : amélioration du dispositif expérimental, nouveaux effets systématiques et première mesure de fréquence absolue

Simon Thomas

► To cite this version:

Simon Thomas. Étude métrologique de la transition 1S–3S de l'atome de deutérium : amélioration du dispositif expérimental, nouveaux effets systématiques et première mesure de fréquence absolue. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Sorbonne Université, 2021. Français. NNT : 2021SORUS501 . tel-03828489

HAL Id: tel-03828489

<https://theses.hal.science/tel-03828489>

Submitted on 25 Oct 2022

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.

**Thèse de doctorat
de Sorbonne Université**

Spécialité : physique

École doctorale n° 564 : Physique en Île-de-France

réalisée au Laboratoire Kastler Brossel,

présentée par

Simon THOMAS

Sujet de la thèse :

**Étude métrologique de la transition
1S–3S de l'atome de deutérium :**
amélioration du dispositif expérimental,
nouveaux effets systématiques et
première mesure de fréquence absolue

Composition du jury :

Caroline CHAMPENOIS	Rapportrice
Daniel COMPARAT	Rapporteur
Pascal DEBU	Examineur
Catherine SCHWOB	Examinatrice
François NEZ	Directeur de thèse

Introduction

Un spectre hante l'histoire de la physique quantique : le spectre de l'atome d'hydrogène. Modéliser la position de ses raies a, tout au long du XX^e siècle, à la fois motivé et permis de mettre à l'épreuve de nombreux développements majeurs – du modèle de Bohr au calcul par la théorie des champs du déplacement de Lamb, en passant par les fonctions d'onde de Schrödinger, ou le traitement du spin par l'équation de Dirac. L'atome d'hydrogène est en effet le plus simple de tous les systèmes atomiques : celui que les théories sont susceptibles de décrire avec le plus de précision.

Aujourd'hui, l'électrodynamique quantique (QED) permet, à partir d'un nombre réduit de constantes fondamentales, de calculer la valeur théorique des différentes fréquences de transition de l'atome d'hydrogène, entre niveaux de structure fine, avec une incertitude relative typique de l'ordre de 10^{-13} . Il s'agit de l'une des prédictions les plus précises jamais obtenues en physique.

Les expériences de spectroscopie de l'atome d'hydrogène, qui mesurent ces fréquences de transition, sont elles aussi au cours du dernier demi-siècle parvenues à atteindre une incertitude relative de l'ordre de 10^{-13} (voire de 10^{-15} dans le cas de la singulièrement étroite transition $1S - 2S$). Depuis près de quarante ans, notre équipe, aujourd'hui *équipe de métrologie des systèmes simples et tests fondamentaux* du Laboratoire Kastler Brossel (LKB), contribue à cette progression.

L'intérêt d'une telle quête de précision, tant théorique qu'expérimentale, est de pouvoir tester les limites de validité de la QED. On ignore en effet, à ce jour, à quel degré de résolution ses prédictions cessent d'être fiables, au-delà de quel chiffre significatif un autre modèle devient requis pour rendre compte des résultats des expériences. Or, les enjeux de cette connaissance-là sont grands : le champ d'application de la QED est aussi large que ses prédictions sont précises et, celles-ci n'ayant jusqu'à présent jamais été durablement mises en défaut, cela en fait l'une des théories les plus fondamentales de la physique contemporaine. Identifier les failles de la QED, c'est donc potentiellement remettre en cause le Modèle Standard de la physique, et inspirer à la discipline de nouveaux développements.

Une telle mise à l'épreuve n'est cependant pas immédiate à mettre en œuvre. On ne peut pas simplement comparer la mesure d'une fréquence de transition avec le calcul qu'en donne la QED : en effet, les valeurs de certaines des constantes fondamentales évoquées plus haut – c'est-à-dire des paramètres que la théorie ne peut évaluer par elle-même et qui doivent être déterminés empiriquement – reposent déjà sur une telle comparaison, sont déjà justement connues en supposant la théorie adéquate.

C'est donc plutôt la cohérence des prédictions théoriques que l'on doit scruter. Si la théorie est valide, les valeurs des constantes fondamentales déterminées par comparaison

avec la mesure de certaines fréquences de transition de l'atome d'hydrogène doivent toujours être les mêmes, quelles que soient les transitions considérées, et quel que soit l'isotope. S'il y a un désaccord entre ces valeurs, alors cela peut être le signe d'une erreur de la théorie.

Cette conclusion suppose toutefois, d'une part que les calculs soient justes au niveau de résolution auquel la comparaison est effectuée, ce qui n'est pas évident au vu de la complexité qu'ils atteignent, et d'autre part que les résultats expérimentaux soient fiables. Et de cela, on ne peut jamais être tout à fait certain. Il y a toujours des biais insoupçonnés, des effets systématiques qui affectent nos mesures sans qu'on sache les corriger faute même de les suspecter ; et plus l'incertitude visée est faible, plus les petits effets revêtent de l'importance.

Outre chercher sans fin à s'imaginer quels effets spécifiques leur restent à prendre en compte, la seule solution dont disposent les métrologues est alors d'examiner la cohérence d'une pluralité de mesures obtenues dans différentes conditions, et de traquer une éventuelle dépendance à ces conditions. Il s'agit concrètement, les biais à débusquer étant potentiellement infimes et de tout ordre, de comparer entre elles des mesures réalisées avec différents instruments, différentes techniques expérimentales, différentes méthodes d'analyse, dans différents laboratoires, par différentes personnes.

La comparabilité de ces mesures ne va cependant pas de soi. Il faut ainsi, lorsqu'elles sont réalisées par des équipes différentes, que les pratiques de ces équipes soient à la fois suffisamment standardisées et suffisamment documentées, spécifiées avec assez de détails, pour que le travail de comparaison puisse être significatif. Il faut aussi que ces détails ne finissent pas oubliés, car la métrologie progresse lentement : entre le début de la construction d'une expérience et la publication de ses premiers résultats, dix à vingt ans peuvent couramment s'écouler, le temps d'enquêter sur assez d'effets systématiques, de maîtriser suffisamment l'ensemble du dispositif.

Il faut encore garder à l'esprit qu'aucune de ces mesures ne peut être considérée comme un résultat définitif : elles traduisent seulement l'état des connaissances de leurs autrices et auteurs au moment de leur publication. Toujours susceptible d'être raffinée ou corrigée, par l'obtention d'un surcroît de données ou l'inclusion de davantage d'effets systématiques, une unique mesure n'est jamais qu'un point de repère daté, qu'un jalon particulier de la chronologie métrologique.

L'accord ou le désaccord entre deux résultats, pris isolément et indépendamment de leurs dates, ne saurait donc être concluant ; c'est l'historique de toutes les mesures passées, dans sa globalité, qui seul peut être suffisamment instructif. Cerner les lacunes théoriques et les biais expérimentaux, autrement dit, relève moins de l'intercomparaison d'un ensemble de mesures que de l'identification des tendances au long cours que ces mesures dessinent : ce qui importe est qu'elles convergent au fil du temps, ou bien qu'une incohérence persiste.

Voilà finalement l'enjeu du travail de thèse présenté ici : contribuer à tester conjointement l'électrodynamique quantique et la spectroscopie de l'atome d'hydrogène, en mesurant la fréquence d'une certaine transition ($1S - 3S$), pour un certain isotope (le deutérium) et dans certaines conditions expérimentales (le dispositif construit au LKB) ; et en documentant durablement l'état des connaissances de notre équipe, à un certain moment (en 2021), concernant les effets systématiques qui perturbent cette mesure.

Les différents aspects de ces questions seront déclinés au cours des trois parties qui composent ce manuscrit. J'exposerai dans la première l'ensemble des résultats théoriques qui m'ont été utiles à la détermination de la fréquence de la transition $1S - 3S$ du deutérium, et

les modélisations que j'ai effectuées de certains effets systématiques susceptibles d'entacher cette détermination. Dans la deuxième, je décrirai le dispositif expérimental que j'ai utilisé, de 2017 à 2020, et les différentes améliorations que je lui ai apportées.

Dans la troisième enfin, je présenterai les mesures que j'ai réalisées, ainsi qu'une première analyse, très préliminaire, de ces mesures, me conduisant à déterminer la fréquence de la transition étudiée avec une incertitude inédite à la date de la rédaction de ces pages. La comparaison des résultats obtenus avec les travaux menés dans d'autres laboratoires, puisqu'elle constitue l'aboutissement de nos recherches, figure dans le dernier chapitre. Le lecteur ou la lectrice intéressée par des éléments de contexte plus détaillés que ceux qui se trouvent dans cette introduction peut donc s'y reporter directement.

Table des matières

I	Théorie	1
I	L'atome d'hydrogène isolé	5
I.1	Description des états stationnaires de l'atome	5
I.2	Hamiltonien de Schrödinger	7
I.3	Hamiltonien de Dirac	7
I.4	Corrections aux niveaux d'énergie de Dirac	8
I.4.1	Effets de recul	8
I.4.2	Taille finie du noyau	10
I.4.3	Corrections radiatives	11
I.5	Hamiltonien de structure hyperfine	11
I.6	Corrections à la structure hyperfine	12
I.6.1	Corrections relativistes	12
I.6.2	Moment magnétique anomal de l'électron	13
I.6.3	Corrections de recul	13
I.6.4	Moment quadrupolaire électrique	14
I.6.5	Autres corrections pour les états S	14
I.6.6	Autres corrections pour les états de $L \neq 0$	15
I.7	Dépendance aux valeurs des constantes fondamentales	15
II	L'atome d'hydrogène en présence d'un rayonnement	17
II.1	Effet Zeeman	17
II.1.1	Hamiltonien non relativiste	17
II.1.2	Correction relativiste	18
II.2	Effet Stark	19
II.3	Excitation à deux photons	21
II.3.1	Suppression partielle de l'effet Doppler	21
II.3.2	Hamiltonien effectif	22
II.4	Fluorescence	24
II.5	Équation d'évolution	26
II.6	Calcul des formes de raie	27
II.7	Comparaison aux modèles antérieurs	28
II.7.1	Corrections pour les états tels que $L \neq 0$	28
II.7.2	Interférences quantiques	29
II.7.3	Temps d'interaction fini	31

III L'atome d'hydrogène au sein d'un gaz	33
III.1 Distribution effusive des vitesses atomiques	33
III.1.1 Gaz parfait à l'équilibre thermodynamique	33
III.1.2 Jet effusif	34
III.1.3 Évolution de la densité atomique	35
III.2 Déplétion des basses vitesses	36
III.2.1 Probabilité de collision à vitesse donnée	36
III.2.2 Probabilité de traversée sans collision	38
III.2.3 Repopulation collisionnelle des classes de vitesse	38
III.2.4 Influence de la recombinaison moléculaire	39
III.3 Correction de l'effet Doppler du second ordre	41
III.4 Dépendance en vitesse du déplacement lumineux	43
III.5 Dépendance en vitesse du déplacement collisionnel	45
III.6 Dépendance en vitesse de la probabilité de fluorescence	47
III.7 Contribution des atomes du gaz résiduel	48
II Expérience	53
IV Jet d'hydrogène atomique	57
IV.1 Dissociation du dihydrogène	57
IV.2 Émission et pompage d'un jet atomique	59
IV.3 Refroidissement du jet atomique	60
IV.4 État des atomes avant leur excitation	62
IV.5 Détection de fluorescence	63
IV.6 Bruit de fond	63
V Cavités optiques et sources laser	67
V.1 Cavité Fabry-Perot à 205 nm	67
V.1.1 Spectre de transmission	68
V.1.2 Dégradation de la réflectivité des miroirs UV	70
V.1.3 Asservissement de la cavité	71
V.2 Somme de fréquences	73
V.2.1 Cavités de surtension	74
V.3 Source laser à 895 nm	76
V.3.1 Fonctionnement monomode	77
V.3.2 Asservissement Pound-Drever-Hall	78
V.4 Source laser à 266 nm	79
VI Comptage et stabilisation des fréquences laser	81
VI.1 Référence de fréquence à 10 MHz	81
VI.2 Peigne de fréquences optiques	81
VI.3 Battements radiofréquence	82
VI.3.1 Battement à 895 nm	82
VI.3.2 Battement à 532 nm	84
VI.4 Comptage de fréquence	84
VI.4.1 Synchronisation des mesures	85

VI.4.2	Générateurs de suivi	85
VI.5	Système antérieur de stabilisation	86
VI.5.1	Étalon de fréquence au rubidium	87
VI.5.2	Diode laser	87
VI.5.3	Fabry-Perot de référence	88
VI.6	Évolution du système de stabilisation	88
VI.6.1	Nécessité d'un balayage plus large des fréquences laser	88
VI.6.2	Asservissement analogique en fréquence	89
VI.6.3	Asservissement numérique en phase	89
VI.6.4	Asservissement en phase avec saturation	90
VI.6.5	Asservissement numérique en fréquence	90
VI.6.6	Asservissement des lasers sur le peigne de fréquence	91
VI.7	Module d'asservissement RedPitaya	92
VI.7.1	Carte RedPitaya	92
VI.7.2	Programmation	93
VI.7.3	Comparateur de phase et de fréquence	95
VI.8	Nouveau système de stabilisation	96
VI.8.1	Balayage du laser <i>Verdi</i>	97
VI.8.2	Stabilité de la fréquence du faisceau à 205 nm	99
VI.8.3	Amélioration de la disponibilité des lasers	99
III	Comparaison théorie – expérience	105
VII	Campagne de mesure	109
VII.1	Enregistrements de l'automne 2020	109
VII.2	Calibration du champ magnétique vertical	110
VII.3	Compensation du champ magnétique horizontal	111
VII.4	Mesures à 2 mT	112
VII.5	Échantillonnage du balayage	112
VII.6	Vitesse de balayage	115
VII.7	Traitement des données	117
VIII	Ajustement des spectres expérimentaux	119
VIII.1	Incertitude statistique	119
VIII.2	Contribution du gaz résiduel	120
VIII.2.1	Ajustement des paramètres de la contribution élargie	120
VIII.2.2	Influence de la contribution élargie sur les spectres étroits	122
VIII.3	Extrapolation en intensité et en pression	127
VIII.4	Effet Doppler du second ordre	127
VIII.5	Résultats	129
IX	Détermination des constantes fondamentales	133
IX.1	Calcul de la constante de Rydberg et du rayon du deutéron	133
IX.2	Comparaison avec différentes déterminations	133
IX.3	Perspectives	135

A Exemple de base employée pour le calcul des formes de raie	141
B Éléments de matrice de l'hamiltonien de structure hyperfine	145
C Algorithme d'asservissement en phase et en fréquence	149
D Calcul de la constante de Rydberg à partir de deux fréquences de transition	151
E High-Resolution Hydrogen Spectroscopy and The Proton Radius Puzzle	153

Première partie

Théorie

Le présent travail de thèse est d'ordre expérimental, il ne contient pas de développements théoriques nouveaux à proprement parler : cette première partie n'a surtout pour vocation que de répertorier les définitions et résultats théoriques qui nous seront utiles, ensuite, pour analyser nos mesures et les comparer à celles issues d'autres expériences. On peut toutefois souligner que la combinaison de ces résultats au degré de précision atteint ici, et leur déclinaison au cas du deutérium, constitue un travail inédit. Par ailleurs, un certain nombre d'effets systématiques possibles seront examinés, qui n'avaient jusqu'à présent pas fait l'objet d'une modélisation détaillée.

Le chapitre 1 aura pour objet le calcul de la position des raies spectrales de l'atome d'hydrogène, dans la limite de l'absence de champs électromagnétiques extérieurs à l'atome. La définition théorique de la fréquence de la transition $1S - 3S$ que nous cherchons à déterminer y sera notamment donnée, en particulier dans le cas du deutérium.

Le chapitre 2 traitera des effets de l'application d'un champ électromagnétique sur l'atome d'hydrogène, nous permettant de modéliser l'interaction de l'atome avec un rayonnement laser aussi bien qu'avec un champ magnétique uniforme. Une attention particulière sera portée à l'évolution temporelle de l'atome en présence de tels champs.

Enfin, le chapitre 3 considérera l'atome d'hydrogène non plus seul, mais au sein d'un gaz. La distribution statistique des vitesses des atomes du gaz y sera étudiée, ainsi que l'effet de cette distribution sur les spectres obtenus dans les conditions de notre expérience.

Le système d'unités utilisé tout au long de ces chapitres sera le Système International (SI), défini depuis le 20 mai 2019 par les valeurs suivantes de l'écart hyperfin fondamental du césium 133, de la vitesse de la lumière dans le vide, de la constante de Planck, de la charge élémentaire et de la constante de Boltzmann [CGPM 2018] :

$$\begin{array}{ll} \Delta\nu_{Cs} & = 9,192631770 \times 10^9 \text{ Hz} \\ c & = 2,99792458 \times 10^8 \text{ m s}^{-1} \\ h & = 6,62607015 \times 10^{-34} \text{ J s} \end{array} \quad \begin{array}{ll} e & = 1,602176634 \times 10^{-19} \text{ C} \\ k & = 1,380649 \times 10^{-23} \text{ J K}^{-1} \end{array}$$

Suivant l'usage, les hamiltoniens seront exprimés en joules ; ils peuvent être convertis en unité de phase par unité de temps, c'est-à-dire en rad s^{-1} , en les divisant par $\hbar = h/2\pi$.

Selon les recommandations de l'Union internationale de chimie pure et appliquée [IUPAC 1971], nous appellerons respectivement *protium* et *deutérium* le premier et le deuxième isotopes de l'atome d'hydrogène. Les notations mathématiques employées seront celles de la norme ISO 80000-2.

Chapitre I

L'atome d'hydrogène isolé

Nous considérerons dans ce chapitre l'atome d'hydrogène dans le vide, en tant que système lié formé par un électron et un noyau, proton ou deutéron. Le spectre de l'atome peut être décrit comme résultant de l'absorption (ou de l'émission) de photons par l'électron, un processus qui est résonant lorsqu'il correspond à une transition entre deux états stationnaires du système lié : le calcul des fréquences de transition qui nous intéressent se ramène à celui de l'énergie de ces états stationnaires.

La relation la plus simple pour calculer l'énergie des états stationnaires de l'atome (ses *niveaux d'énergie*) est la formule de Rydberg [RYDBERG 1889 ; BOHR 1913]. Elle fait intervenir la constante de structure fine α , et l'énergie propre de l'électron $E_0 = m_e c^2$:

$$E_{\mathcal{R}} = -\frac{\alpha^2 E_0}{2n^2} \quad \text{avec } n \in \mathbb{N} \quad (\text{I.1})$$

Elle peut également s'exprimer en fonction de la constante de Rydberg, définie par $R_\infty = \alpha^2 E_0 / 2hc$. Malgré sa simplicité, l'efficacité de cette formule est déjà remarquable : l'erreur relative commise, en l'utilisant pour prédire la valeur de la fréquence de la transition $1S - 3S$ que l'on mesurera à la fin de ce travail, n'est que de 0,03%.

Tout au long du présent chapitre, nous allons chercher à réduire cet écart, en améliorant notre modélisation de l'atome d'hydrogène au travers d'une succession d'approximations de plus en plus fines. La figure I.1 illustre la progression de ces différentes approximations.

I.1 Description des états stationnaires de l'atome

Nous caractériserons les états du système lié électron–noyau, dans le référentiel de son centre de masse, au travers de trois degrés de liberté internes : le moment angulaire propre (spin) de l'électron, celui du noyau, et la position de l'électron par rapport au noyau.

Comme tout moment angulaire, le spin \mathbf{S} de l'électron peut être décrit au moyen d'un nombre fini d'états quantiques, indexés en représentation standard par deux nombres quantiques : S et m_S . Le carré scalaire et la composante selon l'axe de quantification du moment angulaire de chacune de ces configurations $|S, m_S\rangle$ valent alors respectivement $\hbar^2 S(S+1)$ et $\hbar m_S$. Pour l'électron, $S = 1/2$. Il en va de même pour le spin \mathbf{I} du noyau, avec $I = 1/2$ pour le proton et $I = 1$ pour le deutéron.

Nous exprimerons la position \mathbf{r} de l'électron par rapport au noyau en coordonnées sphériques, notant r la distance radiale, θ la colatitude et ϕ la longitude. On peut alors décomposer

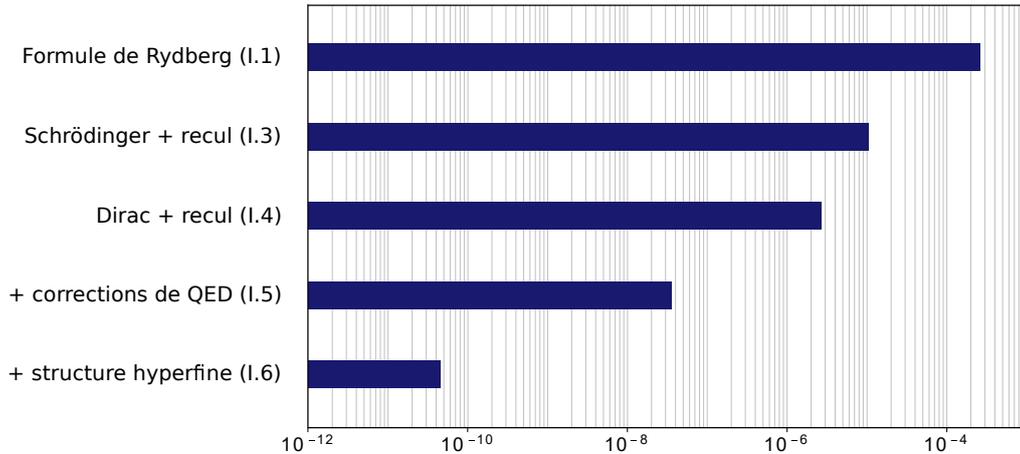


Fig. I.1 Écart relatif des différents modèles présentés dans ce chapitre à la valeur théorique de $f_{1S-3S, F=3/2}$ que nous obtiendrons finalement, pour le deutérium.

la dépendance spatiale d'un état de l'atome dans une base de fonctions de θ et ϕ présentant chacune un moment angulaire orbital \mathbf{L} , dans un état $|L, m_L\rangle$ spécifique. Il s'agit des harmoniques sphériques : $\langle\theta, \phi|L, m_L\rangle = Y_L^{m_L}(\theta, \phi)$.

Ainsi, en toute généralité, dans l'espace des états engendré par les degrés de liberté considérés, et pour un signe donné de l'énergie totale du système, chaque état stationnaire $|\Psi\rangle$ de l'atome peut être représenté par un ensemble de coefficients a priori complexes $R_{\substack{L, m_L \\ m_S, m_I}}(r)$ tels que :

$$\langle r|\Psi\rangle = \sum_{\substack{L, m_L \\ m_S, m_I}} R_{\substack{L, m_L \\ m_S, m_I}}(r) |L, m_L\rangle |S, m_S\rangle |I, m_I\rangle$$

D'autres bases d'états stationnaires peuvent également être formées, par addition des différents moments angulaires impliqués. En particulier, nous serons amenés à considérer le moment angulaire total de l'électron $\mathbf{J} = \mathbf{L} + \mathbf{S}$, et celui de l'atome $\mathbf{F} = \mathbf{L} + \mathbf{S} + \mathbf{I}$. Les coefficients de changement de base correspondants sont les coefficients de Clebsch-Gordan, qui vérifient, avec les notations que nous utiliserons :

$$|(LS)Jm_J\rangle = \sum_{m_L, m_S} \langle L, m_L; S, m_S | J, m_J \rangle |L, m_L\rangle |S, m_S\rangle$$

$$|(LSJ)Fm_F\rangle = \sum_{m_J, m_I} \langle J, m_J; I, m_I | F, m_F \rangle |J, m_J\rangle |I, m_I\rangle$$

Pour décrire un état stationnaire de l'atome, il ne reste qu'à déterminer ses coefficients R , par le biais d'une équation traduisant les couplages entre les différents degrés de liberté du système. Nous considérerons, pour cela, d'abord l'équation de Schrödinger, puis celle de Dirac, en les écrivant sous la forme suivante :

$$H|\Psi\rangle = E|\Psi\rangle$$

Dans cette équation, H est par définition l'hamiltonien de l'atome, et E son énergie de liaison. L'énergie totale du système atomique vaut $E_{tot} = E + E_0 + E_N$, où $E_N = m_N c^2$ est l'énergie propre du noyau.

I.2 Hamiltonien de Schrödinger

La modélisation la plus simple de l'interaction électron–noyau consiste, dans l'approximation non relativiste, à considérer l'effet d'un potentiel coulombien fixe sur un électron, sans tenir compte de son spin [SCHRÖDINGER 1926].

Dans le référentiel de l'atome, la position du noyau, et donc l'origine du potentiel coulombien associé, n'est pas exactement fixe. Il est cependant possible de rendre compte de cet effet, dit *de recul*, en corrigeant l'énergie propre de l'électron par un facteur $1/(1 + \mu_{eN})$ [COHEN-TANNOUJJI 1973a, § VII.B], où μ_{eN} est le rapport de la masse de l'électron à celle du noyau. Nous appellerons par la suite $E_r = E_0/(1 + \mu_{eN})$ l'énergie réduite de l'électron.

L'hamiltonien correspondant s'écrit, avec $\mathbf{p} = -i\hbar\nabla$ l'impulsion de l'électron :

$$H_S = \frac{\mathbf{p}^2 c^2}{2E_r} - \frac{\alpha \hbar c}{r}$$

Une base commode d'états stationnaires, vecteurs propres de H_S , est celle indexée par L, m_L, m_S, m_I et un entier positif n appelé nombre quantique principal. Ses éléments, que nous noterons de façon abrégée $|nLm_Lm_Sm_I\rangle$, sont donnés par :

$$\begin{aligned} \langle r | nLm_Lm_Sm_I \rangle &= R_{nL}(r) |L, m_L\rangle |S, m_S\rangle |I, m_I\rangle \\ \text{avec } R_{nL}(r) &= a_r^{-3/2} \left(\frac{2r}{na_r} \right)^L e^{-\frac{r}{na_r}} \mathcal{L}_{n-L-1}^{2L+1} (2r/na_r) / N_{nL} \end{aligned}$$

où \mathcal{L} est le symbole des polynômes de Laguerre associés¹ et $a_r = \hbar c / \alpha E_r$ le rayon de Bohr réduit. Le coefficient de normalisation N_{nL} , tel que $\langle \Psi | \Psi \rangle = \int r^2 dr R_{nL}^2(r) = 1$, vaut :

$$N_{nL} = \frac{n^2}{2} \sqrt{\frac{(n+L)!}{(n-L-1)!}}$$

L'énergie des états stationnaires de Schrödinger ne dépend que de leur nombre quantique principal, et ne diffère de (I.1) qu'au travers de la correction de recul :

$$E_S = -\frac{\alpha^2 E_r}{2n^2}$$

On remarque à ce stade une première différence entre le deutérium et le protium : l'énergie réduite du premier est $(1 + \mu_{ep}) / (1 + \mu_{ed}) = 1,0003$ fois plus grande que celle du second. Cela correspond à une différence de 795 GHz entre la fréquence de la transition $1S - 3S$ du deutérium et celle du protium.

I.3 Hamiltonien de Dirac

Le modèle de l'électron dans un potentiel coulombien fixe peut également être traité de façon relativiste, et tenir compte du spin de l'électron [DIRAC 1928]. L'hamiltonien correspondant couple les états d'énergie positive et négative au travers des matrices de Dirac α et β :

$$H_D = c \boldsymbol{\alpha} \cdot \mathbf{p} + (\beta - 1)E_0 - \frac{\alpha \hbar c}{r}$$

1. Ces polynômes sont reliés aux fonctions hypergéométriques F par :

$$\mathcal{L}_{n-L-1}^{2L+1}(x) = \frac{(2L+1+n)!}{(2L+1)! n!} {}_1F_1(L+1-n, 2L+2, x).$$

Une base commode de vecteurs propres de $H_{\mathcal{D}}$ est celle indexée par n , J , m_J , m_I et un nombre quantique $\varpi = \pm 1$ associé à la parité de l'état [MESSIAH 1959, § XX.25]. Ses éléments seront distingués par la suite au moyen d'un indice \mathcal{D} . Ils s'écrivent en représentation standard (de Dirac) comme un bispineur $(\Psi_+; \Psi_-)$, superposition d'une grande (+) et d'une petite (-) composante de moments orbitaux différents. Ils sont donnés par :

$$\begin{aligned} \langle r | \Psi_{\pm} \rangle_{\mathcal{D}} &= R_{\mathcal{D}}^{\pm}(r) \langle J \pm \frac{\varpi}{2}, m_J - m_S; S, m_S | J, m_J \rangle \\ &\quad \times | L = J \pm \frac{\varpi}{2}, m_L = m_J - m_S \rangle | S, m_S \rangle | I, m_I \rangle \end{aligned}$$

Les fonctions $R_{\mathcal{D}}^{\pm}$ peuvent s'exprimer au moyen de polynômes de Laguerre [PIDDUCK 1929], comme pour les états stationnaires de l'hamiltonien de Schrödinger, dont elles ne se distinguent notablement qu'au travers d'une singularité en $r = 0$ [BETHE 1957, § 15]. C'est pourquoi, dans ce qui suit, nous pourrions souvent nous contenter d'évaluer les éléments de matrice qui nous intéressent dans une base d'états stationnaires de Schrödinger, et considérer comme une faible correction la différence induite par l'emploi de $R_{\mathcal{D}}^{\pm}$.

En première approximation, l'effet de recul du noyau se traduit sur l'énergie de chacun de ces états stationnaires par l'application d'un facteur d'échelle $1/(1 + \mu_{eN})$, tout comme pour les états de Schrödinger. On obtient alors, en posant $\tilde{n} = n - (J + \frac{1}{2}) + \sqrt{(J + \frac{1}{2})^2 - \alpha^2}$:

$$E_{\mathcal{D}} = \left(\frac{1}{\sqrt{1 + \frac{\alpha^2}{\tilde{n}^2}}} - 1 \right) E_r = - \frac{\alpha^2 E_r}{\tilde{n}^2 \left(1 + \frac{\alpha^2}{\tilde{n}^2} + \sqrt{1 + \frac{\alpha^2}{\tilde{n}^2}} \right)} \quad (\text{I.2})$$

I.4 Corrections aux niveaux d'énergie de Dirac

Un certain nombre de corrections à l'énergie des états stationnaires de Dirac doivent être prises en compte pour modéliser plus fidèlement le spectre de l'atome. Nous ne considérerons dans cette section que celles qui ne dépendent pas du spin du noyau – autrement dit, celles qui s'appliquent à la *structure fine* du spectre de l'atome d'hydrogène. Les corrections restantes, correspondant à la *structure hyperfine* du spectre de l'atome, seront étudiées dans les sections suivantes. La figure I.2 illustre les ordres de grandeur des écarts entre les niveaux d'énergie de chacune de ces structures.

Les expressions des corrections présentées ici sont répertoriées dans la référence documentant l'ajustement 2018 du CODATA [TIESINGA 2021], nous ne les recopierons donc pas. Leurs valeurs en revanche, pour les états qui nous intéressent, sont recensées table I.1 : elles ont été calculées par nos soins au moyen d'un programme Python utilisant la librairie *mp-math* afin d'accroître sa résolution. Puisque nos mesures visent à déterminer la fréquence de la transition $1S - 3S$ avec une incertitude statistique de l'ordre de 1 kHz, les contributions inférieures à 0,1 kHz sont négligées.

I.4.1 Effets de recul

Le facteur correctif $1/(1 + \mu_{eN})$ appliqué aux énergies des états stationnaires de l'hamiltonien de Dirac ne permet pas de rendre compte de la totalité des effets de recul du noyau : il faut pour cela traiter l'atome comme un système à deux corps. Dans l'approximation faiblement relativiste [BARKER 1955], un tel traitement revient à ajouter à l'énergie (I.2) un terme

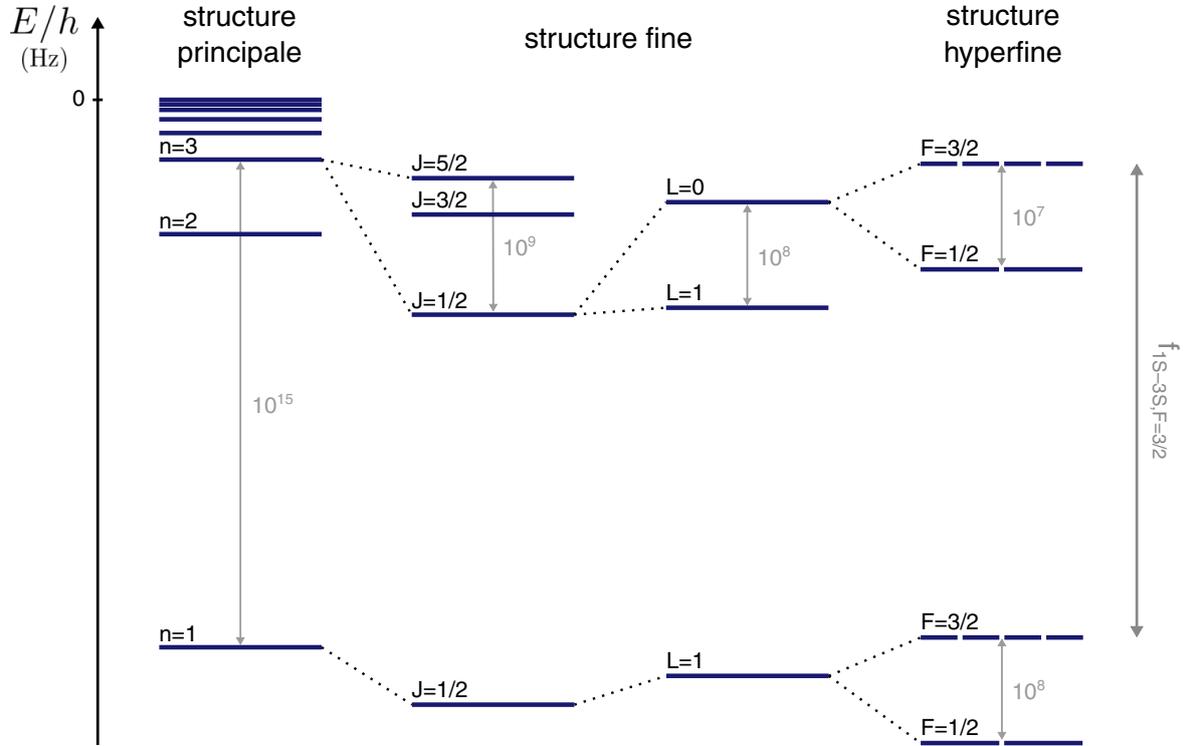


Fig. I.2 Structure des niveaux d'énergie de l'atome de deutérium (non à l'échelle).

Corrections (kHz)	$1S_{1/2} (p)$	$1S_{1/2} (d)$	$3S_{1/2} (p)$	$3S_{1/2} (d)$
Auto-énergie	8 383 339,47	8 389 889,81	319 185,78	319 435,49
Polarisation du vide	-214 825,08	-215 000,48	-7 956,80	-7 963,30
Recul	-21 424,34	-10 739,11	-190,81	-96,01
Taille du noyau	1 107,15	7 087,54	41,01	262,50
Deux et trois photons	728,80	729,40	27,24	27,26
Auto-énergie nucléaire	4,62	1,21	0,17	0,05
Corr. taille du noyau	0,82	-19,40	0,03	-0,71
Total $\Delta E_{\mathcal{D}}/h$	8 148 931,45	8 171 948,98	311 106,62	311 665,29

Table I.1 Valeurs numériques des corrections à l'énergie de Dirac (I.2) des états $1S$ et $3S$ du protium (p) et du deutérium (d). Les valeurs des constantes fondamentales utilisées (α , R_{∞} , μ_{eN} , $\mu_{\mu N}$ et r_N) sont celles de l'ajustement 2018 du CODATA [TIESINGA 2021].

correctif du deuxième ordre² en puissances de α . La fréquence de la transition $1S - 3S$ s'en trouve diminuée d'environ 24 MHz pour le protium, et de moitié moins pour le deutérium.

Les corrections découlant d'un traitement relativiste sont d'ordre supérieur : elles contribuent à accroître la fréquence de la transition $1S - 3S$ d'environ 2,5 MHz pour le protium (et moitié moins pour le deutérium). Leur calcul précis a été amélioré à l'occasion de la parution de l'ajustement 2018 du CODATA, mais cela ne s'est traduit sur la valeur théorique de la fréquence de la transition $1S - 3S$ du protium que par une modification de +0,6 kHz [YEROKHIN 2019].

Les effets de recul affectent également les effets radiatifs que nous verrons un peu plus loin : le prendre en compte modifie typiquement la fréquence prédite pour la transition $1S - 3S$ du protium de 12 kHz (et toujours moitié moins pour le deutérium). La somme de l'ensemble des corrections de recul, actualisées, figure table I.1 à la ligne « recul ».

1.4.2 Taille finie du noyau

L'extension spatiale du noyau n'étant pas nulle, le potentiel qu'il induit n'est pas exactement coulombien. Plus précisément, le potentiel perçu par l'électron de l'atome est moindre à l'intérieur du noyau, ce que l'on peut traduire en ajoutant au potentiel coulombien $-\alpha\hbar c/r$ le terme correctif suivant, où r_N est le rayon de charge du noyau [MILLER 2019] :

$$+\frac{\alpha\hbar c}{6}\frac{\delta(r)}{r^2}r_N^2$$

Le déplacement des niveaux d'énergie que ce terme provoque peut être calculé simplement dans une base d'états stationnaires de l'hamiltonien de Schrödinger, telle que $\{|nLm_Lm_Sm_I\rangle\}$, où les éléments de matrice de $\delta(r)/r^2$ sont diagonaux, donnés équation (B.1). Il vaut :

$$\Delta E_{\mathcal{D},\text{taille du noyau}} = \frac{2}{3}\frac{\alpha^4 E_r^3}{\hbar^2 c^2}\frac{\delta_{0,L}}{n^3}r_N^2$$

Le résultat est une diminution de la fréquence de la transition $1S - 3S$ d'environ 1 MHz pour le protium, et 7 MHz pour le deutérium. On peut ainsi s'attendre à ce que notre expérience soit plus sensible à la valeur du rayon de charge du second.

Des corrections d'ordre supérieur en puissance de α doivent encore être prises en compte, en particulier dans le cas du deutérium (voir la ligne « Corr. taille du noyau », table I.1). Elles correspondent à l'effet du potentiel non-coulombien sur l'échange de plusieurs photons entre l'électron et le noyau, conjointement à l'effet de la polarisabilité du noyau ainsi qu'à l'influence de ce potentiel sur les corrections radiatives décrites plus bas.

Notons que ces corrections ont récemment fait l'objet d'une réévaluation [PACHUCKI 2018], qui s'est traduite par une modification des valeurs prédites en 2014, pour la fréquence de la transition $1S - 3S$, de +0,4 kHz pour le protium, et -0,6 kHz pour le deutérium. Comme toutes les corrections recensées dans le cadre de l'ajustement 2018 du CODATA, cette modification est prise en compte table I.1.

Par ailleurs, le potentiel coulombien n'est que le premier ordre du développement multipolaire du potentiel induit par la charge électrique du noyau. La parité de ce dernier étant

2. Notons qu'on appelle usuellement *déplacement de Lamb* l'ensemble des corrections présentées dans la présente section I.4, à l'exception de cette contribution au deuxième ordre de l'effet de recul.

bien déterminée, le second ordre de ce développement est nul ; mais l'ordre suivant, quadripolaire, ne l'est pas dans le cas du deutérium. Toutefois, cet effet dépend du spin du noyau, il sera donc examiné plus loin, section I.6.4.

I.4.3 Corrections radiatives

Un certain nombre d'effets dits *radiatifs*, faisant intervenir des particules virtuelles, peuvent être considérés dans le cadre de l'électrodynamique quantique comme induisant des déplacements de l'énergie des états stationnaires de Dirac [ERICKSON 1977 ; EIDES 2001].

Ces effets sont principalement produits par l'émission suivie de l'absorption de photons virtuels par l'électron de l'atome, ainsi que par la création suivie de l'annihilation de paires électron-positron : ils sont, au premier ordre, respectivement désignés sous les termes d'auto-énergie et de polarisation du vide. Leurs contributions aux deuxième et troisième ordres forment ce qu'on appelle les corrections à deux et trois photons. Similairement, l'auto-énergie du noyau contribue aussi au déplacement des niveaux.

Les valeurs de ces corrections, indiquées dans la table I.1, sont calculées au moyen des formules recensées dans [TIESINGA 2021]. Elles tiennent compte des rectifications récemment apportées au calcul des corrections à deux photons [YEROKHIN 2019], qui modifient la fréquence prédite pour la transition $1S - 3S$, par rapport à l'ajustement 2014 du CODATA, de $-0,7$ kHz, pour le protium comme pour le deutérium.

Mentionnons enfin que la valeur numérique du total de ces corrections peut être estimée avec une incertitude théorique de l'ordre du kilohertz, pour les niveaux $1S$. Celle-ci rend compte des conséquences possibles des termes non évalués, et des approximations réalisées en modélisant la dépendance en α de certaines contributions. L'objet du présent travail étant de confronter à l'expérience une version supposée exacte de la théorie, nous ne prendrons toutefois pas cette incertitude en considération.

I.5 Hamiltonien de structure hyperfine

Les corrections à l'hamiltonien de Dirac qui dépendent du spin du noyau forment l'hamiltonien de structure hyperfine. L'une de ses caractéristiques est que, dans la base $\{|nLJFm_F\rangle\}$, la moyenne de ses valeurs propres à n , L et J donnés est nulle : c'est-à-dire que les niveaux d'énergie de la structure fine sont au barycentre des niveaux de structure hyperfine de mêmes n , L et J .

Dans l'approximation faiblement relativiste, l'hamiltonien de Dirac peut se mettre sous une forme s'appliquant aux composantes d'énergie positive, sans les coupler à celles d'énergie négative : il s'agit de l'hamiltonien de Pauli [PAULI 1927]. Dans le cas général où l'électron est soumis à un quadri-potentiel d'interaction³ (U^0, \mathbf{U}) , cet hamiltonien s'écrit :

$$H_{\mathcal{P}} = U^0 + \frac{c^2}{2E_0}(\mathbf{p} - \mathbf{U})^2 - i\frac{c^2}{E_0}\mathbf{S} \cdot (\mathbf{p} \times \mathbf{U}) \quad (\text{I.3})$$

Nous l'emploierons dorénavant pour traiter, plus simplement qu'avec l'hamiltonien de Dirac, l'effet d'un champ électromagnétique sur l'électron de l'atome. En particulier, nous

3. Ce quadri-potentiel est relié aux potentiels scalaire et vecteur usuels, ϕ et \mathbf{A} par : $U^0 = q\phi$ et $\mathbf{U} = q\mathbf{A}$, où $q = -e$.

allons ici l'utiliser pour modéliser l'influence du potentiel d'interaction engendré par le noyau de l'atome.

En considérant que le noyau se comporte comme un dipôle magnétique et qu'il possède un moment magnétique anomal⁴ a_N , ce potentiel peut s'écrire comme :

$$U_{DM}^0 = 0, \quad \mathbf{U}_{DM} = (1 + a_N) \frac{\alpha \hbar c}{E_N} \frac{\mathbf{r} \times \mathbf{I}}{r^3}$$

À l'hamiltonien de l'atome sans structure hyperfine s'ajoute par conséquence l'hamiltonien suivant, déduit de (I.3) en négligeant le terme non linéaire en \mathbf{U} :

$$H_{\mathcal{P},DM} = -\frac{c^2}{2E_0} (\mathbf{p} \cdot \mathbf{U}_{DM} + \mathbf{U}_{DM} \cdot \mathbf{p}) - i \frac{c^2}{E_0} \mathbf{S} \cdot (\mathbf{p} \times \mathbf{U}_{DM})$$

L'annexe B présente le calcul des éléments de matrice de cet hamiltonien. Dans la base $\{|nLJFm_F\rangle\}$, ils peuvent s'exprimer sous une forme simple, somme d'un terme diagonal et d'un terme strictement non diagonal.

Les éléments de matrice du terme diagonal sont appelés usuellement *énergies de Fermi* [FERMI 1930 ; BREIT 1931]. Posant $A_N = (1 + a_N) \alpha^4 E_r^3 / E_0 E_N$, $\Theta_{nLJ} = 1/n^3 J(J+1)(L+1/2)$ et $2K = F(F+1) - J(J+1) - I(I+1)$, ces éléments s'écrivent :

$$E_{\mathcal{F}} = A_N \Theta_{nLJ} K \tag{I.4}$$

Les éléments de matrice du terme non diagonal, qui ne couplent pas les états S , valent quant à eux :

$$\langle H_{\mathcal{P},DM}^{non\ diag.} \rangle = \frac{3}{2} A_N \frac{\langle \mathbf{I} \cdot \mathbf{L} \rangle / \hbar^2}{n^3 L(L+1)(L+1/2)} (1 - \delta_{J'J})$$

I.6 Corrections à la structure hyperfine

L'hamiltonien de Pauli ne rend pas compte de l'ensemble des effets associés au spin du noyau. Les effets subsidiaires sont faibles, mais non négligeables s'agissant de déterminer la fréquence de la transition $1S - 3S$ avec une incertitude statistique de l'ordre de 1 kHz (autrement dit de l'ordre de $A_N/h \times 10^{-5}$). Nous ne considérerons ici que ceux déplaçant l'énergie de Fermi de plus de 0,1 kHz, et négligerons les contributions s'appliquant aux termes non diagonaux de $H_{\mathcal{P},DM}$ dans la base $\{|nLJFm_F\rangle\}$.

Les corrections présentées ici sont similaires à celles compilées dans les références [HORBATSCH 2016] pour tous les niveaux d'énergie du protium, et [BRODSKY 1967] pour les niveaux de $n \leq 2$ du deutérium ; mais leur extension à l'ensemble des niveaux du deutérium est inédite.

I.6.1 Corrections relativistes

Pour décrire l'effet du potentiel \mathbf{U}_{DM} , nous aurions aussi pu utiliser l'hamiltonien relativiste suivant : $H_{\mathcal{D},DM} = c \boldsymbol{\alpha} \cdot \mathbf{U}_{DM}$. Mais nous lui avons préféré l'hamiltonien de Pauli, plus

4. D'après l'ajustement 2018 du CODATA, $a_p = 1,7928473447(8)$ et $a_d = -0,1429872693(3)$. Le moment magnétique anomal du noyau est relié au facteur de Landé g_N par $a_N = 2g_N m_N / m_p$.

commode pour le reste de nos calculs, que l'on préfère effectuer dans des bases d'états stationnaires de Schrödinger. Nous allons maintenant évaluer quelle erreur nous avons commise en n'employant pas $H_{D,DM}$.

Ses éléments de matrice diagonaux, calculés dans la base $\{|nLJFm_F\rangle_{\mathcal{D}}\}$ des états stationnaires de Dirac (I.3), s'expriment comme dans le cas non relativiste (I.4) sous la forme :

$$E_{\mathcal{F}}^{rel} = A_N \Theta_{nLJ}^{rel} K$$

On a, en notant $N = \sqrt{n^2 + 2(n - |\kappa|)(\gamma - |\kappa|)}$, et $\gamma = \sqrt{(J + 1/2)^2 - \alpha^2}$ [PYKKÖ 1973] :

$$\Theta_{nLJ}^{rel} = \frac{2|\kappa|}{J(J+1)} \frac{|N - 2\kappa(\gamma + n - |\kappa|)|}{N^4\gamma(4\gamma^2 - 1)}$$

On peut ainsi corriger l'énergie de Fermi en la multipliant par [WUNDT 2011] :

$$\frac{\Theta_{nLJ}^{rel}}{\Theta_{nLJ}} \approx 1 + \alpha^2 \left(\frac{12\kappa^2 + 1}{2\kappa^2(2\kappa - 1)(2\kappa + 1)} + \frac{3}{2|\kappa|n} + \frac{3 - 8\kappa}{2(2\kappa - 1)n^2} \right) \equiv 1 + \delta_{rel}$$

La correction qui en résulte, dans le cas de la transition $1S - 3S$, est donnée table I.2.

I.6.2 Moment magnétique anomal de l'électron

Ni l'hamiltonien de Pauli ni celui de Dirac ne décrivent tout à fait correctement le moment magnétique d'un électron libre. Dans l'hamiltonien de Pauli (I.3), il faut pour cela multiplier \mathbf{S} par $(1 + a_e)$, où a_e est le moment magnétique anomal de l'électron⁵.

La prise en compte de ce terme supplémentaire dans l'hamiltonien de structure hyperfine se ramène, en utilisant (B.2), à multiplier l'énergie de Fermi par un facteur $(1 + \delta_{a_e})$, avec $\delta_{a_e} = a_e$ pour les états S , et $\delta_{a_e} = a_e/2\kappa$ pour les autres [HORBATSCHE 2016].

I.6.3 Corrections de recul

Considérer l'atome comme un système à deux corps revient à ajouter à l'hamiltonien de Pauli, en première approximation, le terme suivant [BARKER 1955 ; BRODSKY 1967]⁶ :

$$\frac{\alpha}{E_N^2} \frac{\mathbf{I} \cdot \mathbf{L}}{r^3} \left(a_N + \frac{1}{2} \right)$$

Ce terme est nul pour les états S , mais implique pour les autres de multiplier l'énergie de Fermi par un facteur correctif $(1 + \delta_{rec})$, avec :

$$\delta_{rec} = \left(1 - \frac{1}{2\kappa} \right) \frac{a_N + 1/2}{a_N + 1} \mu_{eN}$$

5. D'après l'ajustement 2018 du CODATA, $a_e = \frac{\alpha}{2\pi} - 0,33 \left(\frac{\alpha}{\pi} \right)^2 + \dots = 1,15965218128(18) \times 10^{-3}$.

6. Dans la référence [BRODSKY 1967], le moment magnétique anomal du noyau est noté $\kappa_N = 2I(1 + a_N) - 1$.

1.6.4 Moment quadrupolaire électrique

L'ajout d'un terme quadrupolaire électrique au potentiel d'interaction perçu par l'électron de l'atome se traduit, pour $I \geq 1$ et $J \geq 1$, par un déplacement de l'énergie des états de Schrödinger [ARMSTRONG 1971, § VIII.1; ARIMONDO 1977] :

$$\Delta_{QE} = \alpha \hbar c \langle r^{-3} \rangle Q \frac{2J-1}{2J+2} \frac{3K(K+1) - 4I(I+1)J(J+1)}{8I(2I-1)J(2J-1)}$$

Pour le deutérium, on retiendra la valeur de $Q = 2,86 \times 10^{-31} \text{ m}^2$ [REID 1975]. Pour les états $3P_{3/2}$ et $3D$ du deutérium, ces corrections sont non nulles, et de l'ordre du kHz.

1.6.5 Autres corrections pour les états S

La nécessité de prendre en compte la structure du noyau rend particulièrement complexe le calcul des corrections restantes pour les états S , dont la fonction d'onde n'est pas nulle en $r = 0$. Heureusement, il se trouve que ces corrections, écrites sous la forme d'un facteur $(1 + \delta)$ à l'énergie de Fermi, dépendent peu de l'état S considéré. On peut donc simplifier leur évaluation en les décomposant comme la somme d'une partie constante et d'une partie variable selon n , et en déterminant la première par comparaison avec la mesure d'une fréquence de transition hyperfine, celle de l'état fondamental par exemple [KARSHENBOIM 2002].

Au degré de précision visé, la partie variable découle d'effets radiatifs (auto-énergie et polarisation du vide en présence du potentiel U_{DM}) et d'effets de recul (d'ordre 2 en puissances de α) [JENTSCHURA 2006]⁷ :

$$\delta_{rad}^{var}(nS_{1/2}) = \frac{\alpha}{\pi} (Z\alpha)^2 \left[N(n) + \frac{15}{8n} - \frac{9}{8n^2} + \frac{8}{3} \left(\ln \left(\frac{1}{2(Z\alpha)^2} \right) + \frac{439}{480} \right) \left(\psi(n) - \ln(n) - \frac{1}{n} + \frac{1}{4n^2} \right) \right]$$

$$\delta_{rec}^{var}(nS_{1/2}) = (Z\alpha)^2 \mu_{eN} \left[\frac{3}{2n^2} - \frac{1+a_N}{4} \left(-\frac{9}{14n} + \frac{1}{28n^2} + \psi(n) - \ln(n) \right) + \left(\frac{1}{4(1+a_N)} - \frac{1}{2} \right) \left(\frac{1}{2n} + \frac{5}{12n^2} + \psi(n) - \ln(n) \right) \right]$$

Le coefficient N , évalué numériquement, vaut 17,85567203 pour $n = 1$ et 10,449809 pour $n = 3$. ψ est ici la fonction digamma, la constante d'Euler valant $-\psi(1)$.

Les mesures les plus précises, à ce jour, de l'écart hyperfin fondamental du protium et du deutérium sont [HELLWIG 1970; WINELAND 1972] :

$$\Delta E_{hf}^{exp}(1S_{1/2})/h = \begin{cases} 1420,405751768(1) \text{ MHz} & \text{pour le protium} \\ 327,384352522(2) \text{ MHz} & \text{pour le deutérium} \end{cases}$$

Reprenant l'ensemble des résultats de cette section, cet écart a pour expression théorique :

$$\Delta E_{hf}^{th}(nS_{1/2}) = A_N \Theta_{nS_{1/2}} (2I+1)(1+\delta_{rel})(1+\delta_{a_e})(1+\delta_{rad}^{var} + \delta_{rec}^{var} + \delta^{cst})$$

7. Le numéro atomique de l'hydrogène vaut bien sûr $Z = 1$, mais il figure ici pour distinguer les dépendances en $Z\alpha$ et celles en α/π .

Corrections (kHz)	$1S_{\frac{1}{2},F=1}$ (p)	$1S_{\frac{1}{2},F=\frac{3}{2}}$ (d)	$3S_{\frac{1}{2},F=1}$ (p)	$3S_{\frac{1}{2},F=\frac{3}{2}}$ (d)
$\delta_{a_e} \times E_{\mathcal{F}}/h$	411,34	126,39	15,24	4,68
$\delta_{rel} \times E_{\mathcal{F}}/h$	28,34	8,71	1,49	0,46
$\delta_{autres} \times E_{\mathcal{F}}/h$	-48,26	3,79	-1,77	0,15
Total $\Delta E_{\mathcal{F}}/h$	391,41	138,89	14,96	5,29

Table I.2 Valeurs numériques des corrections à l'énergie de Fermi des états $1S$ et $3S$, pour $F = I + 1/2$, du protium (p) et du deutérium (d). Les valeurs des constantes fondamentales utilisées sont celles de l'ajustement 2018 du CODATA [TIESINGA 2021].

On obtient alors, par comparaison avec les résultats expérimentaux, $\delta^{cst} = -1,342 \times 10^{-4}$ pour le protium, et $\delta^{cst} = 3,682 \times 10^{-5}$ pour le deutérium. En utilisant ces valeurs, on peut calculer l'écart hyperfin pour $n = 2$ et le comparer aux résultats expérimentaux les plus précis [KOLACHEVSKY 2004] : la différence est de 24 Hz pour le protium, et de 1 Hz pour le deutérium.

Enfin, pour les états de $L \neq 0$, les corrections radiatives [JENTSCHURA 2010; WUNDT 2011] et de structure nucléaire [SHABAEV 1994] peuvent être considérées comme négligeables.

I.6.6 Autres corrections pour les états de $L \neq 0$

Au même ordre en puissances de α que pour les états S , les corrections radiatives qu'il nous reste à considérer valent, pour $L = 1$ [JENTSCHURA 2010] :

$$\begin{aligned}\delta_{rad}(nP_{1/2}) &= \frac{\alpha}{\pi}(Z\alpha)^2 \left(3,437610 - 2 \left(1 - \frac{1}{n^2} \right) \ln(Z\alpha)^{-2} \right) \\ \delta_{rad}(nP_{3/2}) &= \frac{\alpha}{\pi}(Z\alpha)^2 \times 0,12609\end{aligned}$$

Pour $L > 1$, avec $\beta_{3,1/2} = -2,06839 \times 10^{-2}$ et $\beta_{3,3/2} = -3,45522 \times 10^{-2}$ [WUNDT 2011] :

$$\delta_{rad}(nL_J) = \frac{\alpha}{\pi}(Z\alpha)^2 \left(\frac{(4\kappa + 1)(6\kappa + 1)(6\kappa^2 + 3\kappa - 1)}{8\kappa^3(2\kappa + 1)^2(2\kappa - 1)(\kappa + 1)} + \frac{3(6\kappa + 1)}{8|\kappa|\kappa(2\kappa + 1)} \frac{1}{n} + \frac{4\kappa - 1}{2\kappa(1 - 2\kappa)} \frac{1}{n^2} + \beta_{nJ} \right)$$

Pour $l \neq 0$, les autres effets, et notamment ceux associés à la structure du noyau [SHABAEV 1994], sont négligeables dans le cas de l'hydrogène.

I.7 Dépendance aux valeurs des constantes fondamentales

En résumé, l'écart théorique entre les niveaux d'énergie de structure fine $1S$ et $3S$, barycentres des niveaux correspondants de structure hyperfine, vaut :

$$\begin{aligned}hf_{1S-3S}^{th} &= \left(E_{\mathcal{D}}(3S_{1/2}) + \Delta E_{\mathcal{D}}(3S_{1/2}) \right) - \left(E_{\mathcal{D}}(1S_{1/2}) + \Delta E_{\mathcal{D}}(1S_{1/2}) \right) \\ \Rightarrow f_{1S-3S}^{th} &= \begin{cases} 2\,922\,743\,278\,664,8 \text{ kHz} & \text{pour le protium} \\ 2\,923\,538\,534\,385,2 \text{ kHz} & \text{pour le deutérium} \end{cases}\end{aligned}$$

X	$\left \frac{u(X)}{X} \right $	$\left \frac{X}{f} \frac{\partial f}{\partial X} \right $	$\left u(X) \frac{\partial f}{\partial X} \right $
R_∞	$1,9 \times 10^{-12}$	1	6 kHz
α	$1,5 \times 10^{-10}$	2×10^{-5}	0,009 kHz
μ_{ep}	$6,0 \times 10^{-11}$	5×10^{-4}	0,09 kHz
μ_{ed}	$3,5 \times 10^{-11}$	3×10^{-4}	0,03 kHz
r_p	$2,2 \times 10^{-3}$	7×10^{-10}	5 kHz
r_d	$3,5 \times 10^{-4}$	5×10^{-9}	5 kHz

Table I.3 Pour chaque constante fondamentale employée dans le calcul de la fréquence de la transition $1S - 3S$, ce tableau présente : l'incertitude relative sur sa détermination [TIESINGA 2021]; la sensibilité de f_{1S-3S}^{th} à sa valeur; et la contribution de l'incertitude sur sa détermination à l'incertitude sur f_{1S-3S}^{th} .

L'écart théorique entre les niveaux d'énergie de structure hyperfine $1S_{1/2,F=I+1/2}$ et $3S_{1/2,F=I+1/2}$, que l'on cherche à mesurer dans la suite de ce travail, vaut :

$$\begin{aligned}
 hf_{1S-3S,F=I+1/2}^{th} &= hf_{1S-3S}^{th} + \left(E_{\mathcal{F}}(3S_{1/2,F}) + \Delta E_{\mathcal{F}}(3S_{1/2,F}) \right) - \left(E_{\mathcal{F}}(1S_{1/2,F}) + \Delta E_{\mathcal{F}}(1S_{1/2,F}) \right) \\
 \Rightarrow f_{1S-3S,F=I+1/2}^{th} &= \begin{cases} 2\,922\,742\,936\,715,7 \text{ kHz} & \text{pour le protium} \\ 2\,923\,538\,429\,299,1 \text{ kHz} & \text{pour le deutérium} \end{cases}
 \end{aligned}$$

Nous avons pris, pour ces calculs, les valeurs de R_∞ , α , μ_{eN} et r_N issues de l'ajustement 2018 du CODATA. Comme l'indique la table I.3, l'incertitude sur la détermination de α et μ_{eN} est suffisamment faible pour ne pas constituer une limitation au calcul des fréquences de transition. Ce n'est cependant pas le cas pour R_∞ et r_N : c'est bien pourquoi leur détermination, si la théorie est considérée comme exacte, peut être améliorée par de nouvelles mesures des fréquences de transition telle que celle entreprise dans le présent travail de thèse.

Chapitre II

L'atome d'hydrogène en présence d'un rayonnement

L'hamiltonien de l'atome isolé, détaillé dans le chapitre précédent, sera désormais noté H_0 , et l'on écrira $E_k = \langle k|H_0|k \rangle$ l'énergie d'un quelconque de ses états propres $|k\rangle$.

Nous chercherons dans ce chapitre à décrire l'effet sur l'atome de l'application de différentes sortes de rayonnements, considérant successivement un champ magnétique puis électrique constant, un faisceau laser proche de la résonance à la transition $1S-3S$, et finalement les modes vides du rayonnement de fluorescence. Nous ne nous intéresserons pas ici à l'évolution des degrés de liberté de ces rayonnements, adoptant ainsi une approche semi-classique ; on supposera par ailleurs que l'atome se trouve dans un milieu non diélectrique.

Nous étudierons ensuite l'évolution temporelle de l'état de l'atome sous l'influence simultanée de ces diverses sources de rayonnement, avant de calculer la probabilité de fluorescence de l'atome depuis cet état, en fonction de la fréquence du faisceau laser d'excitation. Nous obtiendrons ainsi une forme de raie théorique utilisable par la suite pour analyser les spectres que nous aurons mesurés.

II.1 Effet Zeeman

II.1.1 Hamiltonien non relativiste

L'effet sur l'atome d'un champ magnétique uniforme et statique \mathbf{B} peut être décrit en insérant dans l'hamiltonien de Pauli le potentiel suivant :

$$U^0 = 0, \quad \mathbf{U} = e \frac{\mathbf{r} \times \mathbf{B}}{2}$$

Comme pour l'hamiltonien de structure hyperfine, le moment magnétique anormal de l'électron et l'effet de recul du noyau peuvent se traduire par des facteurs correctifs, valant respectivement $1 + a_e$ et $1 - \mu_{eN}$ [BETHE 1957, §47]. Par ailleurs, le couplage du spin du noyau au champ \mathbf{B} est à l'origine d'un terme supplémentaire, proportionnel à $\mathbf{I} \cdot \mathbf{B}$.

On obtient alors l'hamiltonien suivant, qui s'ajoute à celui de l'atome isolé, en utilisant la relation $\mathbf{p} \cdot (\mathbf{r} \times \mathbf{B}) = -\mathbf{L} \cdot \mathbf{B}$:

$$H_Z = ec^2 \left(\frac{1 + a_e}{E_0} \mathbf{S} \cdot \mathbf{B} + \frac{1 - \mu_{eN}}{2E_0} \mathbf{L} \cdot \mathbf{B} - \frac{1 + a_N}{E_N} \mathbf{I} \cdot \mathbf{B} \right) + e^2 c^2 \frac{(\mathbf{r} \times \mathbf{B})^2}{8E_0}$$

Nous choisirons dorénavant comme axe de quantification (Oz) la direction du champ magnétique, de sorte que $\mathbf{B} = B\mathbf{e}_z$. Les éléments de matrice de $\mathbf{L} \cdot \mathbf{e}_z$, $\mathbf{S} \cdot \mathbf{e}_z$ et $\mathbf{I} \cdot \mathbf{e}_z$ sont alors diagonaux dans la base $\{|nLm_Lm_Sm_I\rangle\}$ et valent respectivement $\hbar m_L$, $\hbar m_S$ et $\hbar m_I$.

Dans cette même base, les éléments de matrice non nuls du terme quadratique, appelé également *diamagnétique*, se calculent en utilisant [DELANDE 1988, eq. II-158] :

$$\langle nLm_Lm_Sm_I | (\mathbf{r} \times \mathbf{e}_z)^2 | nLm_Lm_Sm_I \rangle = a_r^2 n^2 \frac{(5n^2 + 1 - 3L(L+1))(L^2 + L - 1 + m_L^2)}{(2L-1)(2L+3)}$$

$$\begin{aligned} \langle nLm_Lm_Sm_I | (\mathbf{r} \times \mathbf{e}_z)^2 | n(L-2)m_Lm_Sm_I \rangle &= -\frac{5}{2} a_r^2 n^2 \sqrt{\frac{(n^2 - L^2)(n^2 - (L-1)^2)}{(2L-3)(2L-1)^2(2L+1)}} \\ &\quad \times \sqrt{(L^2 - m_L^2)((L-1)^2 - m_L^2)} \end{aligned}$$

II.1.2 Correction relativiste

L'effet d'un champ magnétique uniforme et statique dirigé selon Oz peut également être traité de façon relativiste, au travers de l'hamiltonien $H_{Z,rel} = \boldsymbol{\alpha} \cdot \mathbf{U}$. On fait alors l'hypothèse que l'anomalie du moment magnétique de l'électron, ainsi que l'effet de recul et le moment magnétique du noyau, peuvent être ignorés. Dans la base $\{|nLJm_Jm_I\rangle_{\mathcal{D}}\}$, les éléments de matrice diagonaux de $H_{Z,rel}$ valent, en introduisant le magnéton de Bohr $\mu_B = -e\hbar c^2/2E_0$ [SHABAEV 2015] :

$$\langle nLJm_Jm_I | \boldsymbol{\alpha} \cdot \mathbf{U} | nLJm_Jm_I \rangle_{\mathcal{D}} = -\mu_B B g_J^{rel} m_J$$

$$\text{avec } g_J^{rel} = \frac{\kappa}{2J(J+1)} \left(\frac{2\kappa}{\sqrt{1 + \frac{\alpha^2}{n^2}}} - 1 \right)$$

On peut comparer ce résultat avec les éléments diagonaux de l'hamiltonien non relativiste obtenu sous la même hypothèse [COHEN-TANNOUJJI 1973b, §D_X.3] :

$$\langle nLJm_Jm_I | -\mu_B \mathbf{B} \cdot (\mathbf{L} + 2\mathbf{S}) | nLJm_Jm_I \rangle = -\mu_B B g_J^{n.r.} m_J$$

$$\text{avec } g_J^{n.r.} = \frac{3}{2} - \frac{L(L+1) - S(S+1)}{2J(J+1)}$$

L'écart entre les deux fournit une correction relativiste que l'on peut simplement, en première approximation, additionner aux éléments diagonaux de H_Z , dans la base $\{|nLJm_Jm_I\rangle\}$:

$$-\mu_B B \Delta g m_J \quad \text{avec} \quad \Delta g = g_J^{rel} - g_J^{n.r.}$$

Cette correction est suffisante pour le degré de précision que l'on souhaite atteindre : le déplacement correspondant des fréquences de transition est au plus de l'ordre de 0,1 kHz/mT, et la valeur maximale de l'induction du champ magnétique perçue par l'atome dans notre expérience est de 20 mT. Mentionnons qu'elle est équivalente, dans le cas particulier des niveaux S et à la précision visée, à la correction de Breit que l'on trouve parfois écrite sous la forme $\Delta g = -\alpha^2/3n^2$ [BREIT 1928].

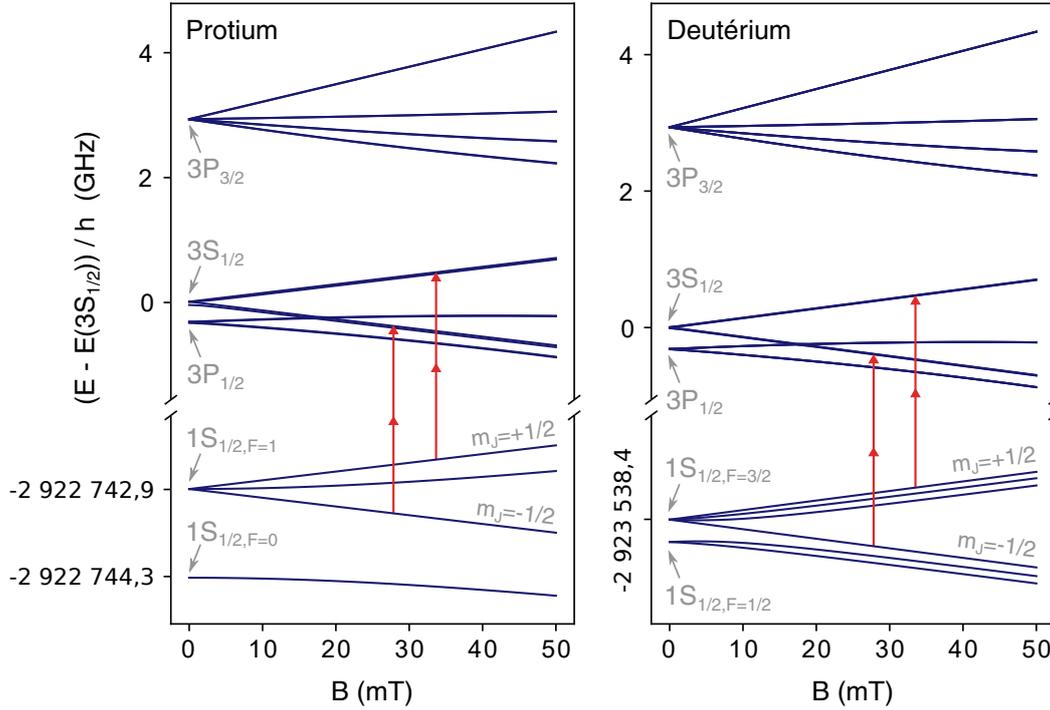


Fig. II.1 *Diagrammes Zeeman des niveaux d'énergie de $n = 1$ et $n = 3$, pour le protium et pour le deutérium, obtenus en diagonalisant $H_0 + H_Z$ (corrections relativistes incluses). Les double flèches indiquent les transitions $1S - 3S$ dont la fréquence est peu déplacée sous l'effet du champ magnétique, et que nous observerons plus loin pour caractériser la distribution des vitesses atomiques dans notre expérience.*

Une correction plus précise pourrait être obtenue en traitant simultanément les effets relativistes, de recul, et de l'anomalie du moment magnétique de l'électron [GROTCH 1973 ; ANTHONY 1994] ; et la correction des éléments non diagonaux de H_Z dans la base $\{|nLJm_Jm_I\rangle\}$ pourrait également être prise en compte [BRODSKY 1967, § II.C] ; mais le degré de précision de nos mesures ne le requiert pas. De même, les corrections radiatives suscitées par la présence du champ \mathbf{B} sont négligeables dans notre cas [PACHUCKI 2017 ; JENTSCHURA 2010].

II.2 Effet Stark

L'effet sur l'atome d'un champ électrique \mathbf{E} uniforme et statique peut être décrit en insérant dans l'hamiltonien de Pauli le potentiel suivant :

$$U^0 = e\mathbf{r} \cdot \mathbf{E}, \quad \mathbf{U} = \mathbf{0}$$

À l'hamiltonien de l'atome isolé s'ajoute alors un hamiltonien dit *Stark* : $H_{St} = U^0$. En représentation standard¹, l'orientation du champ \mathbf{E} , caractérisée par une colatitude θ et une

1. Par rapport à la représentation cartésienne, les vecteurs de base standards valent : $\mathbf{e}_0 = \mathbf{e}_z$, $\mathbf{e}_{\pm 1} = \mp(\mathbf{e}_x \pm i\mathbf{e}_y)/\sqrt{2}$.

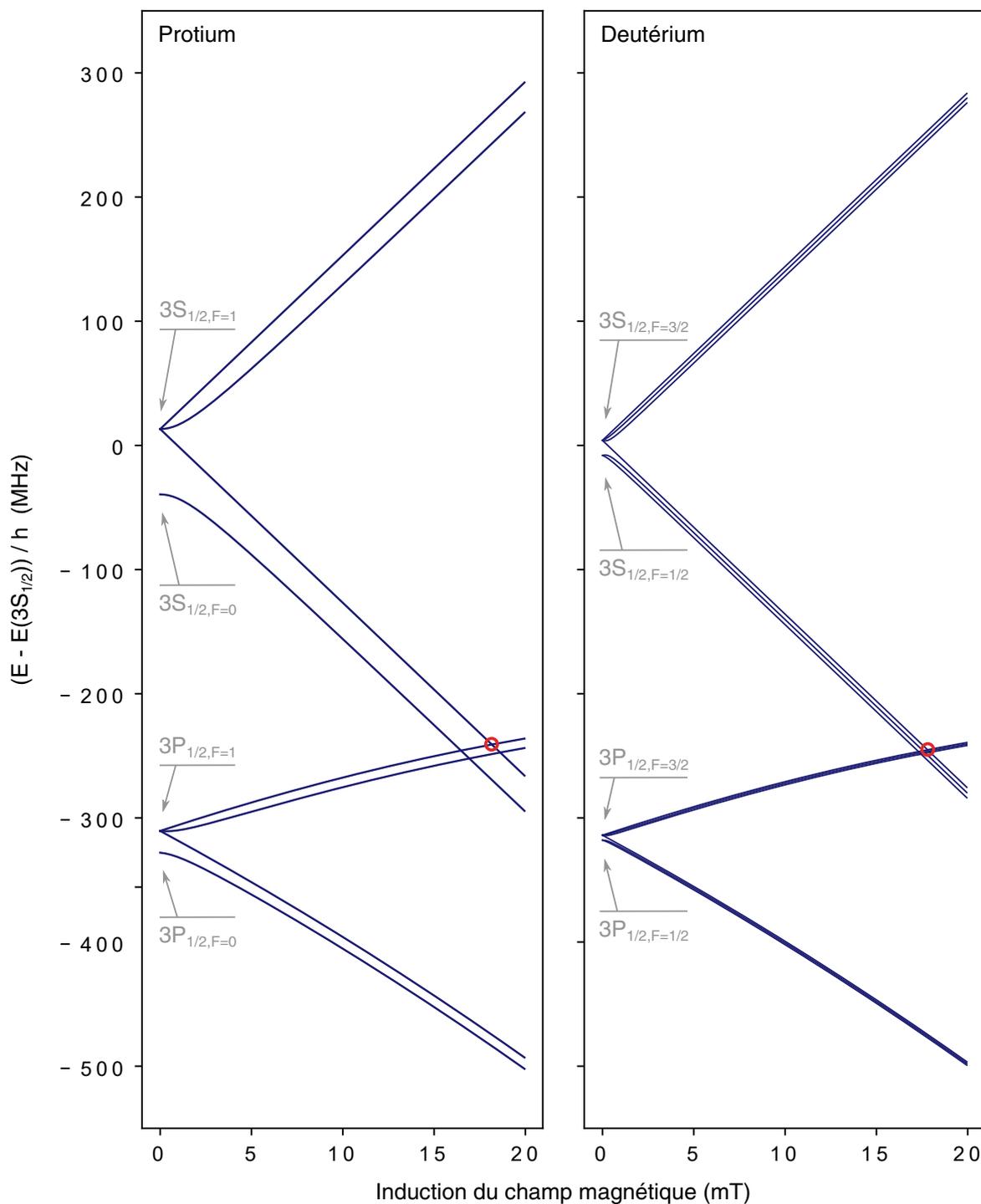


Fig. II.2 Restriction du diagramme Zeeman précédent aux niveaux $3S_{1/2}$ et $3P_{1/2}$, pour le protium et pour le deutérium. Le cercle indique la présence d'un anticroisement de niveaux que nous exploiterons plus loin pour caractériser la distribution des vitesses atomiques dans notre expérience.

longitude ϕ par rapport à l'axe de quantification Oz , peut être décomposée comme suit :

$$\frac{\mathbf{E}}{\|\mathbf{E}\|} = \cos \theta \mathbf{e}_0 - \frac{\sin \theta e^{-i\phi}}{\sqrt{2}} \mathbf{e}_{+1} + \frac{\sin \theta e^{i\phi}}{\sqrt{2}} \mathbf{e}_{-1}$$

Les éléments de matrice de H_{St} se calculent alors par l'intermédiaire des tenseurs $\mathbf{e}_q \cdot \mathbf{r}$, d'ordre 1, pour $q = 0, \pm 1$ [EDMONDS 1957, § 5.4] :

$$\langle n' L' J' m'_J m'_I | \mathbf{r} \cdot \mathbf{e}_q | n L J m_J m_I \rangle = (-1)^{J' - m'_J} \begin{pmatrix} J' & 1 & J \\ -m'_J & q & m_J \end{pmatrix} \langle n' L' J' | \mathbf{r} | n L J \rangle$$

$$\text{avec } \langle n' L' J' | \mathbf{r} | n L J \rangle = (-1)^{L' + S + J + 1} \sqrt{(2J' + 1)(2J + 1)} \begin{Bmatrix} L' & J' & S \\ J & L & 1 \end{Bmatrix} \langle n' L' | \mathbf{r} | n L \rangle$$

$$\text{et } \langle n' L' | r | n L \rangle = \frac{(-1)^{L'}}{\max(L', L)} \sqrt{(2L' + 1)(2L + 1)} \begin{pmatrix} L' & 1 & L \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \langle n' L' | \mathbf{r} | n L \rangle$$

On ignorera les éléments de matrice de H_{St} entre états de nombres quantiques principaux différents : ils contribuent de façon négligeable au déplacement des niveaux d'énergie. Il ne nous reste donc qu'à connaître l'élément de matrice suivant, non nul à condition que $|L' - L| = 1$ [DELANDE 1988, eq. I-48] :

$$\langle n L' | r | n L \rangle = \int dr r^3 R_{nL'}(r) R_{nL}(r) = -\frac{3}{2} a_r n \sqrt{n^2 - \max(L', L)^2}$$

Dans notre expérience, le principal champ électrique \mathbf{E} perçu par l'atome d'hydrogène, du point de vue du référentiel de l'atome, résulte de l'application d'un champ magnétique constant \mathbf{B}_{lab} dans le référentiel du laboratoire. Avec $\mathbf{v} = v \mathbf{e}_x$ la vitesse de l'atome par rapport au laboratoire, et en notant $\gamma = 1/\sqrt{1 - v^2/c^2}$, le changement de référentiel correspondant s'écrit : $\mathbf{E} = \gamma \mathbf{v} \times \mathbf{B}_{lab}$.

Pour \mathbf{B}_{lab} orienté selon Oz , le champ \mathbf{E} est alors perpendiculaire à l'axe de quantification et à \mathbf{v} (c'est-à-dire que $\theta = -\phi = \pi/2$), et on obtient :

$$H_{St} = e \frac{v \gamma B_{lab}}{\sqrt{2}} \mathbf{r} \cdot (\mathbf{e}_{+1} + \mathbf{e}_{-1})$$

Notons au passage que, dans ces conditions, le champ magnétique perçu par l'atome et intervenant dans l'expression de l'hamiltonien Zeeman vaut alors $\mathbf{B} = \gamma B_{lab} \mathbf{e}_z$.

II.3 Excitation à deux photons

II.3.1 Suppression partielle de l'effet Doppler

Un intérêt essentiel de la transition $1S - 3S$ tient à ce qu'elle ne peut se produire via l'absorption d'un seul photon, puisqu'ayant lieu entre états de même parité. L'absorption de deux photons contra-propageants devient alors possible, qui s'accompagne d'une compensation de l'effet Doppler non relativiste. C'est ce qui permet à la *spectroscopie à deux photons* de ne pas être limitée par l'élargissement Doppler des raies observées [CAGNAC 1973].

Dans notre expérience, l'excitation de la transition $1S - 3S$ est opérée au moyen d'un faisceau laser, de fréquence angulaire ω_L , se propageant dans une cavité Fabry-Perot linéaire. Nous considérerons que l'atome se déplace le long de l'axe Ox de cette cavité, avec une vitesse $\mathbf{v} = v\mathbf{e}_x$ dans le référentiel du laboratoire.

Par effet Doppler, l'atome perçoit des photons de fréquence $\omega_L^\pm = \gamma(1 \pm v/c)\omega_L$, selon qu'ils se propagent en sens inverse (+) ou dans le même sens (-) que lui. Dans le référentiel atomique, l'énergie d'une paire de photons se propageant dans des sens opposés ne dépend donc, effectivement, que faiblement de v :

$$\omega_L^+ + \omega_L^- = 2\gamma\omega_L \approx \left(2 + \frac{v^2}{c^2}\right)\omega_L$$

Dans cette configuration, toutes les classes de vitesse atomique sont susceptibles d'être excitées simultanément par une même fréquence laser, et donc de contribuer au pic de fluorescence détecté à résonance. Au contraire, dans le cas de deux photons co-propageants, seule une classe de vitesse peut être résonante à fréquence laser donnée : la contribution au spectre observé correspondante est donc de faible amplitude, élargie proportionnellement à la dispersion de la distribution des vitesses². En ce qui nous concerne, nous pourrions la négliger.

II.3.2 Hamiltonien effectif

La longueur d'onde du faisceau laser employé, 205 nm, est grande devant les dimensions de l'atome, qui n'est donc pas sensible à la dépendance spatiale du champ électrique du faisceau : nous décrirons celui-ci comme uniforme³, selon l'approximation dipolaire électrique. En notant I_\pm et $\boldsymbol{\epsilon}_\pm$ l'intensité et la polarisation associées aux deux sens de propagation du faisceau laser dans la cavité, le potentiel d'interaction correspondant peut alors s'écrire comme^{4, 5} :

$$U^0 = - \sum_{\pm} e \sqrt{\frac{2I_{\pm}}{\epsilon_0 c}} \cos(\omega_L^\pm t) \mathbf{r} \cdot \boldsymbol{\epsilon}_{\pm}, \quad \mathbf{U} = \mathbf{0}$$

En traitant ce potentiel comme une perturbation vis-à-vis de l'hamiltonien H_0 , on peut, au second ordre, calculer la probabilité par unité de temps qu'a l'atome de changer d'état en absorbant deux photons laser simultanément. Le recul subi par l'atome est nul au premier ordre en v/c . Entre un état $|a\rangle$ et un état $|b\rangle$ appartenant tous deux, ainsi que $|k\rangle$, à une base d'états stationnaires de l'atome isolé, cette probabilité vaut [GÖPPERT-MAYER 1931] :

$$P_{a \rightarrow b}^{2\gamma} = \frac{2\pi}{\hbar} \left| \sum_k \frac{\langle b|U^0|k\rangle \langle k|U^0|a\rangle}{\hbar\omega_L - (E_k - E_a)} \right|^2 \delta(E_b - E_a - (2 + v^2/c^2)\hbar\omega_L)$$

2. Nous verrons au chapitre suivant les caractéristiques de cette distribution. Pour le protium, l'élargissement Doppler associé est d'environ 15 GHz ; il est de 10 GHz pour le deutérium.

3. Nous verrons au chapitre suivant que l'atome se déplace à une vitesse de l'ordre du kilomètre par seconde le long de l'onde stationnaire formée par le faisceau dans la cavité Fabry-Perot. Le temps de traversée d'un ventre de cette onde est donc de l'ordre de 0,1 ns, ce qui est très petit devant, typiquement, la période des oscillations de Rabi associées à l'excitation à deux photons : $T_{\text{Rabi}} = h/2\langle 3S|Q|1S\rangle = 0,5$ ms, pour $I_L = 10^8$ W/m². C'est donc l'intensité moyenne du faisceau que perçoit l'atome.

4. La jauge ici choisie est celle qui simplifie la convergence des calculs qui nous intéressent [BASSANI 1977] ; mais un autre choix de jauge est naturellement possible [COHEN-TANNOUJJI 1987, § E_{IV}].

5. Rappelons que la permittivité du vide ϵ_0 vérifie : $\alpha = e^2/4\pi\epsilon_0\hbar c$.

En l'absence de niveaux intermédiaires résonants avec le faisceau laser, chacune des fractions sommées dans le module au carré ne dépend que de façon négligeable de ω_L et de l'effet Doppler. La distribution δ de Dirac traduit la conservation de l'énergie au cours du processus.

Ce résultat est équivalent à celui auquel conduit, au premier ordre de perturbation, un hamiltonien effectif $H_{2\gamma}$ d'excitation à deux photons [GRYNBERG 2010, § 2.3.3]. Nous exprimerons un tel hamiltonien dans le cadre de l'approximation quasi-résonante⁶, considérant que la fréquence du faisceau laser reste proche de la résonance à deux photons de la transition $1S - 3S$. Nous ignorerons également les termes correspondant à l'absorption de photons co-propageants. Par ailleurs, dans notre cas, les deux sens de propagation du faisceau laser auquel est exposé l'atome ont la même intensité ($I_+ = I_- = I_L/2$) et la même polarisation, verticale ($\epsilon_+ = \epsilon_- = e_z$).

Entre un état $|a\rangle$ et un état $|b\rangle$ de plus haute énergie, les éléments de matrice de $H_{2\gamma}$ s'écrivent alors :

$$\langle b|H_{2\gamma}|a\rangle = \langle b|Q|a\rangle e^{-i\left(2+\frac{v^2}{c^2}\right)\omega_L t} \quad \text{et} \quad \langle a|H_{2\gamma}|b\rangle = \langle a|Q|b\rangle e^{+i\left(2+\frac{v^2}{c^2}\right)\omega_L t}$$

$$\text{avec} \quad Q = \alpha \mathbf{r} \cdot \mathbf{e}_z \frac{1}{\hbar\omega_L - (H_0 - E_a)} \mathbf{r} \cdot \mathbf{e}_z I_L h$$

L'opérateur Q peut en général s'écrire comme la somme de deux opérateurs tensoriels irréductibles, d'ordres 0 et 2 [GRYNBERG 1976]. Entre des états de la base $\{|nLJFm_F\rangle\}$ tels que $J' = J = 0$ ou $1/2$, Q n'est cependant que d'ordre 0, indépendant de F et m_F , et le calcul numérique de ses éléments de matrice donne [HAAS 2006] :

$$\langle 3S_{1/2}|Q|1S_{1/2}\rangle/I_L h = 1,033 \times 10^{-5} \text{ Hz}/(\text{W}/\text{m}^2)$$

Entre des états tels que $J' \neq J$, Q n'est que d'ordre 2, et les éléments de matrice qui nous intéressent valent :

$$\langle n'L'J'F'm'_F|Q|nLJFm_F\rangle = (-1)^{F'-m'_F} \begin{pmatrix} F' & 2 & F \\ -m'_F & 0 & m_F \end{pmatrix} \langle n'L'J'F'\|Q\|nLJF\rangle$$

$$\langle n'L'J'F'\|Q\|nLJF\rangle = (-1)^{J'+I+F+2} \sqrt{(2F'+1)(2F+1)} \begin{Bmatrix} J' & F' & I \\ F & J & 2 \end{Bmatrix} \langle n'L'J'\|Q\|nLJ\rangle$$

$$\langle n'L'J'\|Q\|nLJ\rangle = (-1)^{L'+S+J+2} \sqrt{(2J'+1)(2J+1)} \begin{Bmatrix} L' & J' & S \\ J & L & 2 \end{Bmatrix} \langle n'L'\|Q\|nL\rangle$$

$$\langle n'L'\|Q\|nL\rangle/I_L h = -6,166 \times 10^{-5} \text{ Hz}/(\text{W}/\text{m}^2)$$

Il ne nous est en fait pas nécessaire de connaître avec précision les valeurs numériques des éléments de matrice non diagonaux de $H_{2\gamma}$; nous ne rechercherons donc pas de corrections de recul, relativiste ou radiative à ces éléments. Dans notre configuration expérimentale, I_L est en effet de l'ordre de $10^8 \text{ W}/\text{m}^2$: les éléments de matrice non diagonaux de $H_{2\gamma}$ sont donc de l'ordre du kHz, et l'on pourra négliger le déplacement des niveaux d'énergie qu'ils induisent au second ordre.

6. Dite aussi *du champ tournant*, cette approximation consiste à négliger, en représentation d'interaction, les termes rapidement oscillants de l'hamiltonien.

Ce qu'il nous est utile de connaître est seulement le rapport entre les éléments de matrice couplant les états $1S$ et $3S$ et ceux couplant les états $1S$ et $3D$, pour tenir compte d'un effet d'interférence, que nous examinerons plus loin (II.7.2), entre ces deux modes d'excitation possibles de l'atome.

Enfin, les éléments de matrice diagonaux de $H_{2\gamma}$ traduisent un déplacement des niveaux d'énergie de l'atome isolé, proportionnel à I_L , appelé déplacement lumineux [GRYNBERG 1976, §II.4]. Pour les niveaux qui nous intéressent, ces éléments valent [HAAS 2006] :

$$\begin{aligned}\langle 1S_{1/2}|Q|1S_{1/2}\rangle/I_L h &= -3,02 \times 10^{-5} \text{ Hz}/(\text{W}/\text{m}^2) \\ \langle 3S_{1/2}|Q|3S_{1/2}\rangle/I_L h &= 9,81 \times 10^{-5} \text{ Hz}/(\text{W}/\text{m}^2)\end{aligned}$$

Le déplacement de la fréquence de la transition $1S-3S$ attendu vaut donc $\langle 3S_{1/2}|Q|3S_{1/2}\rangle - \langle 1S_{1/2}|Q|1S_{1/2}\rangle \equiv \beta_{1S-3S} I_L h \approx h \times 13 \text{ kHz}$ pour $I_L = 10^8 \text{ W}/\text{m}^2$. Il nous sera toutefois plus simple d'ignorer ces termes lors du calcul des formes de raie et, à la place, d'extrapoler à intensité laser nulle les fréquences de transition mesurées.

II.4 Fluorescence

Une fois dans un état excité, suite par exemple à l'absorption de deux photons, l'atome présente une certaine probabilité par unité de temps de se désexciter au travers de la création, depuis les modes vides du rayonnement, d'un photon de fluorescence [COHEN-TANNOUJDI 2017, §XX.C ; LANDAU 1973, §44]. Nous traiterons cette interaction au premier ordre de perturbation, de façon non relativiste et en négligeant les couplages non résonants.

Dans le cadre de l'approximation dipolaire électrique, le potentiel d'interaction associé à l'émission d'un photon de fréquence angulaire ω_γ et de polarisation ϵ , localisé dans un volume V , peut s'écrire :

$$U^0 = e \sqrt{\frac{\hbar \omega_\gamma}{2\epsilon_0 V}} e^{i\omega_\gamma t} \mathbf{r} \cdot \epsilon, \quad \mathbf{U} = \mathbf{0}$$

Considérons qu'un tel photon est émis dans une direction \mathbf{n} donnée, de colatitude θ et de longitude ϕ , et que l'atome se désexcite d'un état $|a\rangle$ vers un état $|b\rangle$, appartenant tous deux à la base $\{|nLJFm_F\rangle\}$. La probabilité par unité de temps correspondante vaut :

$$d\Gamma_{a \rightarrow b}^{\mathbf{n}} = \sum_{\epsilon \perp \mathbf{n}} \frac{2\pi}{\hbar} |\langle b|U^0(\epsilon)|a\rangle|^2 \delta(E_b - E_a - \hbar\omega_\gamma) \frac{V d^3 \mathbf{k}_\gamma}{(2\pi)^3}$$

Dans cette expression, $d^3 \mathbf{k}_\gamma = k_\gamma^2 dk_\gamma \sin \theta d\theta d\phi$ est le volume infinitésimal de l'espace décrivant l'impulsion du photon, en notant celle-ci $\mathbf{k}_\gamma = k_\gamma \mathbf{n}$ (avec $k_\gamma = \omega_\gamma/c$). Le facteur $V d^3 \mathbf{k}_\gamma / (2\pi)^3$ est alors le nombre des états que le photon peut occuper dans ce volume infinitésimal. La distribution de Dirac δ traduit la conservation de l'énergie au cours de la transition ; et la somme sur les directions de polarisation perpendiculaires à \mathbf{n} , le caractère transverse du photon émis.

Cette dernière somme peut, par exemple, s'effectuer sur les directions de polarisation suivantes, perpendiculaires à \mathbf{n} et entre elles :

$$\mathbf{e}_\pm^\perp = \pm \left(\frac{\sin \theta}{\sqrt{2}} \mathbf{e}_0 + \frac{\cos \theta \pm 1}{2} \mathbf{e}_+ - \frac{\cos \theta \mp 1}{2} \mathbf{e}_- \right)$$

Cette décomposition nous permet de profiter, au travers du théorème de Wigner-Eckart, de ce que $\langle n' L' J' F' m'_F | \mathbf{r} \cdot \mathbf{e}_q | n L J F m_F \rangle \propto \delta_{q, m_F - m'_F}$ pour $q = 0, \pm 1$. Les éléments de matrice de $\mathbf{r} \cdot \mathbf{e}_q$ se calculent ensuite en utilisant les relations introduites section II.2 et, pour $n' \neq n$ et ⁷ $L' = L - 1$, la formule de Gordon [BETHE 1957, § 63] :

$$\begin{aligned} \langle n' L' | r | n L \rangle = a_r \frac{(-1)^{n'-L}}{4(2L-1)!} \sqrt{\frac{(n+L)!(n'+L)!}{(n-L-1)!(n'-L'-1)!}} \left(\frac{4nn'}{(n-n')^2} \right)^{L+1} \left(\frac{n-n'}{n+n'} \right)^{n+n'} \\ \times \left[{}_2F_1 \left(-n'+L'+1, -n+L+1, 2L, -\frac{4nn'}{(n-n')^2} \right) \right. \\ \left. - \left(\frac{n-n'}{n+n'} \right)^2 {}_2F_1 \left(-n'+L'+1, -n+L-1, 2L, -\frac{4nn'}{(n-n')^2} \right) \right] \end{aligned}$$

Dans notre expérience, la fluorescence de l'atome est détectée par un photomultiplicateur dirigé selon l'axe Oz , que l'on considérera comme insensible à la polarisation. En raison de son extension spatiale, ainsi que d'un dispositif optique visant à maximiser la fluorescence collectée, on peut retenir que les photons détectés sont ceux émis par l'atome dans l'ensemble des directions formant à l'axe Oz un angle θ compris entre 0 et Θ .

La probabilité de transition de $|a\rangle$ vers $|b\rangle$ associée à l'émission d'un photon détectable vaut alors, par unité de temps :

$$\int_{k_\gamma=0}^{\infty} \int_{\phi=0}^{2\pi} \int_{\theta=0}^{\Theta} d\Gamma_{a \rightarrow b}^n = \sum_{q=0, \pm 1} \eta_q(\Theta) \Gamma_{a \rightarrow b}^q$$

$$\text{avec } \Gamma_{a \rightarrow b}^q = \frac{4 \alpha \omega_\gamma^3}{3 c^2} |\langle b | \mathbf{r} \cdot \mathbf{e}_q | a \rangle|^2 \quad \text{et} \quad \eta_q(\Theta) = \frac{3}{4} \int_0^\Theta \sum_{\pm} (\mathbf{e}_{\pm} \cdot \mathbf{e}_q)^2 \sin \theta d\theta$$

Le coefficient η est normalisé à 4/3 de sorte que, si l'on intègre dans toutes les directions, on a $\eta_q(\pi) = 1$ quel que soit $q = 0, \pm 1$. Nous adopterons par la suite la convention selon laquelle $\Gamma_{a \rightarrow b}^q = 0$ si l'énergie de l'état $|a\rangle$ est inférieure à celle de $|b\rangle$.

Le photomultiplicateur est par ailleurs précédé d'un filtre, sélectionnant les photons qui lui parviennent autour d'une longueur d'onde de 656 nm, correspondant à l'écart en énergie entre les niveaux tels que $n = 3$ et $n = 2$. Ainsi, si l'on considère que l'atome se trouve initialement dans un état $|a\rangle$ tel que $n_a = 3$, la probabilité par unité de temps pour qu'un photon de fluorescence soit émis et soit détectable par notre expérience est égale à :

$$\sum_{\substack{b \\ n_b=2}} \sum_q \eta_q(\Theta) \Gamma_{a \rightarrow b}^q$$

La probabilité totale de désexcitation depuis l'état $|a\rangle$ vaut quant à elle, par unité de temps et toujours dans l'approximation dipolaire électrique :

$$\Gamma_a = \sum_b \sum_q \Gamma_{a \rightarrow b}^q$$

La durée de vie de l'état stationnaire $|a\rangle$, c'est-à-dire l'inverse de sa largeur naturelle, est $\tau_a = 1/\Gamma_a$. Il s'agit du temps caractéristique associé à l'évolution de l'atome sous l'effet de

7. Pour $L' = L + 1$, il suffit d'inverser dans l'expression les rôles de n et de n' .

l'émission spontanée. Pour les niveaux qui nous intéressent, cette durée de vie dépend peu de l'isotope considéré et vaut :

$$\tau_{3S} = 158,4 \text{ ns}, \quad \tau_{3P} = 5,3 \text{ ns} \quad \text{et} \quad \tau_{3D} = 15,5 \text{ ns}$$

Au-delà de l'approximation dipolaire électrique, d'autres transitions (quadrupolaires électriques, dipolaires magnétiques, dipolaires électriques à deux photons, etc.) peuvent également contribuer à la probabilité de désexcitation de l'atome par émission spontanée. Ces contributions sont cependant négligeables dans le cas des états de $n = 3$ [CRESSER 1986; JENTSCHURA 2008].

II.5 Équation d'évolution

Le processus de désexcitation par émission spontanée se déroule à une échelle de temps, de l'ordre de celle des fluctuations du vide, qui est nettement plus petite que les temps caractéristiques d'interaction avec les autres types de rayonnement considérés dans ce chapitre. C'est pourquoi l'on pourra traiter indépendamment l'influence sur l'évolution de l'atome, d'une part de l'émission spontanée, et d'autre part des champs magnétique et électrique constants et du faisceau laser.

On simplifiera la prise en compte de la première en considérant le vide de rayonnement comme un réservoir, c'est-à-dire qu'on négligera l'effet sur l'atome de l'évolution du vide de rayonnement, et qu'on tiendra pour faible son temps de corrélation ; on ne retiendra en outre que les désexcitations par émission spontanée résonantes. Sous ces hypothèses, la restriction aux degrés de liberté de l'atome de l'évolution du système global *atome - rayonnement* se traduit par l'équation de Bloch optique [COHEN-TANNOUJJI 1988, § V.A] :

$$\frac{d\rho}{dt} = i \left[\rho, \frac{H}{\hbar} \right] + \mathcal{L}\rho \quad (\text{II.1})$$

Dans cette équation, ρ est la matrice densité de l'atome, et $H = H_0 + H_Z + H_{St} + H_{2\gamma}$ son hamiltonien. L'opérateur de Lindblad \mathcal{L} résume l'effet de la désexcitation de l'atome par émission spontanée [AGARWAL 1974, § 6 ; FICEK 2005, § 2.1] :

$$\mathcal{L}\rho = \sum_{\epsilon} \sum_{a,b,c,d} \sqrt{\Gamma_{a \rightarrow b}^{\epsilon} \Gamma_{c \rightarrow d}^{\epsilon}} \left(|d\rangle \langle c| \rho |a\rangle \langle b| - \frac{|a\rangle \langle b| d\rangle \langle c| \rho + \rho |a\rangle \langle b| d\rangle \langle c|}{2} \right) \quad (\text{II.2})$$

Parmi les termes de l'hamiltonien de l'atome, $H_{2\gamma}$ dépend du temps. Il est cependant possible d'éliminer cette dépendance de l'équation de Bloch optique par le biais d'un changement de variable, tirant parti de ce que le reste de l'hamiltonien, contrairement à $H_{2\gamma}$, ne couple pas les états de nombres quantiques principaux différents. Parfois appelé *passage au référentiel tournant*, ce changement de variable $\rho \leftarrow \tilde{\rho}$ est défini par :

$$\langle b | \tilde{\rho} | a \rangle = e^{i(\varphi_b - \varphi_a)} \langle b | \rho | a \rangle \quad \text{avec} \quad \varphi_a = -(1 - \delta_{1, n_a}) \left(2 + \frac{v^2}{c^2} \right) \omega_L t$$

où n_a est le nombre quantique principal de l'état $|a\rangle \in \{|nLJFm_F\rangle\}$, et de même pour $|b\rangle$. En simplifiant les facteurs oscillants, et en notant $\tilde{H} = H_0 + H_Z + H_{St} + Q$, l'équation (II.1) se réécrit alors :

$$\frac{d\tilde{\rho}}{dt} + i \sum_{a,b} (\dot{\varphi}_a - \dot{\varphi}_b) |b\rangle \langle b | \tilde{\rho} | a\rangle \langle a| = i \left[\tilde{\rho}, \frac{\tilde{H}}{\hbar} \right] + \mathcal{L}\tilde{\rho} \quad (\text{II.3})$$

D'autres sources de relaxation que la désexcitation par émission spontanée pourraient être prises en compte dans cette équation. On peut notamment citer : les collisions inélastiques avec d'autres atomes [DEMTRODER 1981, § 3.3], la largeur spectrale du faisceau laser d'excitation [AVAN 1977; BURSHTEIN 1988], ou l'absorption ionisante de plus de deux photons [KOLACHEVSKY 2006].

Dans la mesure où ces divers effets se traduisent par l'insertion d'un taux de relaxation additionnel constant dans l'équation de Bloch optique, ils sont équivalents, dans le domaine fréquentiel, à la convolution du profil spectral par une fonction lorentzienne centrée. Nous choisirons donc plutôt d'en tenir compte au moment de l'analyse des résultats expérimentaux, en utilisant une forme de raie théorique convoluée par une fonction lorentzienne de largeur ajustable.

Plus généralement, la variété des facteurs d'élargissement homogène susceptibles d'affecter la résonance des atomes peut être modélisée en convoluant les formes de raie théoriques, non seulement par une fonction lorentzienne, mais également par une gaussienne, formant ainsi un profil dit *de Voigt*. Nous verrons cependant (chapitre VII) que le seul élargissement lorentzien suffit pour décrire correctement les spectres observés.

II.6 Calcul des formes de raie

Comme mentionné plus haut, l'hamiltonien Zeeman s'applique dans notre cas à un champ magnétique d'induction $B = \gamma B_{lab}$, et l'hamiltonien Stark, à un champ électrique d'amplitude $E = vB$. L'hamiltonien H' dépend donc de quatre paramètres, B , v , $f_L = \omega_L/2\pi$ et I_L , en fonction desquels nous allons maintenant chercher à calculer l'évolution de l'état de l'atome et sa probabilité de fluorescence.

Les composantes de l'état de l'atome associées à des nombres quantiques principaux différents de 1 et 3 jouent un rôle négligeable dans son évolution. Nous pourrions donc restreindre nos calculs à la base $\{|nLJFm_F\rangle\}_{n=1,3}$ de taille $N = 40$ pour le protium et $N = 60$ pour le deutérium. L'annexe A liste les éléments de cette base. L'équation d'évolution (II.3), qui est un système d'équations différentielles linéaires, du premier ordre et à coefficients constants, peut alors être mise sous une forme matricielle de dimension finie :

$$\dot{X} = AX$$

On notera pour cela X le vecteur colonne de taille N^2 formé par la matrice ρ dépliée : $X_{\mu+N(\nu-1)} = \rho_{\mu\nu}$ pour $\mu, \nu \in \llbracket 1; N \rrbracket$. Les éléments de A valent alors, pour $\kappa, \lambda, \mu, \nu \in \llbracket 1; N \rrbracket$:

$$A_{\mu+N(\nu-1), \kappa+N(\lambda-1)} = i \left(\frac{H'_{\lambda\mu}}{\hbar} \delta_{\kappa\nu} - \frac{H'_{\nu\kappa}}{\hbar} \delta_{\lambda\mu} - (\dot{\varphi}_n - \dot{\varphi}_{n'}) \delta_{\kappa\nu} \delta_{\lambda\mu} \right) + \sum_{\epsilon} \mathcal{L}_{\mu\nu\kappa\lambda}^{\epsilon}$$

$$\text{avec } \mathcal{L}_{\mu\nu\kappa\lambda}^{\epsilon} = \sqrt{\Gamma_{\lambda \rightarrow \nu}^{\epsilon} \Gamma_{\kappa \rightarrow \mu}^{\epsilon}} - \frac{1}{2} \sum_{\iota} \left(\sqrt{\Gamma_{\mu \rightarrow \iota}^{\epsilon} \Gamma_{\kappa \rightarrow \iota}^{\epsilon}} \delta_{\nu\lambda} + \sqrt{\Gamma_{\lambda \rightarrow \iota}^{\epsilon} \Gamma_{\nu \rightarrow \iota}^{\epsilon}} \delta_{\mu\kappa} \right)$$

La résolution de ce système, à partir d'un état initial $X(0)$ et après un temps d'interaction t avec le rayonnement, donne :

$$X(t) = e^{At} X(0)$$

L'exponentielle peut être calculée numériquement, utilisant par exemple des approximations de Padé, tels qu'implémentés dans la fonction *expm* du module Python *scipy.linalg*.

Nous prendrons pour condition initiale $X(0)$ le vecteur correspondant à la seule population de l'état fondamental :

$$\langle a|\rho(0)|a\rangle = \mathcal{K} e^{-E_a/kT} \quad \text{si } n_a = 1, \text{ et } 0 \text{ sinon}$$

Le coefficient de normalisation \mathcal{K} vérifie $\text{tr } \rho(0) = 1$. En pratique, l'écart hyperfin fondamental est négligeable devant l'énergie thermique à $T = 300 \text{ K}$: en ne commettant une erreur que de 0,01 %, on peut considérer les populations initiales des quatre états de $n = 1$ comme égales et valant $1/4$.

Une fois l'évolution de l'atome déterminée, l'utilisation du formalisme de la matrice densité n'est plus requise et, en choisissant une référence de phase $|r\rangle$ quelconque, on peut décrire l'atome par le vecteur d'état :

$$|\psi\rangle = \sum_k c_k |k\rangle \quad \text{avec} \quad c_k = \sqrt{\langle k|\rho(t)|k\rangle} e^{i \arg(\langle k|\rho(t)|r\rangle)}$$

La probabilité par unité de temps pour que l'atome, dans cet état, émette un photon de fluorescence détectable par notre dispositif vaut alors :

$$p_{fluo} = \sum_q \sum_{\substack{b \\ n_b=2}} \eta_q(\Theta) \left| \sum_{\substack{a \\ n_a=3}} \sqrt{\Gamma_{a \rightarrow b}^q} c_a \right|^2 \quad (\text{II.4})$$

Nous l'écrivons par la suite comme une fonction de la fréquence de la transition $1S - 3S$, supposée inconnue, et des autres paramètres déjà évoqués :

$$f_{1S-3S}, f_L, t, v, B, I_L \mapsto p_{fluo}(f_{1S-3S}, f_L, t, v, B, I_L)$$

La figure II.3 présente le résultat de ce calcul, pour des valeurs typiques des paramètres de notre expérience, en *unité de fréquence atomique*, c'est-à-dire en fonction du double de la fréquence du faisceau laser d'excitation. Le temps de calcul dépend de la taille de la base considérée : pour une valeur donnée de chacun des 6 paramètres de p_{fluo} , ce temps varie entre 0,5 s, en ne traitant que les niveaux $1S$ et $3S$ du protium ($N = 8$), et 85 s, en traitant aussi les niveaux $3P$ et $3D$ et dans le cas du deutérium ($N = 60$).

Le programme python utilisé pour ces calculs a été entièrement développé au cours du présent travail de thèse. Il permet potentiellement de modéliser toutes les transitions $1S - nS$ du protium et du deutérium. Par comparaison, le programme utilisé précédemment dans notre équipe [FLEURBAEY 2017a] était limité au traitement en régime stationnaire des seuls niveaux $3S$ et $3P$ du protium. Il reposait également sur certaines approximations, dont le nouveau programme est exempt, et que nous allons maintenant examiner.

II.7 Comparaison aux modèles antérieurs

II.7.1 Corrections pour les états tels que $L \neq 0$

Avant la réalisation du présent travail de thèse, le modèle théorique utilisé au sein de notre équipe n'incluait notamment pas de corrections relativistes, radiatives ou de recul aux éléments de matrice des hamiltoniens de structure hyperfine et Zeeman impliquant des

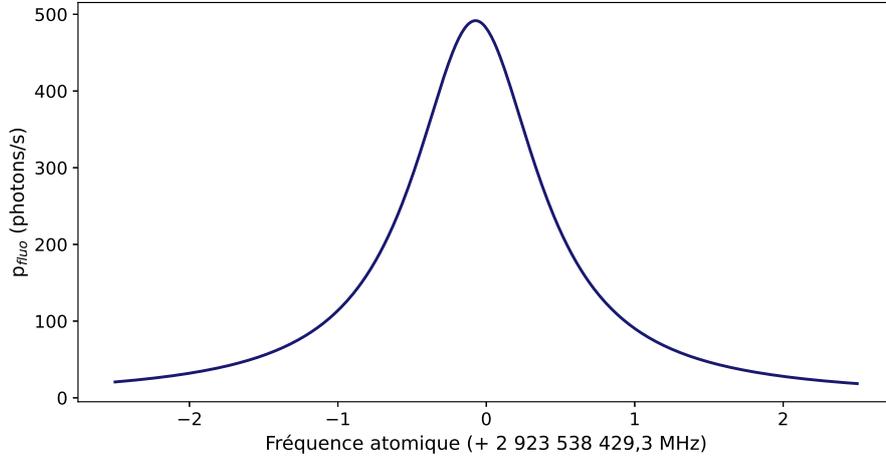


Fig. II.3 Probabilité de fluorescence du deutérium, par unité de temps, en fonction du double de la fréquence du faisceau laser d’excitation. Ici, sommée sur les polarisations σ_+ et σ_- , et pour $t = 10 \mu\text{s}$, $v = 2.1 \text{ km/s}$, $B = 0 \text{ T}$, $I_L = 10 \text{ kW/cm}^2$, $f_{1S-3S} = f_{1S-3S}^{th}$.

états $3P$ et $3D$. En l’absence de rayonnement, les corrections présentées dans ce manuscrit sont effectivement inutiles à la modélisation de la transition $1S - 3S$. Ce n’est cependant potentiellement pas le cas dès lors qu’intervient l’effet Stark, qui couple les états $3S$ aux états $3P$ et $3D$. En particulier, au voisinage d’un croisement de niveaux tel que celui indiqué figure II.2, les niveaux d’énergie sont proches, et une perturbation est alors susceptible d’avoir un effet important. Or la modélisation de la forme de raie à ce voisinage est cruciale pour déterminer la distribution des vitesses des atomes, ainsi que nous le verrons plus loin.

Pour le protium comme pour le deutérium, prendre en compte les corrections précitées modifie de $+1,0 \text{ kHz}$ la position des niveaux $3P_{1/2, m_J=1/2}$, en l’absence de champ magnétique B ; et modifie de $+37 \text{ Hz/mT}$ la dépendance linéaire en B de l’effet Zeeman pour ces niveaux. Le croisement de niveaux mentionné se produisant en $B = 18,16 \text{ mT}$ pour le protium, et en $B = 17,79 \text{ mT}$ pour le deutérium, une erreur totale de $1,6 \text{ kHz}$ était alors commise à son voisinage par l’ancien modèle théorique. Il apparaît toutefois, lorsqu’on calcule la forme de raie de la transition $1S - 3S$ à proximité de l’anticroisement, que la position de la raie n’est pas sensible à cette erreur, à 10 Hz près. L’ancien modèle n’était donc pas biaisé à cet égard.

II.7.2 Interférences quantiques

La phase des composantes excitées de l’état de l’atome dépend de la fréquence du faisceau laser d’excitation : elle varie de π au passage d’une résonance (figure II.4). Dans notre expérience, la fréquence laser est scannée autour de la résonance à la transition $1S - 3S_{F=I+1/2}$, et demeure désaccordée vis-à-vis de la transition $1S - 3D$, d’environ $300 \times \Gamma_{3D}$ vers le rouge. Malgré l’ampleur de ce désaccord, la probabilité de transition à deux photons vers les niveaux $3D$ n’est pas nulle. Il y a donc un déphasage qu’il nous faut prendre en considération, dépendant de la fréquence laser, entre les amplitudes de probabilités associées aux évolutions $1S \rightarrow 3S \rightarrow 2P$ et $1S \rightarrow 3D \rightarrow 2P$. L’effet d’interférence qui en résulte est susceptible

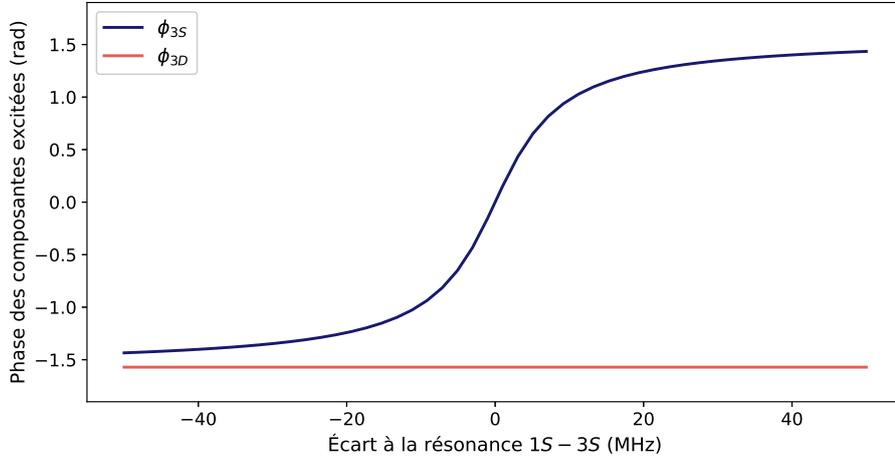


Fig. II.4 Évolution de la phase des composantes excitées ($3S_{1/2, F=3/2}$ et $3D_{3/2, F=3/2}$) de l'état de l'atome en fonction du balayage de la fréquence d'excitation (en fréquence atomique), autour de la résonance à la transition $1S - 3S_{F=3/2}$, pour le deutérium.

d'asymétriser perceptiblement la forme de raie [HORBATSCH 2010].

L'expression donnée plus haut de l'opérateur de Lindblad rend pleinement compte de cet effet [UDEM 2019]. Mais ce n'était pas le cas de nos modélisations antérieures, qui n'incluaient pas les niveaux $3D$ et décrivaient de façon simplifiée la relaxation par émission spontanée. Plus précisément, elles revenaient à utiliser, à la place des équations (II.2) et (II.4), les expressions :

$$\mathcal{L}\rho = - \sum_{a,b} \frac{\Gamma_a + \Gamma_b}{2} |b\rangle\langle b|\rho|a\rangle\langle a| \quad \text{et} \quad F = \sum_{q=\pm 1} \sum_b \sum_{\substack{a \\ n_b=2 \\ n_a=3}} \Gamma_{a \rightarrow b}^q \rho_{aa}$$

Le biais induit était alors estimé par comparaison avec un calcul de forme de raie effectué selon le formalisme de Kramers–Heisenberg, en champ nul [FLEURBAEY 2017b]. Le calcul présenté dans ce chapitre permet maintenant d'évaluer l'influence, sur ce biais, de la présence d'un champ magnétique et du voisinage du croisement de niveaux susmentionné.

Ainsi, si l'on ajuste par une fonction lorentzienne la forme de raie obtenue avec et sans l'inclusion de l'effet d'interférence, on obtient un écart entre fréquences centrales de $-0,87$ kHz, en fréquence atomique, pour la somme des polarisations σ_{\pm} (soit $\Theta = 0$, avec la notation de la section II.4). Pour les valeurs de Θ correspondant au demi-angle du cône de lumière qui entre dans les optiques de détection de la fluorescence des atomes (voir section IV.5), cet écart n'est plus que de $-0,62$ kHz avec $\Theta = 37^\circ$, et $-0,53$ kHz avec $\Theta = 45^\circ$. Et cela, à dix hertz près, pour le protium comme pour le deutérium, et pour toute valeur de champ magnétique entre 0 et 20 mT. Ces résultats corroborent donc les corrections appliquées dans la référence [FLEURBAEY 2018], y compris pour les valeurs de champ magnétique proches du croisement de niveaux.

II.7.3 Temps d'interaction fini

L'équation de Bloch optique était précédemment résolue en régime stationnaire [HAGEL 2001, § 4.3], ce qui ne permettait pas de prendre en compte l'influence du temps d'interaction de l'atome avec le faisceau laser d'excitation. Or, en raison de la vitesse élevée de l'atome d'hydrogène à température ambiante et de la petite section du faisceau laser dans notre expérience, ce temps d'interaction est susceptible d'être assez bref pour induire un élargissement des formes de raie observées.

La figure II.5 illustre le résultat de cet élargissement pour différentes durées d'interaction, c'est-à-dire pour différentes valeurs de t dans le calcul de $\rho(t)$. Ce calcul correspond, dans le domaine temporel, à l'application d'une porte de durée finie $T = t$, vis-à-vis d'une interaction éternelle de l'atome avec les divers champs considérés. Dans le domaine fréquentiel, la forme de raie se trouve donc convoluée par la transformée de Fourier de cette porte, dont l'expression est proportionnelle à $\text{sinc}^2(\pi \Delta f T/2)$, avec Δf l'écart à la résonance en fréquence atomique. La figure II.6 présente l'évolution du paramètre T correspondante.

En pratique, nous le verrons au chapitre suivant, l'intensité du faisceau laser d'excitation suit un profil gaussien, et la forme de raie découlant de la traversée du faisceau par un atome doit donc plutôt être convoluée par une gaussienne [DEMTRODER 1981, § 3.4; BIRABEN 1979b]. Nous remarquerons que la différence n'est toutefois pas conséquente, dans les cas spécifiques où l'élargissement par temps de transit doit être pris en compte.

Comme le montre la figure II.6, cet élargissement par temps de transit n'est notable que pour des temps d'interaction typiquement inférieurs à $1 \mu\text{s}$. Cette temporalité ne dépend pas de l'intensité du faisceau d'excitation. Au-delà, à une échelle de temps de l'ordre de la microseconde, la forme de raie n'est pas élargie, et p_{fluo} peut être considérée comme constante.

À plus long terme encore, commence le régime des oscillations de Rabi; en parallèle, l'ionisation des atomes par absorption d'un photon supplémentaire devient probable, faisant chuter la valeur de p_{fluo} . Dans le cas de la transition $1S - 3S$, et pour $I_L = 10^8 \text{ W/m}^2$, la période des oscillations de Rabi vaut $T_{Rabi} = h/2\langle 3S|Q|1S \rangle = 0,5 \text{ ms}$. Le taux d'ionisation, $\beta_{1S-3S}^{ion.} = 2,022 \times 10^{-5} \text{ Hz/(W/m}^2)$ [HAAS 2006], correspond lui à un temps caractéristique $\tau_{ion.} = 1/2\pi\beta_{1S-3S}^{ion.}I_L = 80 \mu\text{s}$, du même ordre que $T_{Rabi}/2\pi$. On peut donc considérer que p_{fluo} n'est constant qu'en deçà de quelques dizaines de microsecondes.

Or il se trouve précisément que le temps d'interaction des atomes d'hydrogène dans notre expérience est typiquement de l'ordre de la microseconde (section III.6) : l'ancien modèle n'introduisait donc pas de biais perceptible en supposant constante la probabilité de fluorescence par unité de temps.

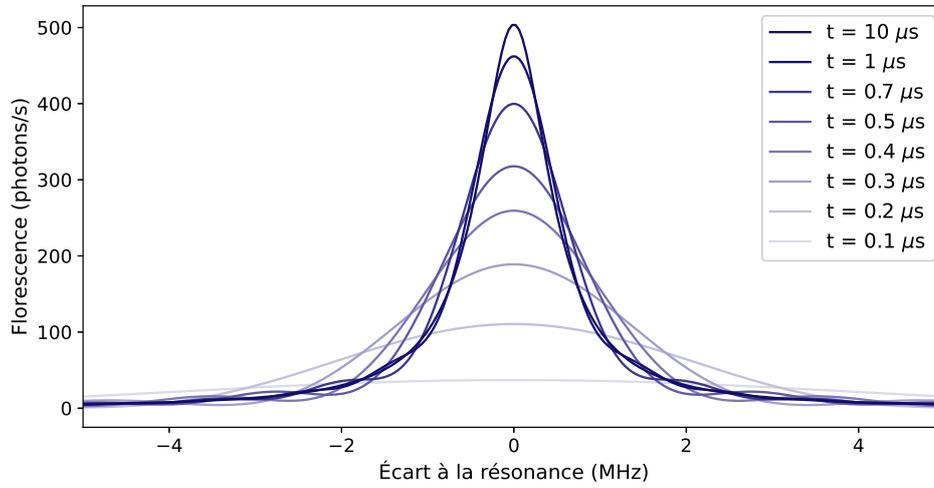


Fig. II.5 Formes de raie du deutérium obtenues pour différentes durées d'interaction avec le faisceau laser d'excitation. Les autres valeurs des paramètres utilisées sont les mêmes que celles de la figure II.3.

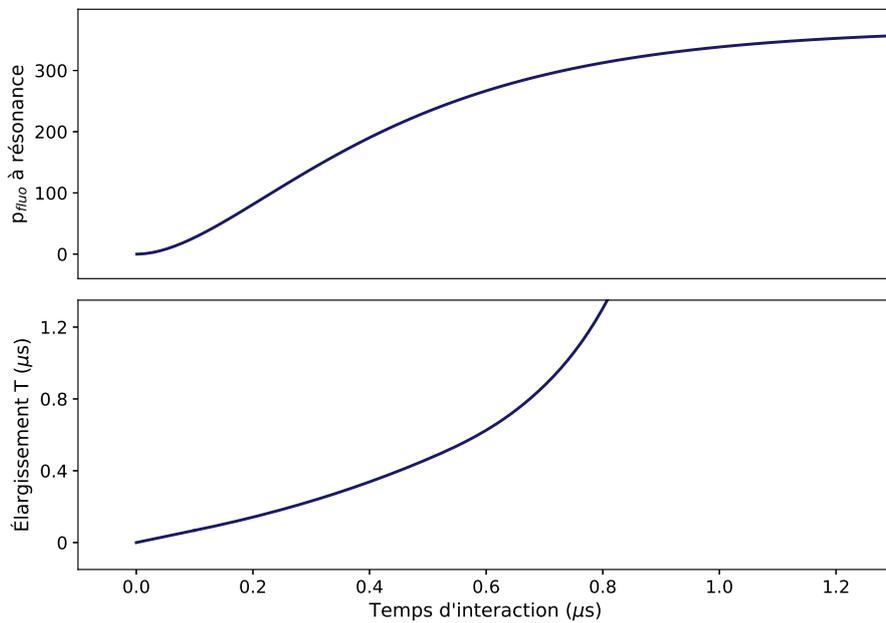


Fig. II.6 Évolution de la probabilité maximale de fluorescence depuis l'état $3S$, et de l'élargissement de la forme de raie correspondante, en fonction de la durée t d'intégration des équations de Bloch optiques. Le paramètre d'élargissement T est ici obtenu en ajustant les courbes représentées figure II.5 par un profil lorentzien de largeur constante convolué avec un profil en sinc^2 ($\pi \Delta f T/2$), où Δf est l'écart à la résonance en fréquence atomique.

Chapitre III

L'atome d'hydrogène au sein d'un gaz

Dans ce chapitre, nous ne traiterons plus de l'atome d'hydrogène seul, mais en tant que constituant d'un gaz, d'hydrogène et de dihydrogène mêlés. Dans ce gaz se produisent des collisions, entre constituants ou avec les parois de l'enceinte qui le contient ; ces collisions déterminent la distribution statistique des vitesses atomiques. Or, en raison de l'effet Doppler du second ordre, la fréquence apparente de la transition $1S - 3S$ d'un atome dépend de sa vitesse, et de façon non négligeable : de l'ordre de 100 kHz pour le protium et de 50 kHz pour le deutérium, il s'agit du principal effet systématique affectant nos mesures. Il est donc crucial pour nous de modéliser avec suffisamment de précision la distribution des vitesses atomiques, pour ensuite pouvoir estimer et corriger cet effet. Après avoir décrit cela, nous examinerons différents autres effets systématiques dépendant de la vitesse des atomes.

III.1 Distribution effusive des vitesses atomiques

III.1.1 Gaz parfait à l'équilibre thermodynamique

Considérons, pour commencer, un gaz d'atomes d'hydrogène de faible densité n , à l'équilibre thermodynamique à une température absolue T de l'ordre de la température ambiante. Ce gaz pouvant être considéré comme parfait, sa pression P vérifie :

$$P = nkT$$

Nous nous placerons désormais dans le référentiel du laboratoire. À température ambiante, le caractère bosonique ou fermionique du protium ou du deutérium est négligeable : la distribution de l'énergie E_{tot} des atomes suit donc la statistique de Maxwell-Boltzmann, et varie comme $e^{-E_{tot}/kT}$. Cette énergie, pour un atome de vitesse \mathbf{v} , est la somme de son énergie interne et de son énergie cinétique $E_c = m_H v^2/2$, où m_H est la masse de l'atome et où $v = |\mathbf{v}|$. La proportion au sein du gaz des atomes dont la vitesse \mathbf{v} est comprise dans un volume $d^3\mathbf{v}$ de l'espace des vitesses vaut ainsi :

$$f_{\mathcal{M}}(\mathbf{v}) d^3\mathbf{v} = K_{\mathcal{M}} e^{-v^2/v_p^2} d^3\mathbf{v} \quad \text{avec} \quad v_p = \sqrt{\frac{2kT}{m_H}}$$

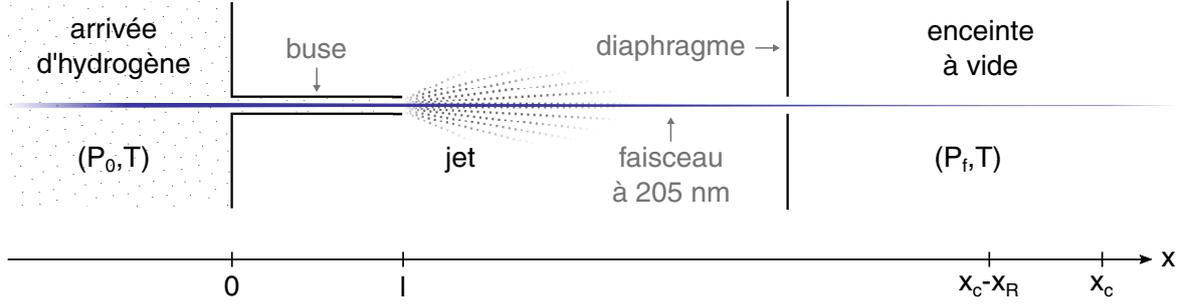


Fig. III.1 Schéma du jet atomique. Longueur de la buse : $l = 30$ mm. Distance de la sortie de la buse au diaphragme : 67 mm. Diamètre intérieur de la buse (et du diaphragme également) : $2a = 3$ mm. Distance de l'entrée de la buse au col du faisceau laser : $x_c = 122$ mm. Longueur de Rayleigh associée à la focalisation du faisceau : $x_R = 20$ mm. C'est au col du faisceau que la fluorescence des atomes est détectée.

La constante de normalisation, telle que $\int f_{\mathcal{M}}(\mathbf{v}) d^3\mathbf{v} = 1$, vaut $K_{\mathcal{M}} = (\sqrt{\pi}v_p)^{-3}$. Cette distribution maxwellienne est vérifiée même aux faibles pressions auxquelles nous travaillons [JITSCHIN 1991].

En coordonnées sphériques, on peut écrire $d^3\mathbf{v} = r^2 dr \sin\theta d\theta d\phi$, et intégrer $f_{\mathcal{M}}(\mathbf{v})$ sur la colatitude θ et la longitude ϕ , pour obtenir la distribution statistique de la norme des vitesses, que nous écrirons :

$$f_{\mathcal{M}}(v) = 4\pi K_{\mathcal{M}} v^2 e^{-v^2/v_p^2}$$

L'allure de cette distribution est présentée figure III.2 ; v_p est sa valeur la plus probable.

III.1.2 Jet effusif

Dans notre expérience, les atomes d'hydrogène sont dirigés vers la zone où leur fluorescence est détectée sous la forme d'un jet (figure III.1). Celui-ci est produit grâce à une ouverture circulaire, de rayon a , se trouvant sur le flanc d'une enceinte alimentée en hydrogène atomique à une pression P_0 – et donc à une densité $n_0 = P_0/kT$. Le jet est ensuite conduit grâce à une buse de même rayon dans une enceinte à vide, pompée à une pression $P_f \ll P_0$.

À l'entrée de la buse (en $x = 0$), le nombre d'atomes par unité de volume, dont la vitesse \mathbf{v} est comprise dans un volume $d^3\mathbf{v}$ de l'espace des vitesses, vaut $n_0 f_{\mathcal{M}}(\mathbf{v}) d^3\mathbf{v}$. Le volume occupé par ceux de ces atomes qui s'appêtent à franchir l'ouverture durant un temps dt est $\pi a^2 \mathbf{v} \cdot \mathbf{e}_x dt$. Nous appellerons désormais θ l'angle formé par une direction de propagation donnée des atomes avec l'axe Ox du jet. Dans un angle solide $d\Omega = 2\pi \sin\theta d\theta$ autour de la direction θ , le nombre d'atomes franchissant l'ouverture de la buse, avec une vitesse dont la norme est comprise entre v et $v + dv$, vaut donc [KNUDSEN 1909] :

$$dQ_{v\theta} = n_0 \pi a^2 v \cos\theta K_{\mathcal{M}} v^2 e^{-v^2/v_p^2} dv d\Omega \quad (\text{III.1})$$

On remarque une surreprésentation des atomes de vitesse élevée parmi ceux qui traversent l'ouverture, par rapport au gaz de l'enceinte amont. La distribution des vitesses au sein du jet effusif n'est ainsi plus maxwellienne, mais vaut [RAMSEY 1956, §II.3 ; figure III.2] :

$$f_{eff}(v) = K_{eff} v^3 e^{-v^2/v_p^2} \quad \text{avec} \quad \int f_{eff}(v) dv = 1$$

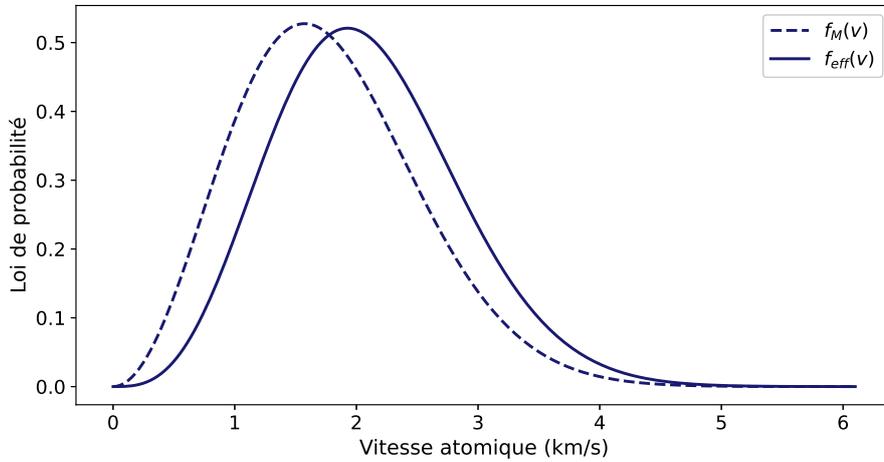


Fig. III.2 *Distribution des vitesses maxwellienne et effusive, pour l'atome de deutérium, à température ambiante.*

La vitesse moyenne correspondante est de $\langle v_{eff} \rangle = \int v f_{eff}(v) dv = 3\pi v_p/4 = 3,0$ km/s dans le cas du protium et 2,1 km/s dans le cas du deutérium, à température ambiante. Toutes vitesses confondues, le nombre des atomes pénétrant dans la buse par unité de temps vaut :

$$\mathcal{Q} = \int_{v=0}^{\infty} \int_{\theta=0}^{\pi/2} d\mathcal{Q}_{v\theta} = \frac{\pi a^2 v_p}{2\sqrt{\pi}} n_0$$

III.1.3 Évolution de la densité atomique

Le long de la buse, les atomes sont susceptibles de se heurter aux parois du conduit, ce qui se traduit par une diminution du débit du jet. On peut en tenir compte au travers d'un facteur correctif $\kappa^{-1} = 8a/3l$, où l est la longueur du conduit [CLAUSING 1931]. En tenant également compte de la pression en sortie de la buse, et en définissant par $C = \pi a^2 v_p/2\sqrt{\pi}$ la conductance de l'entrée de la buse, le débit \mathcal{Q} se réécrit alors comme :

$$\mathcal{Q} = \kappa^{-1} C (n_0 - n_f)$$

Nous ne mesurons pas, dans notre expérience, la valeur de la pression P_0 d'arrivée des atomes d'hydrogène à l'entrée de la buse. On peut en revanche déterminer la pression résiduelle dans l'enceinte à vide (voir section IV.2) : $P_f \approx 5 \times 10^{-3}$ Pa. On peut également estimer, mais de façon seulement très approximative, un ordre de grandeur du débit d'arrivée des atomes : $\mathcal{Q} \approx 10^{16}$ atomes/s. Notre système étant à l'équilibre, le débit est conservé, et l'on peut donc calculer un ordre de grandeur de P_0 et n_0 pour $T \approx 300$ K :

$$P_0 = P_f + \frac{\mathcal{Q}kT}{\kappa^{-1}C} \approx 0,1 \text{ Pa} \quad \text{et} \quad n_0 \approx 25 \text{ atomes}/\mu\text{m}^3$$

Le libre parcours moyen d'un atome, c'est-à-dire la distance moyenne parcourue entre deux collisions successives avec d'autres atomes du gaz, peut être calculé à partir de la densité

n et de la section efficace de collision σ de l'atome [BLOCH 1921, § 14]. Cette dernière peut être grossièrement estimée, dans le cas de l'hydrogène, à $\sigma \approx \pi a_0^2$, où a_0 est le rayon de Bohr. Au niveau de l'arrivée des atomes, le libre parcours moyen, toutes vitesses confondues, vaut donc :

$$\lambda = \frac{1}{\sqrt{2}n_0\sigma} \approx 3 \text{ m}$$

Cette valeur est bien supérieure aux dimensions de la buse, ce qui justifie a posteriori que l'on ait négligé dans un premier temps les collisions entre atomes comparées à celles contre les parois – autrement dit, que le jet ait été considéré comme effusif.

Tout le long de la buse, les collisions contre les parois rethermalisent une partie des atomes du jet, rendant à nouveau leurs vitesses isotropes et distribuées selon $f_{\mathcal{M}}$. La probabilité d'échappement de ces atomes par la sortie de la buse augmente cependant à mesure qu'ils sont proches de l'enceinte à vide. On pourra donc supposer une décroissance linéaire de la densité du gaz dont la distribution des vitesses est maxwellienne :

$$n(x) = \begin{cases} n_0 & \text{pour } x < 0 \\ (n_f - n_0)x/l + n_0 & \text{pour } 0 < x \leq l \\ n_f & \text{pour } l < x \end{cases}$$

On peut enfin estimer la densité du jet, c'est-à-dire des atomes dirigés selon l'axe Ox de la buse, et dont la distribution de la norme des vitesses est f_{eff} . D'après (III.1), le nombre d'atomes émis par unité de temps dans un angle solide $d\Omega$ autour de la direction θ , toutes vitesses confondues, vaut $\mathcal{Q} \cos \theta d\Omega/\pi$. À une distance x de l'entrée de la buse et sur son axe, le nombre d'atomes traversant une surface S normale au jet durant un temps dt vaut donc $(\mathcal{Q}/\pi)(S/x^2)dt$. Ces atomes occupent un volume $S\langle v_{eff} \rangle dt$, la densité d'atomes le long du jet vaut donc :

$$n_{eff}(x) = \frac{\mathcal{Q}}{\pi \langle v_{eff} \rangle x^2} = \frac{2}{3\pi} \frac{a^2}{x^2} n_0$$

III.2 Déplétion des basses vitesses

La distribution f_{eff} ne décrit cependant pas de façon entièrement satisfaisante la vitesse des atomes observée expérimentalement dans les jets atomiques. En effet, si les collisions entre atomes au sein du jet sont rares, elles ne sont pas entièrement négligeables : affectant davantage les atomes les plus lents, elles ont pour effet de diminuer le poids statistique de ceux-ci dans la distribution des vitesses [RAMSEY 1956, § II.4].

III.2.1 Probabilité de collision à vitesse donnée

Considérons un atome de vitesse $\mathbf{v} = v\mathbf{e}_x$, situé en x le long de l'axe de la buse. Il est donc plongé dans un gaz de densité $n(x)$ dont la distribution des vitesses est maxwellienne. On rappelle que l'on note σ sa section efficace de collision¹. La probabilité pour que l'atome

1. En toute rigueur, cette section efficace dépend de la vitesse de l'atome considéré [RAMSEY 1956, § II.4.3 ; FLUENDY 1967]. Pour une collision faisant intervenir un potentiel de Van der Waals, σ varie approximativement comme $v^{-2/5}$ [LANDAU 1958, § 126]. Cette dépendance joue cependant ici un rôle négligeable.

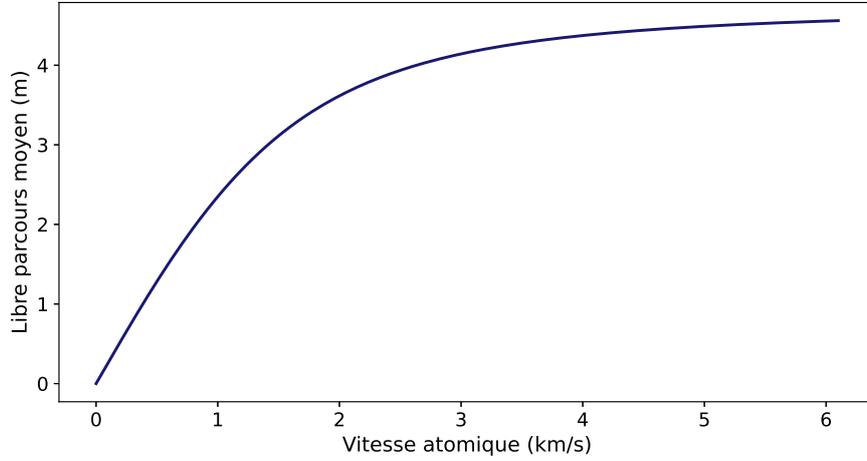


Fig. III.3 Libre parcours moyen d'un atome d'hydrogène selon sa vitesse, sous une pression $P_0 = 0,1 \text{ Pa}$, à température ambiante.

intercepte durant un temps infinitésimal dt une particule du gaz, dont la vitesse \mathbf{v}' est comprise dans un volume $d^3\mathbf{v}'$, vaut alors [KENNARD 1938, § 61] :

$$dp_{col.}(x, \mathbf{v}, \mathbf{v}') = n(x) \sigma |\mathbf{v} - \mathbf{v}'| dt f_{\mathcal{M}}(\mathbf{v}') d^3\mathbf{v}'$$

Plus précisément, si l'on nomme θ l'angle que forment \mathbf{v} et \mathbf{v}' , et si l'on rappelle que l'atome parcourt durant dt une distance $dx = v dt$:

$$dp_{col.}(x, \mathbf{v}, \mathbf{v}') = n(x) \sigma \sqrt{v^2 + v'^2 - 2vv' \cos \theta} \frac{dx}{v} K_{\mathcal{M}} v'^2 e^{-v'^2/v_p^2} dv' \frac{\sin \theta d\theta}{2}$$

En intégrant $dp_{col.}$ par rapport à \mathbf{v}' , on peut ainsi définir la probabilité, par unité de longueur, pour que l'atome de vitesse \mathbf{v} subisse une collision :

$$p_{col.}(x, \mathbf{v}) = \int_{\theta=0}^{\pi} \int_{v'=0}^{\infty} dp_{col.} = \sqrt{2} \sigma n(x) \psi(v/v_p)$$

$$\text{avec } \psi(u) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \left(\frac{e^{-u^2}}{u} + \left(2 + \frac{1}{u^2} \right) \int_0^u e^{-\tau^2} d\tau \right)$$

Cette probabilité par unité de longueur est l'inverse du libre parcours moyen de l'atome. La figure III.3 présente la dépendance de ce libre parcours moyen en fonction de v . On remarque qu'elle est linéaire pour les faibles vitesses, et qu'elle est supérieure aux dimensions de la buse pour l'essentiel des vitesses représentées au sein de la distribution f_{eff} (figure III.2).

2. L'intégrale de droite se calcule sous python via la fonction d'erreur $\text{erf}(u) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^u e^{-\tau^2} d\tau$.

III.2.2 Probabilité de traversée sans collision

À la traversée d'une distance dx , un atome de vitesse v a une probabilité $1 - p_{col.} dx$ de ne pas subir de collision. Entre un point x_1 et un point x_2 de l'axe du jet, sa probabilité totale de traversée sans collisions est donc :

$$P_{sans\ col.}(x_1, x_2, v) = e^{-\int_{x_1}^{x_2} p_{col.}(x, v) dx}$$

L'allure de $P_{sans\ col.}$ est représentée figure III.4. Elle dépend sensiblement de la valeur de n_0 , que l'on connaît mal. On peut cependant estimer, pour des valeurs plausibles de n_0 , que seules les vitesses typiquement inférieures à 100 m/s sont concernées par la déplétion associée à $P_{sans\ col.}$. Elles ne représentent que 0,0001 % de l'ensemble de la distribution f_{eff} , on s'attend donc à ce que l'effet de la déplétion soit faible.

Si l'on considère que les atomes subissant une collision sont diffusés en dehors de l'axe du jet, et qu'ils ne contribuent donc plus au signal de fluorescence finalement détecté, on peut alors corriger la distribution f_{eff} des vitesses en la multipliant simplement par $P_{sans\ col.}$.

On peut aussi remarquer qu'aux faibles vitesses concernées, on a : $p_{col.} \propto 1/v$ (autrement dit, le libre parcours moyen est linéaire en v). On pourra ainsi approcher globalement l'expression de $P_{sans\ col.}$ par $e^{-v_0/v}$, où v_0 est une constante ajustable³. En utilisant cette approximation, on obtient alors la distribution des vitesses corrigée suivante :

$$f_{corr.}(v) = K_{corr.} v^3 e^{-v^2/v_p^2 - v_0/v} \quad \text{avec} \quad \int f_{corr.}(v) dv = 1 \quad (\text{III.2})$$

III.2.3 Repopulation collisionnelle des classes de vitesse

Le calcul précédent ne prend pas en compte la possibilité, pour les atomes ayant subi une collision, de se retrouver à nouveau dans l'axe du jet à la suite de collisions ultérieures, et donc de contribuer encore à la distribution des vitesses qui nous intéresse. Nous allons à présent reprendre une modélisation de cet effet [OLANDER 1970], considérant que l'équilibre atteint par le système implique que le nombre d'atomes issus de collisions dans un volume donné à l'intérieur de la buse, et possédant une vitesse donnée, est équivalent au nombre d'atomes de même vitesse entrant en collision dans ce même volume [GIORDMAINE 1960].

La probabilité pour qu'un atome présent dans la buse soit réémis avec une vitesse v à la suite d'une collision, et le soit entre x et $x + dx$, est donc égale à la probabilité $p_{col.}(x, v) dx$ pour un atome de vitesse v de subir une collision, multipliée par la probabilité $n(x)/n(0)$ qu'a cet atome équivalent de se trouver en x . La probabilité totale, pour un atome entré dans la buse en x_1 avec une vitesse $v e_x$, d'en ressortir en x_2 avec la même vitesse après avoir connu une ou plusieurs collisions vaut donc :

$$P_{repop.}(x_1, x_2, v) = \int_{x_1}^{x_2} \frac{n(x)}{n(x_1)} p_{col.}(x, v) P_{sans\ col.}(x, l, v) dx$$

La distribution des vitesses qui tient compte de cet effet de repopulation collisionnelle, sur la longueur de la buse, s'écrit : $f'_{corr.}(v) = (P_{sans\ col.}(0, l, v) + P_{repop.}(0, l, v)) f_{eff}(v)$. La

3. Notons que, pour une intégration de $P_{sans\ col.}$ le long de la buse, on observe la relation de proportionnalité suivante : $v_0/P_0 = 70$ m/s/Pa pour le protium, et 50 m/s/Pa pour le deutérium. Pour une intégration jusqu'en $x = x_c$, $v_0/P_0 = 90$ m/s/Pa pour le protium, et 70 m/s/Pa pour le deutérium.

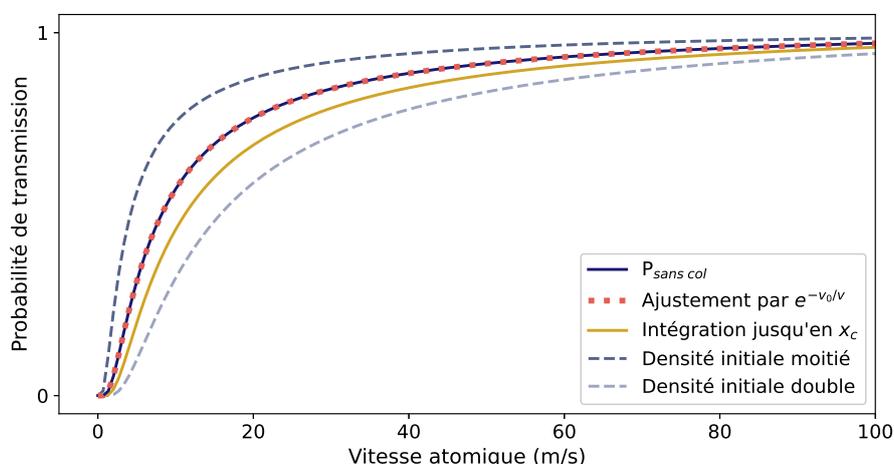


Fig. III.4 Facteur d'atténuation des basses vitesses pour une traversée sans collisions, à température ambiante. En bleu, intégration de $P_{sans\ col}$ sur la longueur l de la buse ; en jaune, intégration sur la longueur x_c entre l'entrée de la buse et le col du faisceau laser d'excitation. En traits continus, pour une pression initiale de deutérium $P_0 = 0,1\text{ Pa}$ à l'entrée de la buse ; en tirets, pour différents écarts à cette valeur. Toutes ces courbes peuvent être assez convenablement approchées par une fonction $v \mapsto a e^{-v_0/v}$, où a et v_0 sont des paramètres ajustables.

figure III.5 en montre les composantes. On remarque (figure III.6) que le facteur d'atténuation $P_{sans\ col} + P_{repop}$ peut toujours être approché par une expression de la forme $e^{-v_0/v}$.

Comme précédemment, on peut caractériser un lien de proportionnalité entre v_0 et P_0 : dans le cas d'une intégration de $P_{sans\ col} + P_{repop}$ sur la longueur l de la buse, $v_0/P_0 = 20\text{ m/s/Pa}$ pour le protium et 15 m/s/Pa pour le deutérium.

Cette approximation en $e^{-v_0/v}$ est imparfaite aux très faibles vitesses, mais cela ne prêche pas à conséquence : les faibles vitesses concernées sont de toute façon absentes de la distribution initiale f_{eff} . On peut donc toujours utiliser l'expression III.2 pour modéliser la distribution des vitesses corrigée de l'effet de repopulation.

Par ailleurs, cette expression ne préjuge pas de la valeur de la section efficace de collision des constituants contre lesquels les atomes du jet se heurtent, ni non plus de leur masse. On peut ainsi considérer qu'elle permet de décrire aussi bien les collisions subies avec d'autres atomes d'hydrogène qu'avec des molécules de dihydrogène.

III.2.4 Influence de la recombinaison moléculaire

L'atome d'hydrogène n'est pas une espèce chimique stable : il est susceptible, en particulier, de se recombiner avec un autre atome d'hydrogène pour former une molécule de dihydrogène. Si cette recombinaison est thermodynamiquement favorable, elle ne se produit avec une probabilité notable qu'en présence d'un troisième corps, qui accroît le nombre de configurations dans lesquelles l'énergie est conservée au cours de la réaction [AMDUR 1938 ; SILVERA 1984]. Aux basses pressions auxquelles nous travaillons, la collision simultanée de

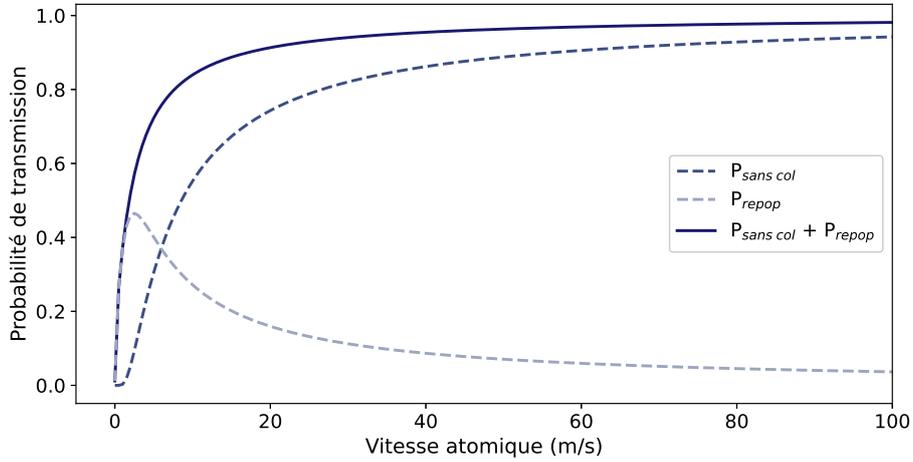


Fig. III.5 Facteur d'atténuation des basses vitesses obtenu en sommant la contribution des atomes traversant la buse sans collisions, et celle des atomes issus des collisions à l'intérieur de la buse. La pression de deutérium à l'entrée de la buse est prise à 0,1 Pa.

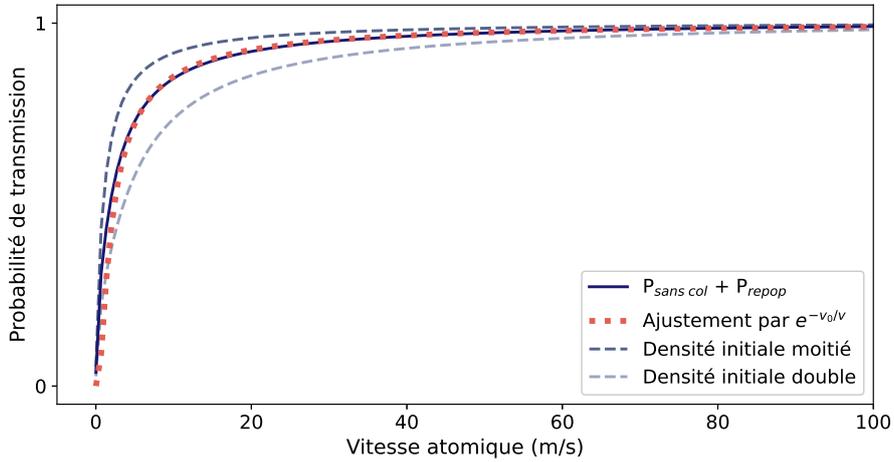


Fig. III.6 Facteur d'atténuation des basses vitesses, en tenant compte de l'effet de repopulation collisionnelle, à température ambiante. En trait continu, pour une pression initiale $P_0 = 0,1$ Pa de deutérium à l'entrée de la buse ; en tirets, pour différents écarts à cette valeur. Toutes ces courbes peuvent être assez convenablement approchées, à partir d'une certaine vitesse, par une fonction $v \mapsto a e^{-v_0/v}$, où a et v_0 sont des paramètres ajustables.

trois atomes est peu fréquente : c'est donc essentiellement lors du choc de deux atomes sur une paroi que les molécules sont formées.

Les recombinaisons sont d'autant plus probables que les atomes passent une durée prolongée au contact des parois. Cette durée dépend de la profondeur du potentiel d'adsorption du matériau qui les constitue, mais également de la vitesse des atomes qui s'y heurtent et momentanément s'y adsorbent. On peut ainsi prévoir une plus forte probabilité d'adsorption, et donc de recombinaison, pour les atomes dont l'énergie cinétique est inférieure à la profondeur du potentiel d'adsorption.

Cela conduit à diminuer encore la proportion des faibles valeurs dans la distribution des vitesses à l'intérieur de la buse – ou, de manière relativement équivalente, à augmenter la température apparente de l'arrivée du gaz d'atomes d'hydrogène. Nous pouvons ainsi choisir de modéliser ce phénomène, soit en corrigeant dans la distribution (III.2) la valeur de v_0 , soit en corrigeant la valeur de la température, c'est-à-dire de v_p . Cela ne remet donc pas a priori en cause l'utilisation de f_{corr} .

Dans notre expérience, du verre Pyrex puis du téflon sont utilisés pour conduire le gaz d'hydrogène jusqu'à l'enceinte à vide. Le taux de recombinaison, c'est-à-dire la probabilité pour qu'un atome heurtant une paroi s'y lie avec un autre, peut être évalué dans le cas du Pyrex, et à température ambiante, entre 10^{-4} et 10^{-2} [WOOD 1962; KUMAR 1979]. Concernant le téflon, des valeurs comprises entre 10^{-5} et 10^{-3} ont été mesurées [KLEPPNER 1962; WALRAVEN 1982]. Ces valeurs dépendent substantiellement de la température et de l'état de surface du matériau considéré. Elles sont cependant suffisamment basses pour que l'adsorption et la recombinaison aient un effet faible sur la distribution des vitesses des atomes du jet.

Les parois de l'enceinte à vide sont quant à elles recouvertes de graphite (peinture *Aquadag*), sur lequel on peut considérer que le taux de recombinaison est plus élevé. La profondeur du potentiel d'interaction du graphite vis-à-vis des atomes d'hydrogène peut être estimée comme étant de l'ordre de la dizaine de milliélectronvolt (c'est-à-dire, de l'ordre de la centaine de kelvin en unité de température) dans le cas d'une adsorption sous l'effet de forces de Van der Waals, autrement dit d'une physisorption [LEPETIT 2011]. La figure (figure III.7) présente la dépendance en vitesse de la probabilité d'adsorption correspondante, calculée à partir d'un modèle mécanique simple des collisions atome – surface [GRIMMELMANN 1980; KUIPERS 1988]. La distribution des vitesses du gaz résiduel dans l'enceinte à vide est donc possiblement modifiée sous l'effet des recombinaisons; nous verrons section III.7 les conséquences que cela peut avoir.

III.3 Correction de l'effet Doppler du second ordre

Notre système de détection de la fluorescence consiste, schématiquement, à compter le nombre de photons émis par les atomes qui passent devant un détecteur (le photomultiplicateur) au cours d'une seconde. La probabilité de fluorescence par unité de temps d'un atome de vitesse donnée a été obtenue au chapitre précédent (II.4) : il s'agit de p_{fluo} . On rappelle que cette probabilité prend notamment en compte l'effet Doppler du second ordre.

Le temps que les atomes de vitesse v passent devant le détecteur vaut $\Delta x_{dét.}/v$, où $\Delta x_{dét.} \approx 1$ cm est la longueur du segment se trouvant le long de l'axe du jet, centré en x_c , imagé sur le détecteur. Le signal de fluorescence théorique issu des seuls atomes de vitesse v

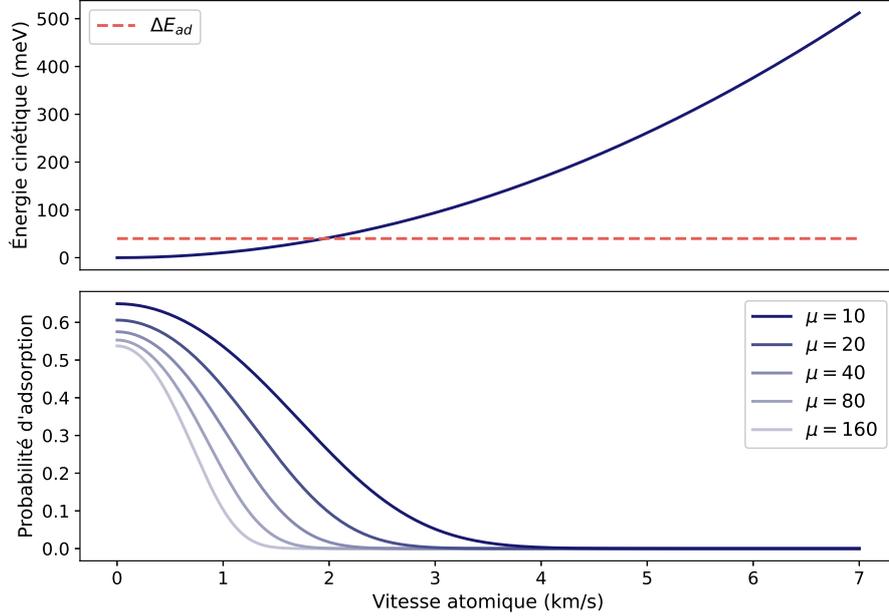


Fig. III.7 Énergie cinétique d'un atome de deutérium et probabilité d'adsorption de cet atome sur une paroi, en fonction de sa vitesse. La profondeur du potentiel d'adsorption ΔE_{ad} est ici prise à 40 meV. Sont considérées différentes valeurs du rapport μ entre la masse de la molécule qui adsorbe l'atome d'hydrogène et la masse de ce dernier. La probabilité d'adsorption est ici calculée via la formule suivante [GRIMMELMANN 1980] :

$$P_{ad}(v) = \frac{1}{2} + \frac{\text{erf}(X)}{2} - \frac{e^{-X^2}}{\sqrt{\pi}\chi} \quad \text{avec} \quad X^2 = \frac{\mu^{\frac{1}{2}} + \mu^{-\frac{1}{2}}}{2} \sqrt{\frac{\Delta E_{ad}}{kT}} - \frac{\mu^{\frac{1}{2}} + \mu^{-\frac{1}{2}}}{2} \chi \quad \text{et} \quad \chi^2 = \frac{v^2}{v_p^2} + \frac{\Delta E_{ad}}{kT}.$$

vaut donc : $F_v = p_{flu0} \Delta x_{dét.}/v$.

Le nombre des atomes de vitesse v passant devant le détecteur en une seconde vaut $f_{corr.}(v) dv$. Le signal de fluorescence théorique total vaut ainsi :

$$F(f_{1S-3S}, f_L, t, B, I_L, v_p, v_0) = \int_0^\infty f_{corr.}(v) dv F_v \quad (\text{III.3})$$

La valeur du paramètre f_{1S-3S} qui permet d'ajuster par la fonction F les spectres obtenus expérimentalement est alors directement corrigée de l'effet Doppler du second ordre, à condition que les deux paramètres v_p et v_0 dont dépend la distribution des vitesses $f_{corr.}$ soient connus. Or on ne connaît qu'approximativement la valeur du premier, si l'on considère que la température du gaz se trouve entre 15 et 20 °C : $v_p \in [1,54; 1,56]$ km/s. Et on ignore jusqu'à l'ordre de grandeur du second : selon que $P_0 = 0,1$ ou 1 Pa, v_0 peut valoir 1,5 ou 15 m/s, si l'on se fie au modèle de repopulation collisionnelle des vitesses.

Il serait aisé de déterminer la valeur de ces paramètres, s'il était envisageable d'exciter les atomes d'hydrogène de notre jet au travers de l'absorption d'un seul photon : il suffirait

d'ajuster notre forme de raie théorique pour reproduire l'élargissement Doppler du premier ordre que l'on observerait alors. Malheureusement, nous ne disposons pas de faisceaux lasers à une longueur d'onde de 121 nm ou moins, susceptible d'exciter à un photon l'atome à partir de son niveau fondamental; et le niveau métastable $2S$ n'étant pas peuplé par la désexcitation depuis le niveau $3S$, il ne peut donc pas non plus contribuer à une transition à un photon.

Il est heureusement possible d'ajuster tout de même les valeurs de v_p et v_0 sur une autre observation : la variation de la fréquence de la transition $1S - 3S_{F=I+1/2, |m_F|=F}$ en fonction de l'induction d'un champ magnétique appliqué transversalement au jet. Ce champ $B\mathbf{e}_z$ provoque en effet, dans le référentiel des atomes, un déplacement Stark motionnel de leurs niveaux d'énergie. Ce déplacement, quoique faible, peut être détecté en tirant profit d'un croisement de niveaux se produisant par effet Zeeman autour de $B \approx 18$ mT, pour les composantes $m_J = -1/2$ des niveaux $3S$ (voir figure II.2). La dépendance en vitesse de l'amplitude du déplacement qui en résulte est illustrée figure III.8 : elle est caractéristique de la distribution des vitesses des atomes.

Précisons qu'à une telle valeur de B , les transitions $1S - 3S_{F=I+1/2, |m_F|=F}$ sont isolées, en fréquence, des autres transitions hyperfines : les premières sont en effet peu affectées par l'effet Zeeman (voir figure II.1), au contraire des autres, déplacées de plusieurs centaines de mégahertz.

Cette méthode de détermination de la distribution, dite *du champ magnétique*, a été initialement développée dans notre équipe [BIRABEN 1991 ; HAGEL 2002]. Notons que l'application d'une valeur de champ bien choisie pourrait en principe permettre de compenser l'effet Doppler du second ordre, pour toutes les classes de vitesse simultanément : le déplacement Stark motionnel est lui aussi proportionnel au carré de la vitesse des atomes, et de signe opposé à celui de l'effet Doppler. Toutefois, les composantes $m_J = +1/2$ des niveaux $3S$ ne sont pas concernées par le croisement de niveaux, de sorte que cette compensation ne peut être que partielle.

L'ajustement des paramètres de $f_{corr.}$ sur la dépendance en B de F repose sur l'hypothèse qu'aucun autre effet systématique ne dépend de la distribution des vitesses des atomes. Nous allons à présent étudier certains de ces effets, pour éprouver cette hypothèse.

III.4 Dépendance en vitesse du déplacement lumineux

La probabilité d'excitation d'un atome, et le déplacement lumineux que subit sa fréquence de transition, dépendent de l'intensité du faisceau laser à l'endroit où l'excitation se produit. Or la transition de l'atome est détectée par le biais de la fluorescence qu'il émet en un point $x = x_c$ fixe, et la durée de vie moyenne de l'état excité τ_{3S} est constante : le lieu d'excitation n'est donc pas identique pour les différentes classes de vitesse.

Dans notre expérience, le faisceau laser d'excitation se propage dans une cavité Fabry-Perot (voir section V.1), selon l'axe Ox . Il est polarisé selon \mathbf{e}_z . Son champ électrique peut être décrit en termes d'optique gaussienne, selon des coordonnées cylindriques ($\tilde{x} = x - x_c, \rho, \phi$), où ρ est la distance à l'axe Ox , par [GRYNBERG 2010, §3B] :

$$\mathbf{E} = \sum_{l,m} \operatorname{Re} \left(E_{lm}(\tilde{x}, \rho, \phi) e^{i(\omega_L t - k_L \tilde{x})} \right) \mathbf{e}_z$$

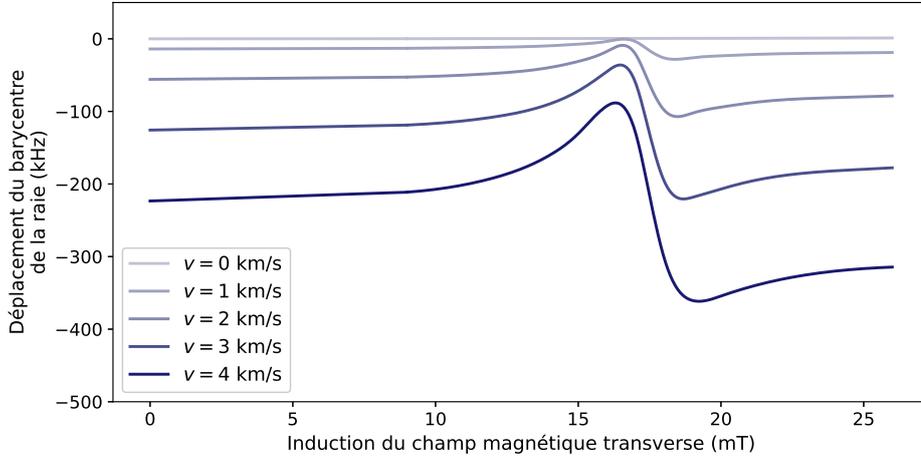


Fig. III.8 Dépendance en B de la position de la transition $1S - 3S_{F=I+1/2, |m_F|=F}$ pour différentes vitesses atomiques, dans le cas du deutérium. On observe, en champ nul, l'influence de l'effet Doppler du second ordre; et au voisinage d'un croisement de niveau à 17,79 mT, l'influence de l'effet Stark motionnel. La position de la transition est ici estimée au travers du barycentre de la forme de raie correspondante. Dans tout ce qui suit, ce barycentre est défini comme : $\int fF(f) df / \int F(f) df$.

$$\text{avec } E_{lm}(\tilde{x}, \rho, \phi) = E_0 \frac{w_0}{w(\tilde{x})} e^{ik_L \rho^2 / 2R(\tilde{x})} e^{-i(1+2l+|m|)\varphi(\tilde{x}) + im\phi} e^{-\rho^2/w(\tilde{x})^2} \mathcal{L}_l^{|m|} \left(\frac{2\rho^2}{w(\tilde{x})^2} \right), \quad (\text{III.4})$$

$$R(\tilde{x}) = \tilde{x} \left(1 + \left(\frac{x_R}{\tilde{x}} \right)^2 \right), \quad w(\tilde{x}) = w_0 \sqrt{1 + \left(\frac{\tilde{x}}{x_R} \right)^2} \quad \text{et} \quad \varphi(\tilde{x}) = \arctan \left(\frac{\tilde{x}}{x_R} \right).$$

Dans ces expressions, $x_R = k_L w_0^2 / 2$ est la longueur de Rayleigh qui caractérise la focalisation du faisceau, E_0 est son amplitude en $\tilde{x} = 0$ au col du faisceau, $\omega_L = ck_L = 2\pi f_L$, et \mathcal{L} désigne un polynôme de Laguerre associé. On considérera que l'alignement de la cavité est tel que seuls les modes $l = 0$ et $m = 0$ sont en fait présents.

L'intensité du faisceau vaut alors $I_{00} = \text{Re}(E_{00})^2$. Comme l'illustre la figure III.9, elle diminue très rapidement à mesure que l'on s'éloigne du point $(\tilde{x} = 0, \rho = 0)$. La probabilité d'excitation de la transition, proportionnelle au carré de l'intensité, décroît plus vite encore. L'intensité laser totale perçue par les atomes, indépendamment du sens de propagation du faisceau, vaut $I_L = 2I_{00}$.

Une première conséquence de la dépendance en vitesse du lieu d'excitation est que la transition $1S - 3S$ des atomes les plus rapides est moins probable, puisqu'elle se produit dans une zone de moindre intensité : cela pourrait fausser l'ajustement de la distribution des vitesses précitée, en donnant l'impression d'une déplétion des hautes vitesses. Cet effet a été modélisé dans la référence [ARNOULT 2006, § 4.2.3] : il se trouve en pratique être négligeable.

Une seconde conséquence est la variabilité du déplacement lumineux subi par les différentes classes de vitesse. Pour caractériser cela, on peut simuler une forme de raie, à vitesse atomique donnée, tenant compte du déplacement lumineux, moyennée sur la section trans-

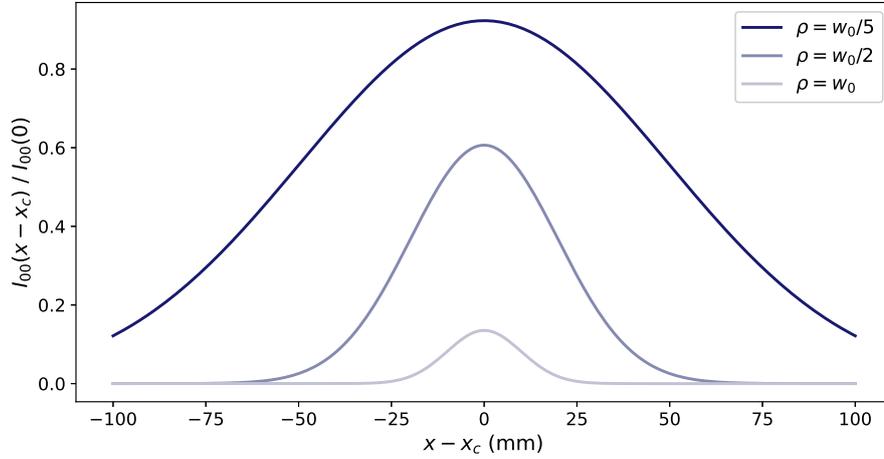


Fig. III.9 Variations de l'intensité du faisceau laser le long de l'axe Ox , normalisée à l'intensité en son col, pour différentes distances ρ à l'axe.

verse du faisceau laser :

$$F_{v,lum} \propto \int 2\pi\rho d\rho I_L^2(v, \rho) \frac{\Delta x_{dét.}}{v} \frac{\Gamma_{3S}/4\pi^2}{(f - \Delta f_{lum}(v, \rho))^2 + \left(\frac{\Gamma_{3S}}{4\pi}\right)^2}$$

Dans cette expression, $I_L(v) = 2 I_{00}(x = x_c - v\tau_{3S}, \rho)$ est l'intensité perçue par les atomes de vitesse v du jet, situés à une distance ρ de l'axe Ox , sachant qu'ils passent devant le photomultiplicateur qui détecte leur fluorescence un instant τ_{3S} plus tard. Le déplacement lumineux correspondant est $\Delta f_{lum} = \beta_{1S-3S} I_L(v, \rho)$, en unité de fréquence atomique (voir section II.3.2). La largeur naturelle de la raie, en unité de fréquence atomique, est $\Gamma_{3S}/2\pi = 1/2\pi \tau_{3S} = 1,0048$ MHz.

La figure III.10 présente la dépendance en vitesse du barycentre de cette forme de raie : d'une amplitude de l'ordre du dixième de hertz, cette dépendance se trouve donc être elle aussi négligeable. La valeur moyenne attendue du déplacement lumineux, toutes classes de vitesse confondues, peut quant à elle être estimée au travers du barycentre $\langle \Delta f_{lum} \rangle$ de $\int F_{v,lum} f_{corr.}(v) dv$. On obtient : $\langle \Delta f_{lum} \rangle / I_L = 8,1 \times 10^{-5}$ Hz/(W/m²).

III.5 Dépendance en vitesse du déplacement collisionnel

Lorsque deux atomes sont proches l'un de l'autre, leurs noyaux et leurs électrons interagissent mutuellement au travers de potentiels d'interaction coulombiens. La résultante de ces potentiels varie globalement comme $1/R^3$, où R est la distance séparant les centres de masse des atomes. En l'absence de champ extérieur, cette résultante ne couple entre eux les états stationnaires d'un atome qu'à partir du second ordre de perturbation : elle induit donc un déplacement des niveaux d'énergie proportionnel à $1/R^6$ [JENTSCHURA 2019]. Le potentiel effectif du premier ordre correspondant prend ainsi la forme d'un potentiel de Van der Waals.

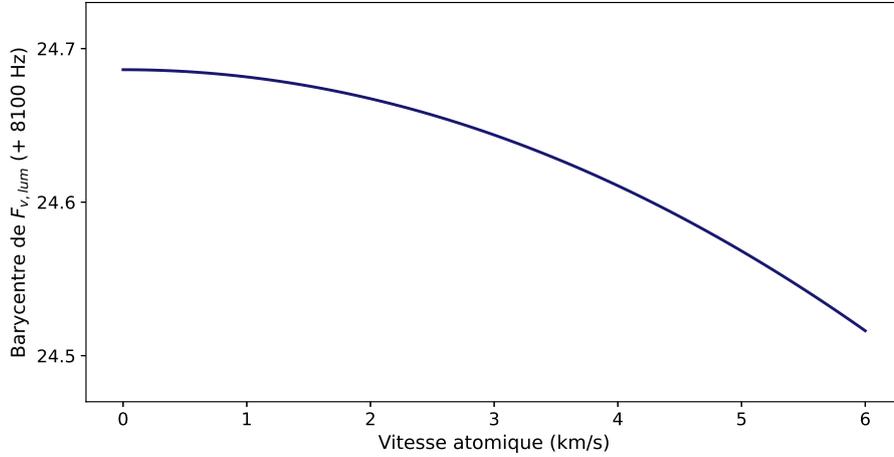


Fig. III.10 Modélisation de la dépendance en vitesse du déplacement lumineux, en unité de fréquence atomique, pour $2I_{00}(\tilde{x} = 0, \rho = 0) = 10^8 \text{ W/m}^2$. Sa valeur moyenne est de 8,1 kHz.

Lorsqu'un atome du jet traverse le gaz résiduel présent dans l'enceinte à vide, il perçoit un potentiel moyen qui dépend de la vitesse v de l'atome et de la densité $n(x)$ du gaz. On considérera ici que ce dernier est constitué d'atomes d'hydrogène dans l'état $1S$, dont la distribution des vitesses est maxwellienne. L'effet du potentiel moyen sur la fréquence de la transition $1S - 3S$ de l'atome peut alors être modélisée par un déplacement Δf_{col} , et par un élargissement $\Delta\Gamma_{col}$, qui moyennés sur les différents sous-niveaux hyperfins concernés valent [MATVEEV 2019] :

$$\Delta f_{col} = \xi_f^{(6)} n(x) v^{3/5} \quad \text{avec} \quad \xi_f^{(6)} = -6,9 \times 10^{-18} \text{ Hz m}^3 (\text{m/s})^{-3/5}$$

$$\Delta\Gamma_{col}/2\pi = \xi_\gamma^{(6)} n(x) v^{3/5} \quad \text{avec} \quad \xi_\gamma^{(6)} = 9,5 \times 10^{-18} \text{ Hz m}^3 (\text{m/s})^{-3/5}$$

L'élargissement collisionnel $\Delta\Gamma_{col}/2\pi$ est faible : il ne dépasse pas 2 kHz pour toutes les vitesses atomiques probables (on rappelle par comparaison que la largeur naturelle vaut environ 1 MHz). Ce n'est en revanche pas le cas de Δf_{col} (voir figure III.11), qui pour une densité $n(x_c) = n_f$ dépend sensiblement de v . Cette dépendance présente un risque potentiel de biaiser l'ajustement des paramètres de la distribution des vitesses. Pour caractériser cela, on peut, comme précédemment, simuler une forme de raie tenant compte du déplacement collisionnel :

$$F_{v,col} \propto \frac{\Delta x_{dét.}}{v} \frac{\Gamma/4\pi^2}{(f - \Delta f_{col}(v))^2 + (\Gamma/4\pi)^2} \quad \text{avec} \quad \Gamma = \Gamma_{3S} + \Delta\Gamma_{col}(v)$$

La valeur moyenne attendue du déplacement collisionnel, toutes classes de vitesse confondues, peut être estimée au travers du barycentre $\langle \Delta f_{col} \rangle$ de l'intégrale $\int F_{v,col} f_{corr.}(v) dv$. On obtient : $\langle \Delta f_{col} \rangle / P_f = -153 \text{ kHz/Pa}$ pour le protium, et -124 kHz/Pa pour le deutérium. Si l'on néglige la dépendance en vitesse du déplacement collisionnel – autrement dit, si l'on remplace $\Delta f_{col}(v)$ par $\langle \Delta f_{col} \rangle$ – l'erreur commise sur la position du barycentre est d'environ

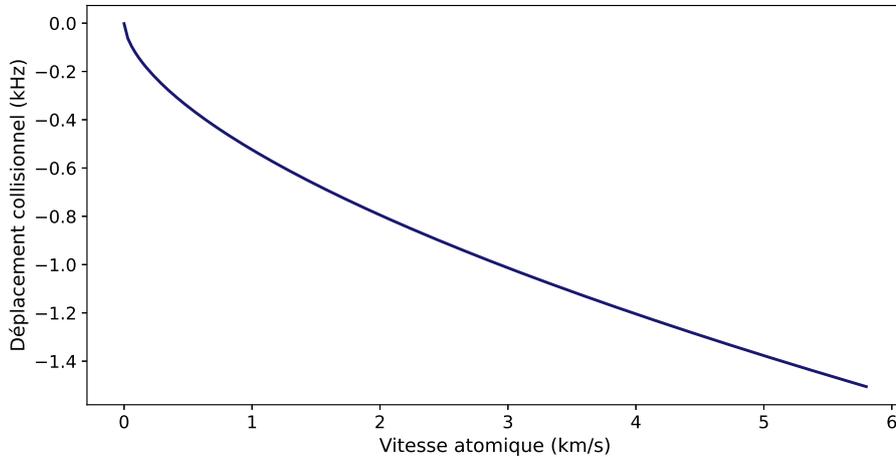


Fig. III.11 Modélisation de la dépendance en vitesse du déplacement collisionnel Δf_{col} , pour $P_f = 5 \times 10^{-3}$ Pa, à température ambiante, en unité de fréquence atomique. Sa valeur moyenne est de $-0,76$ kHz pour le protium, et de $-0,62$ kHz pour le deutérium.

0,08 kHz : elle est donc suffisamment faible pour que notre ajustement de la distribution des vitesses n'ait pas à en tenir compte.

À la lumière des connaissances théoriques actuelles, nous l'avons vu, le déplacement collisionnel est proportionnel à la densité du gaz considéré, y compris à de faibles pressions. Connaissant mal cette densité dans les conditions de notre expérience, nous pouvons ainsi envisager de déterminer empiriquement la valeur de ce déplacement, en extrapolant à pression nulle la fréquence observée de la transition qu'on mesure (voir chapitre VIII).

Nous n'avons pas pris en compte les collisions pouvant survenir, non avec le gaz résiduel, mais avec les autres atomes du jet. L'écart moyen en vitesse entre deux atomes du jet qui se rapprochent l'un de l'autre est de 0,6 km/s pour le deutérium ; à l'endroit de la zone de détection, la densité du jet vaut $n_{jet}(x_c) = 5 \times 10^{-4}$ atomes/ μm^3 : le calcul de Δf_{col} pour ces valeurs donne bien un résultat négligeable.

Nous n'avons pas non plus décrit les collisions avec les molécules de dihydrogène présentes dans l'enceinte à vide. Le calcul du potentiel d'interaction qui leur est associé est complexe, mais il est vraisemblable qu'il soit nettement moins profond que celui des atomes [JENTSCHURA 2019, §5] : leur contribution peut donc elle aussi être négligée.

III.6 Dépendance en vitesse de la probabilité de fluorescence

Le diamètre de la buse n'étant pas infiniment petit, il est possible que des atomes du jet interceptent le faisceau laser au voisinage de son col, tout en formant avec l'axe Ox un angle θ non nul. Le temps d'interaction de ces atomes avec le faisceau est alors réduit, ce qui se traduit par un élargissement de leur contribution à la forme de raie de l'ensemble du jet. Or, les atomes les plus rapides sont davantage susceptibles de connaître cet élargissement : cela peut rendre biaisée la forme de raie utilisée pour ajuster les paramètres de f_{corr} .

Ainsi que le montre la figure III.9, on peut assimiler le faisceau laser à un cylindre de

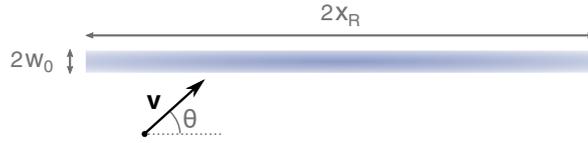


Fig. III.12 Schématisation du faisceau laser traversé par un atome de vitesse v .

diamètre $2w_0 \approx 70 \mu\text{m}$ et de longueur $2x_R \approx 40 \text{mm}$ centré sur le col du faisceau : c'est dans ce volume que se produisent l'essentiel des excitations de la transition $1S - 3S$, dont la probabilité est quadratique en intensité. Un atome de vitesse v dirigé selon l'axe du faisceau fait donc au plus l'expérience d'un temps d'interaction $\tau_{max} = 2x_R/v$. Or, pour le deutérium, 99 % des vitesses de la distribution f_{eff} sont supérieures à 0,6 km/s, soit un temps d'interaction maximal de 70 μs .

Un atome formant un angle θ à l'axe du faisceau traverse celui-ci durant un temps $2w_0/v \sin \theta$ (figure III.12). La valeur maximale de cet angle θ pour un atome issu de la buse et traversant le faisceau peut être estimée à :

$$\theta_{max} = \arctan \left(\frac{a + w_0}{x_c - x_R - l} \right) \approx 15 \text{ mrad}$$

Pour le deutérium, 99,9 % des vitesses de la distribution f_{eff} sont inférieures à 4,8 km/s, soit un temps d'interaction minimal de 1,3 μs . On peut donc raisonnablement supposer que le signal de fluorescence issu du jet atomique n'est pas élargi pas temps de transit.

Une comparaison a été entreprise, en 2018 et 2019, entre le modèle de forme de raie présenté dans ces chapitres et le modèle utilisé par l'équipe de spectroscopie de l'hydrogène de l'Institut Max Planck d'optique quantique, à Garching, en Allemagne. Ce dernier modèle, écrit par Arthur Matveev, permet de calculer par une méthode de Monte-Carlo l'évolution de l'état d'un atome tout au long de sa trajectoire au travers d'un faisceau laser gaussien, et ce pour une grande diversité de trajectoires. Il prend par ailleurs en compte la possibilité d'ionisation des atomes pour un long temps de transit.

Nous avons pu constater qu'aucune différence d'élargissement des formes de raies n'était perceptible entre les deux modèles. Les approximations que nous avons faites, négligeant pour les brefs temps de transit le caractère gaussien du faisceau, et pour les longs temps de transit l'ionisation des atomes, ne paraissent donc pas devoir être remises en cause.

III.7 Contribution des atomes du gaz résiduel

Le gaz résiduel, encore présent dans l'enceinte à vide avant d'être pompé, est composé de molécules de dihydrogène et d'atomes d'hydrogène en attente de recombinaison. Ces atomes sont susceptibles de traverser le faisceau laser à proximité de la zone de détection de la fluorescence : ils peuvent donc être excités dans l'état $3S$ et contribuer au signal mesuré. La répartition de leurs vitesses étant isotrope, ils sont particulièrement sensibles à l'élargissement par temps de transit.

Cette contribution n'était jusqu'à présent pas prise en compte dans l'analyse des résultats de notre expérience. Or, nous verrons au chapitre VIII que son amplitude n'est pas négligeable : elle est même équivalente à celle due à la fluorescence des atomes du jet. Nous allons donc ici chercher à la modéliser.

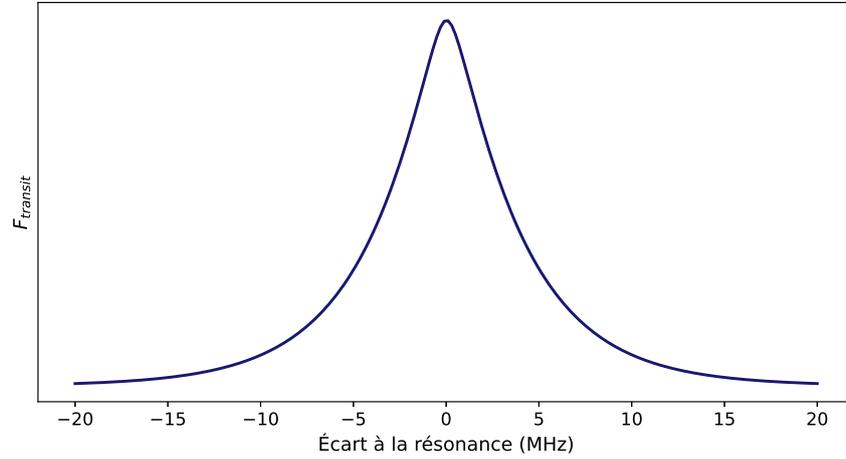


Fig. III.13 Allure de l'élargissement par temps de transit selon le modèle [BIRABEN 1979b], avec $\delta = v_p/2w_0$:

$$F_{transit}(f) = \int \frac{\Gamma_{3S}/4\pi^2}{(f' - f)^2 + (\Gamma_{3S}/4\pi)^2} e^{-|f'|/\delta} df'$$

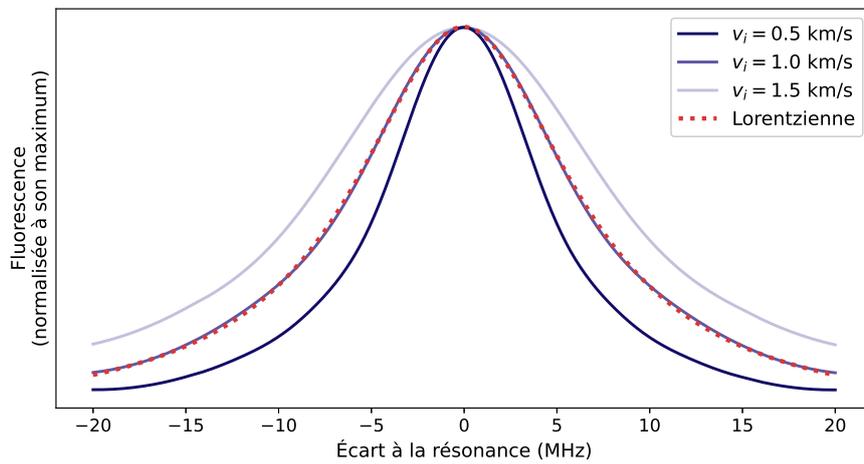


Fig. III.14 Contribution du gaz résiduel à la forme de raie détectée, pour $\theta > 40$ mrad et pour $v > v_i$, en champ nul, dans le cas du deutérium. Pour $v_i = 1$ km/s, par exemple, la lorentzienne qui permet d'ajuster cette contribution présente une largeur $\Gamma_r/2\pi = 12,5$ MHz, et est centrée en $f_{0r} = -25$ kHz.

Une première description de la contribution du gaz résiduel a été développée par François Biraben [BIRABEN 1979b]. La forme de raie correspondante est représentée figure III.13 ; on obtient un résultat équivalent si l'on intègre sur toutes les vitesses, selon une distribution maxwellienne, et sur tous les angles θ notre fonction F (III.3) pour un temps d'interaction $t = 2w_0/v \sin \theta$. Un tel modèle décrit cependant mal les observations expérimentales : la forme de raie résultante présente une allure trop « piquée », les composantes les moins élargies par temps de transit y sont sur-représentées, par rapport aux spectres effectivement mesurés, qui ont davantage l'allure d'une lorentzienne (voir chapitre VIII).

Nous pouvons formuler trois hypothèses pour expliquer, dans notre cas, ce désaccord. D'une part, la distribution des vitesses du gaz résiduel n'est vraisemblablement pas maxwellienne, en raison de la déplétion des basses vitesses provoquée par la recombinaison des atomes sur les parois recouvertes de graphite de l'enceinte à vide. D'autre part, les atomes du gaz résiduel dont les trajectoires sont colinéaires à l'axe du faisceau laser ont une plus forte probabilité de subir une collision avec les atomes issus du jet, et donc de changer de trajectoire. Enfin, les trajectoires colinéaires à l'axe du faisceau laser passent par les diaphragmes qui encadrent la zone d'excitation : les atomes qui suivent ces trajectoires s'échappent donc du gaz résiduel.

Les trajectoires des atomes du gaz résiduel qui traversent le faisceau laser et atteignent l'ouverture des diaphragmes les plus proches du faisceau forment, à l'axe Ox , un angle typiquement inférieur ou égal à 40 mrad. En intégrant la forme de raie F , pour $t = 2w_0/v \sin \theta$, sur tous les angles supérieurs à cette valeur, et sur toutes les vitesses supérieures à une vitesse minimale v_i , selon la distribution maxwellienne f_M , on obtient les courbes représentées figure III.14. Suivant les résultats présentés figure III.7, les valeurs de v_i choisies avoisinent typiquement 1 km/s. Ces courbes-là ont un profil lorentzien, et sont donc compatibles avec nos observations expérimentales.

Précisons que l'effet Doppler du second ordre dépend, pour un atome du gaz résiduel, de l'angle θ que forme sa trajectoire à l'axe Ox : le déplacement correspondant est $-v^2 \cos^2 \theta f_L/c^2$, en unité de fréquence atomique, il est donc en moyenne plus faible que pour les atomes du jet.

La figure III.15 présente une modélisation de la forme de raie complète, telle qu'observée dans notre expérience. En champ nul, il s'agit essentiellement de la somme de deux lorentziennes, l'une de largeur $\Gamma_{3S}/2\pi$ due aux atomes du jet, l'autre due aux atomes du gaz résiduel et élargie par temps de transit. Les deux ne partagent pas la même fréquence centrale, puisque l'effet Doppler du second ordre est moindre pour la seconde.

Ce décentrement est susceptible d'induire un effet systématique s'il n'est pas pris en compte durant l'ajustement des résultats expérimentaux. L'effet est négligeable, au degré de précision recherché, si la largeur de la contribution du gaz résiduel est typiquement supérieure à 15 MHz typiquement : l'écart entre l'ajustement du sommet de la forme de raie par une somme de lorentzienne, ou par une simple lorentzienne, est alors de l'ordre de la dizaine de hertz. Cet écart peut être en revanche de l'ordre du kilohertz pour une contribution du gaz résiduel plus étroite. Il nous faudra donc, lors de l'analyse de nos mesures, caractériser en détail la forme de cette contribution pour estimer le biais induit.

Dans la mesure où la contribution du gaz résiduel peut toujours être convenablement décrite par une courbe lorentzienne, cette caractérisation devra également être effectuée pour toutes les valeurs du champ magnétique que nous appliquerons : comme l'effet Doppler du second ordre, les effets Zeeman et Stark motionnel dépendent pour chaque atome de la

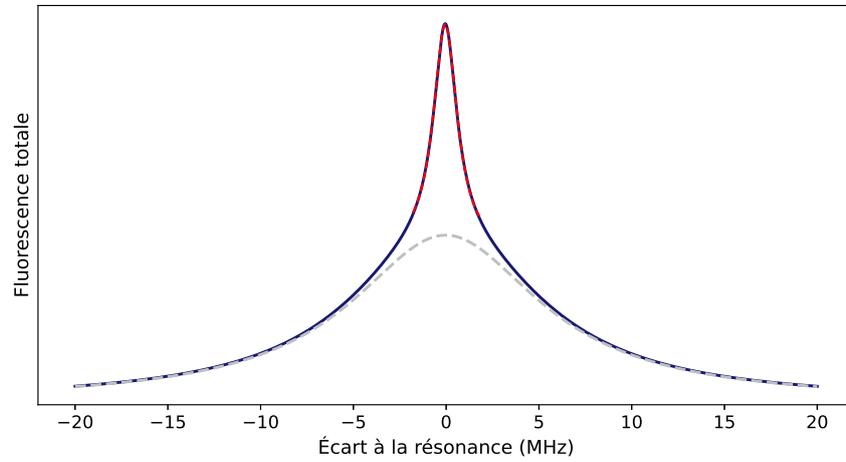


Fig. III.15 *Forme de raie théorique obtenue en sommant les contributions des atomes du jet et du gaz résiduel, et en considérant que l'aire de la seconde est cinq fois plus étendue que celle de la première. On obtient ainsi une allure proche de celle des spectres mesurés. En pointillés gris, la contribution du gaz résiduel seule, pour $\theta > 40$ mrad et $v > 1$ km/s. Cette contribution peut être ajustée de façon satisfaisante par une lorentzienne de largeur $\Gamma_r/2\pi = 12,5$ MHz et de centre $f_{0r} = -25$ kHz, décalé en raison de l'effet Doppler du second ordre. Ce même effet décale le centre lorentzien f_0 de la contribution des atomes du jet à $f_0 = -52$ kHz. Si l'on ajuste par une simple lorentzienne la forme de raie complète, mais sur une plage restreinte de $\pm 2,5$ MHz autour de la résonance (pointillés rouges), la valeur $f_0^{\pm 2,5}$ obtenue diffère de f_0 de $+1,2$ kHz.*

direction de sa trajectoire, étant en moyenne moindres que pour les atomes du jet.

Deuxième partie

Expérience

Le principe de l'expérience réalisée au LKB, et détaillée dans les trois chapitres de cette partie, est le suivant : la transition $1S - 3S$ des atomes d'un jet effusif d'hydrogène est induite par l'absorption simultanée de deux photons à 205 nm, et la fluorescence des atomes est mesurée en fonction de la fréquence du faisceau laser à 205 nm. Celui-ci, continu, est obtenu par somme de fréquences entre deux lasers à 266 et 895 nm. Les fréquences de ces lasers sont mesurées de façon absolue grâce à un peigne femtoseconde, référencé relativement aux horloges à césium réalisant la définition française de la seconde.

L'interaction atomes – laser se produit dans une cavité Fabry-Perot, de sorte que les deux photons absorbés se propagent dans des directions opposées. Nous l'avons vu, cela permet la compensation au premier ordre non relativiste de l'effet Doppler, un procédé initialement développé dans notre équipe, au cours des années 1970 [BIRABEN 2019]. L'effet Doppler du second ordre est quant à lui corrigé a posteriori, en déterminant la distribution des vitesses atomiques grâce à la méthode du champ magnétique présentée au chapitre précédent.

Les premières observations de la transition $1S - 3S$ de l'atome d'hydrogène ont été effectuées dans les années 1980 [BOKOR 1981 ; LUCHT 1983]. Dans notre laboratoire, c'est à la fin de cette même décennie qu'une première expérience a été menée [VERKERK 1989], et c'est depuis la fin des années 1990 que notre équipe s'est spécialisée dans la métrologie de sa fréquence. Établi à Jussieu, notre montage expérimental est l'héritier des précédentes mesures réalisées par l'équipe : celles des fréquences des transitions $2S - nS$ et $2S - nD$ de l'atome d'hydrogène, pour $n = 6, 8$ et 12 [DE BEAUVOIR 2000]. Il a depuis continûment été amélioré.

Ainsi, parmi les dispositifs que nous utilisons actuellement, la cavité de la source laser à 895 nm a été fabriquée au laboratoire dans les années 1980 [BIRABEN 1982], de même que les cavités Fabry-Perot de haute stabilité permettant de l'asservir, et que la décharge de dissociation du dihydrogène [GARREAU 1989]. Durant les années 1990, ont été successivement construits le système électronique d'asservissement à court terme des sources laser [NEZ 1993] ; l'enceinte à vide permettant la production d'un jet atomique dans l'état fondamental [BOURZEIX 1995] ; ainsi que le dispositif permettant de stabiliser les sources laser sur une transition du rubidium, référençant celle-ci vis-à-vis d'horloges à césium [DE BEAUVOIR 1996].

Au cours des années qui ont suivi, l'expérience s'est vue dotée de bobines de champ magnétique et de son système actuel de détection de fluorescence [HAGEL 2001] ; la mesure des fréquences laser par peigne de fréquence a été introduite [ARNOULT 2006] ; le peigne femtoseconde actuel a été installé, et une source laser continue à 205 nm montée [GALTIER 2014a] ; enfin, une source laser relais a été mise en place pour améliorer le comptage des fréquences [FLEURBAEY 2017a].

Du présent travail de thèse relève tout ce qui a été mis en œuvre sur l'expérience depuis 2017. Au-delà de la complexe maintenance de l'ensemble, ses principaux apports concernent l'étude du refroidissement du jet atomique (section IV.3), l'amélioration du rapport signal-sur-bruit des spectres enregistrés (IV.6 et V.1.3) et la stabilisation des sources laser (VI.6). Les autres modifications du dispositif expérimental réalisées au cours de ce travail, lorsqu'elles sont mentionnées dans ce qui suit, peuvent être identifiées par leur date.

Chapitre IV

Jet d'hydrogène atomique

IV.1 Dissociation du dihydrogène

Les atomes dont nous étudions la transition $1S-3S$ proviennent de bouteilles de dihydrogène comprimé. La bouteille de protium que nous utilisons depuis 2019 présente une pureté nominale supérieure à 99,9999 % (*Air Liquide Alphagaz 2*). Celle de deutérium est d'au moins 99,8 %. Le gaz est détendu à environ 600 mbar, puis injecté via une vanne à aiguille dans un tube à décharge, où un champ radiofréquence (RF) intense provoque la dissociation de la molécule (figure IV.1).

Pour produire ce champ, une onde RF de 40 W à 26 MHz est couplée à un résonateur quart-d'onde, constitué d'une tige de cuivre enroulée autour de la circulation d'hydrogène, l'une des extrémités de la tige étant connectée à un cylindre semi-fermé faisant office de gaine coaxiale autour de l'ensemble [MACALPINE 1959 ; SLEVIN 1981]. Sa fréquence de résonance peut varier légèrement selon le débit du gaz, dicté par l'ouverture de la vanne à aiguille.

Le débit de notre source d'hydrogène peut être évalué en mesurant la vitesse de pompage d'un petit volume de gaz, compris entre la bouteille de dihydrogène fermée et la vanne à aiguille. En ouvrant celle-ci à une amplitude usuelle, on observe que la pression dans ce petit volume ($V \approx 10 \text{ cm}^3$) décroît comme $P = (P_0 - P_\infty)e^{-t/\tau} + P_\infty$, avec $P_0 = 600 \text{ mbar}$, $P_\infty = 100 \text{ mbar}$ et $\tau = 200 \text{ min}$. Considérant le gaz comme parfait, à la température ambiante $T = 300 \text{ K}$, on estime que le nombre des molécules de dihydrogène qui le constitue vérifie $N_{H_2} = PV/kT$. Le débit moléculaire au travers de la vanne à aiguille, pour une pression amont de 600 mbar, vaut donc :

$$\mathcal{Q}_{H_2} = -\frac{dN_{H_2}}{dt}(t=0) = \frac{V}{kT} \frac{P_0 - P_\infty}{\tau} \approx 10^{16} \text{ molécules/s.}$$

L'efficacité de dissociation est difficile à estimer : selon les sources, pour un tube à décharge équivalent, elle peut varier entre 5 % [BOURZEIX 1995, § 5.2.b ; KUMAR 1979] et 95 % [SLEVIN 1981]. Dans notre cas, l'examen du rayonnement de la décharge au moyen d'un petit spectroscopie permet de visualiser les raies de Balmer de l'atome avec un fort contraste : l'absence d'un fond spectral moléculaire corrobore l'hypothèse d'une plutôt faible proportion du dihydrogène non dissocié. Deux atomes étant produits à partir d'une molécule, nous considérerons ainsi que le débit atomique issu de la décharge est approximativement du même ordre de grandeur que \mathcal{Q}_{H_2} .

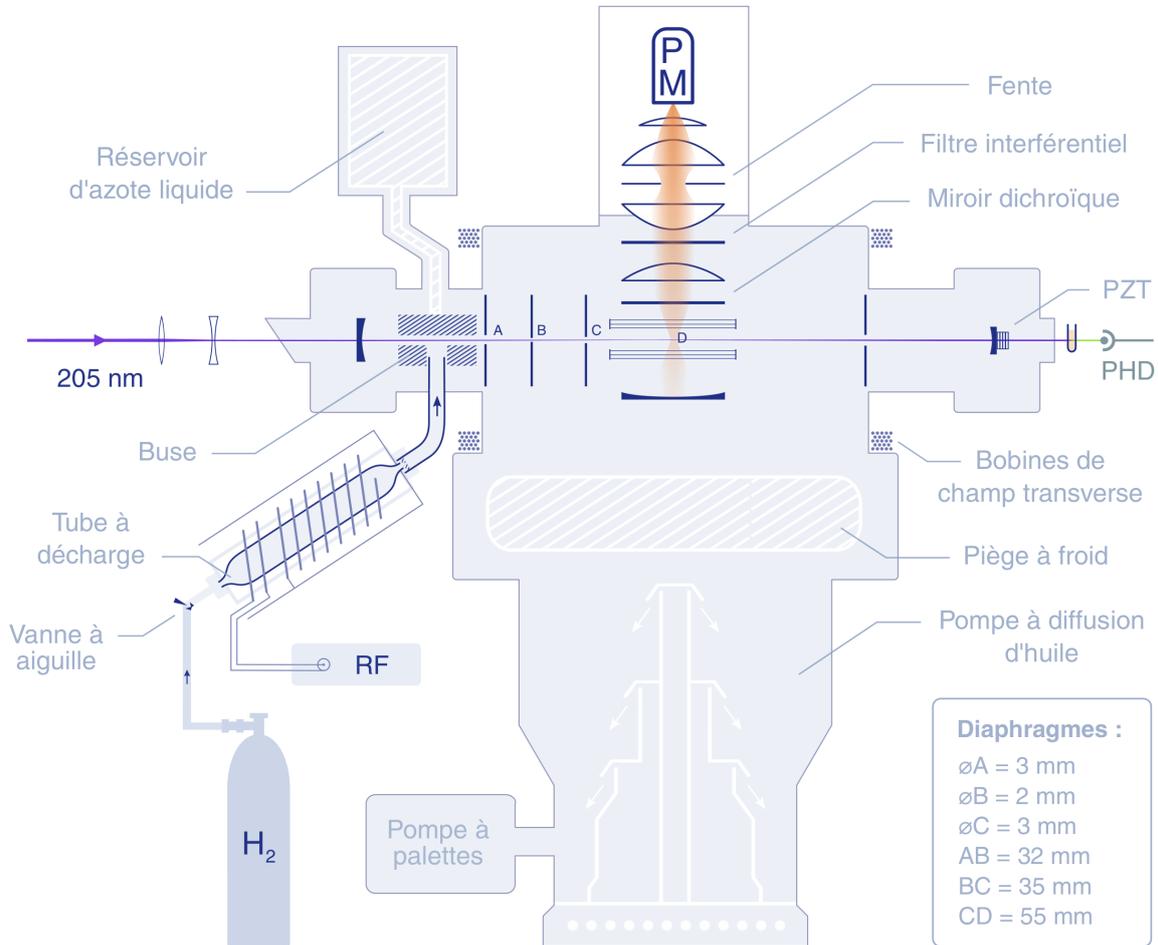


Fig. IV.1 Schéma de l'enceinte d'interaction atomes – laser.

Nous l'avons vu au chapitre précédent, les atomes d'hydrogène obtenus sont susceptibles de se recombinaison sous forme de molécules, selon un processus qui dépend de façon critique du matériau, de la température et de l'état de surface des parois au contact des atomes. Dans notre configuration, la dissociation a lieu dans un tube en Pyrex, refroidi par eau à 14 °C, et le flux atomique est ensuite conduit vers l'enceinte à vide au travers d'un court tuyau et d'une buse en téflon.

Le tube de Pyrex, façonné à l'atelier de verrerie du laboratoire, est remplacé après un ou deux ans d'utilisation. Préalablement à son montage, il est nettoyé en étant rempli d'acide fluorhydrique durant quinze minutes, avant d'être rincé à l'eau distillée, puis à l'éthanol absolu. Les pièces en téflon connaissent le même traitement à leur installation ; lors d'opérations de démontage partiel de l'expérience, elles sont nettoyées par un bain d'éthanol absolu en cuve à ultrasons.

Des traces de blanchiment apparaissent couramment, après plusieurs mois d'utilisation, sur la face interne du tube de Pyrex. Il s'agit d'un dépôt inhomogène, dont la répartition est corrélée à la position des spires du résonateur RF. Nous en avons entrepris l'analyse avec

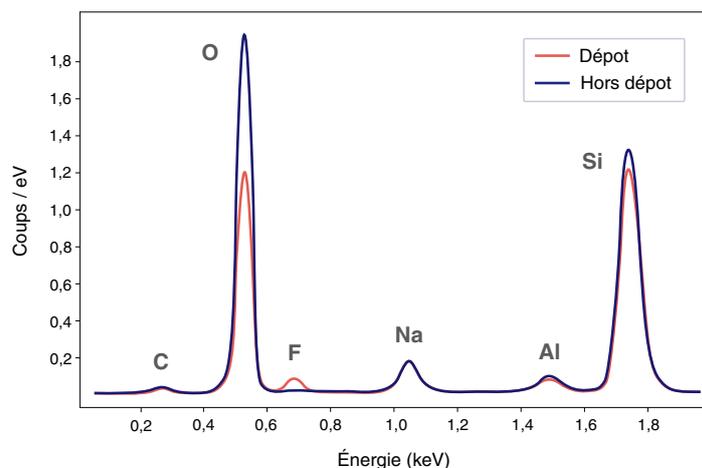


Fig. IV.2 Spectrométrie de rayons X de la surface du tube à décharge, selon qu'un dépôt blanchâtre y est présent (en rouge) ou non (en bleu).

l'aide des équipes des salles blanches de l'École Normale Supérieure et de l'Institut des Nano-Sciences de Paris. En comparant par spectrométrie de rayons X (EDX) la composition de la surface interne du tube à celle de sa surface externe, on remarque que des atomes de fluor sont systématiquement présents dans le premier cas, absents dans le second (figure IV.2).

Notre dispositif n'utilisant pas d'huile de pompe ou de graisse à vide fluorée, il semble que le fluor détecté provient du téflon (polytétrafluoroéthylène) des pièces jouxtant le tube à décharge, vraisemblablement vaporisé par le plasma d'hydrogène généré dans le tube. Ce blanchiment, observé de longue date [GARREAU 1989, §3.1.1 ; DE BEAUVOIR 2000, §3.1.1], ne traduit donc pas une pollution compromettant la pureté du flux d'hydrogène.

IV.2 Émission et pompage d'un jet atomique

Afin de maximiser le temps d'interaction entre les atomes et le faisceau laser d'excitation, le gaz d'hydrogène est dirigé colinéairement au faisceau au moyen d'une buse en forme de T (figure IV.1). Réalisée en téflon, elle présente un diamètre intérieur de 3 mm et canalise les atomes sur une longueur de 30 mm, avant de déboucher sur une enceinte maintenue sous vide secondaire grâce à une pompe à diffusion d'huile.

Le diamètre intérieur de la buse est dix fois supérieur à la largeur du faisceau laser qui la traverse. Nous détaillerons au chapitre suivant la géométrie de ce faisceau, ainsi que les caractéristiques de la cavité Fabry-Perot asservie à 205 nm qui permet sa rétropropagation – et donc l'excitation à deux photons contra-propageants. À la sortie de la buse, deux diaphragmes successifs (B et C, figure IV.1) sélectionnent les trajectoires atomique atteignant la zone de détection (D), restreignant à environ 45 mrad l'angle qu'elles sont susceptibles de former avec l'axe du faisceau.

L'utilisation d'une pompe à diffusion (modèle *Alcatel Crystal 6250*) nous permet ensuite d'évacuer l'hydrogène avec une grande vitesse de pompage, de 2,5 m³/s nominale, et sans induire de vibrations. Son principe est le suivant : une tuyère centrale émet un jet de vapeur d'huile qui entraîne les gaz à pomper vers le bas du dispositif, d'où ils sont refoulés

par une pompe à palettes. La vapeur est produite en chauffant l'huile (*Santovac 5*), grâce à une résistance chauffante située sous l'ensemble ; l'huile se condense ensuite au contact des parois du système, refroidies par une circulation d'eau, et redescend vers la résistance.

La *Santovac 5* est un polyphényl-éther caractérisé par une faible pression de vapeur saturante ($P_{sat} = 5 \times 10^{-10}$ mbar à 25°C), ce qui permet de limiter sa diffusion vers la zone de détection grâce à un piège à froid rempli d'azote liquide. En outre, une vanne tiroir permet d'isoler la pompe à diffusion du reste de l'enceinte ; elle est maintenue fermée la nuit, afin de limiter les risques de remontée d'huile.

En l'absence d'hydrogène, le vide limite atteint 2×10^{-6} mbar. Il est mesuré par une jauge à ionisation, de type Bayard-Alpert, située sur le flanc de la zone de détection. Celle-ci n'était pas calibrée vis-à-vis de l'hydrogène, son indication doit être considérée avec précaution. On peut toutefois noter que la jauge utilisée précédemment a été remplacée en 2018, sans que cela s'accompagne d'un changement de la valeur mesurée, pour une même ouverture de la vanne à aiguille. Lorsque l'arrivée d'hydrogène est ouverte, selon le débit choisi, la pression résiduelle P_f qui règne dans l'enceinte se situe entre 10^{-5} et 10^{-4} mbar, en raison de la vitesse de pompage limitée de la pompe à diffusion.

Cette vitesse de pompage dépend notamment de l'efficacité du chauffage de l'huile, à plus de 300 °C, par la résistance chauffante. Elle a pu être améliorée, depuis 2018, par l'application d'une pâte de scellement thermique favorisant le transfert de chaleur entre la résistance et le fond de la pompe. Le branchement électrique de la résistance (220 V et 8 A) a également été reconfiguré pour limiter son vieillissement accéléré sous l'effet des hautes températures. En 2018 et en 2019, la pompe a également été vidangée et récurée, et sa résistance chauffante remplacée, afin de maintenir optimales ses capacités de pompage.

IV.3 Refroidissement du jet atomique

Afin de réduire l'effet Doppler du second ordre, nous avons mis en place en 2017 une buse cryogénique refroidie à l'azote liquide, à 77 K, en remplacement de la buse en téflon, pour diminuer la température du jet d'hydrogène. Il s'agit d'une pièce en cuivre (schématisée en A, figure IV.3) soutenue par deux anneaux de téflon (B) et fixée à une conduite de cuivre (C) contenant de l'azote liquide. Cette dernière est alimentée en azote par un réservoir en surplomb, et suspendue au milieu d'un vide primaire assuré par une pompe *scroll*. Les anneaux de téflon, qui maintiennent la buse en l'isolant thermiquement de la structure, séparent en outre ce vide primaire du vide secondaire qui règne dans le reste de l'enceinte.

Le dispositif cryogénique a été intégralement fabriqué par l'atelier de mécanique du laboratoire, afin de pouvoir s'insérer dans le montage existant, déjà fort encombré, tout en demeurant amovible. La conduite de cuivre est ainsi composée de trois parties différentes, comportant un soufflet et assemblées avec des joints d'indium. Des plaques de caoutchouc, à la base du réservoir, amortissent partiellement les vibrations causées par le bouillonnement de l'azote liquide. Afin d'éviter toute condensation, l'ensemble est enveloppé d'une mousse isolante, et les vapeurs d'azote froides évacuées à distance.

Pour refroidir efficacement le jet atomique, le contact entre la conduite d'azote liquide et la buse est critique ; il est assuré en les vissant l'une contre l'autre, une fine couche de graisse à vide préalablement étalée entre elles. Leur température est mesurée par une thermistance de platine (Pt, figure IV.3) fixée dans l'extrémité de la conduite d'azote par une résine

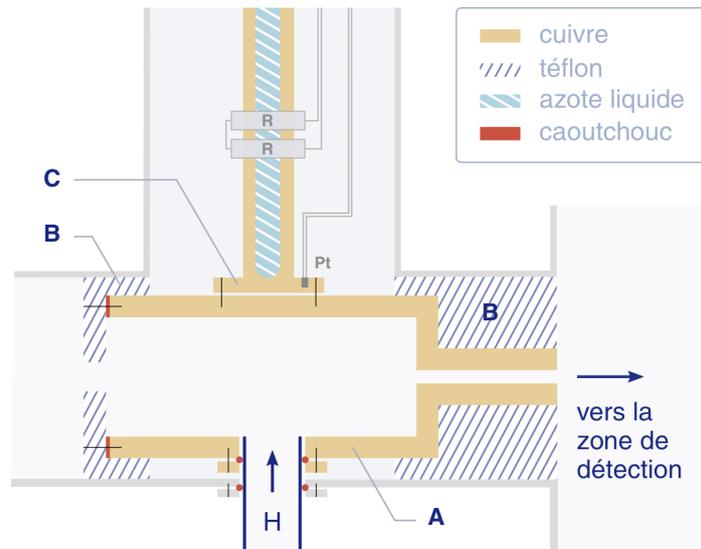


Fig. IV.3 Schéma de la buse cryogénique.

thermoconductrice (*Stycast*). Deux heures environ après le remplissage de la conduite et du réservoir, la température relevée par la thermistance atteint un minimum de $-180\text{ }^{\circ}\text{C}$, en l'absence d'hydrogène.

Lorsque l'arrivée d'hydrogène est ouverte, selon le débit choisi, elle peut varier entre -170 et $-130\text{ }^{\circ}\text{C}$, principalement à cause de l'infiltration du gaz dans le vide d'isolation de la conduite de cuivre, entraînant le réchauffement de celle-ci. Pour maintenir la température de la buse constante quel que soit le débit de gaz, des résistances de puissance (R, figure IV.3) sont montées au contact de la conduite de cuivre, et leur courant d'alimentation régulé afin d'asservir la mesure de la thermistance à $-130\text{ }^{\circ}\text{C}$. Ces résistances permettent également de réchauffer la buse avant l'arrêt du pompage de l'enceinte, afin d'éviter que des polluants ne s'y condensent.

Le choix du cuivre comme matériau constituant la buse, outre sa bonne conductivité thermique, tient à la faible probabilité de recombinaison des atomes d'hydrogène à son contact, à basse température [WALRAVEN 1982]. L'aluminium possède des propriétés similaires, et le signal de la transition $1S - 3S$ obtenu avec une buse usinée en aluminium est d'amplitude comparable à celui obtenu avec une buse de cuivre. C'est cependant cette dernière que nous avons utilisée pour effectuer des mesures à basse température, car l'état de surface de l'aluminium semble moins stable au cours du temps, blanchissant sous l'effet de l'exposition au flux d'hydrogène.

Malgré tous nos efforts, la mise en œuvre du dispositif cryogénique impose de nombreuses contraintes : l'interruption nocturne du pompage de l'enceinte implique de prendre le temps de refroidir, puis de réchauffer, chaque jour la buse ; ces variations de température s'accompagnent d'une déformation mécanique, par dilatation thermique, de la structure de l'enceinte au cours de la journée, et donc de l'alignement de la cavité Fabry-Perot à 205 nm qui y est attachée ; enfin, les vibrations dues à l'azote en ébullition perturbent sensiblement l'asservissement de cette cavité. Nous n'avons donc finalement employé ce dispositif que pour un petit nombre de mesures (cf. section III).

IV.4 État des atomes avant leur excitation

Au sortir de la buse, les atomes sont pour l'essentiel dans leur état fondamental. En effet, la durée de vie de la plupart des états excités, dans lesquels les atomes se trouvent à l'issue de la dissociation moléculaire, est au plus de l'ordre de la microseconde (voir section II.4, et à l'exception des états métastables $|2S\rangle$). Or la distance parcourue par les atomes, du tube à décharge à la sortie de la buse, est au minimum d'une vingtaine de centimètres, sans compter les collisions subies ; tandis que leur vitesse moyenne est de 3,0 km/s pour le protium et 2,1 km/s pour le deutérium.

Nous l'avons vu au chapitre précédent, la probabilité d'excitation des atomes n'est importante qu'au voisinage du col du faisceau laser d'excitation, à 12 cm de la sortie de la buse (D, figure IV.1). Afin de réduire au mieux les champs électriques parasites susceptibles d'affecter les niveaux d'énergie des atomes, une fine grille, conductrice et reliée à l'enceinte, entoure cette zone sur une longueur de 70 mm et à une distance de 10 mm de l'axe du faisceau laser. Les parois de l'enceinte sont en outre recouvertes d'une peinture conductrice (solution colloïdale de graphite *Aquadag*). Noire, cette peinture permet aussi de limiter la diffusion de la lumière dans l'enceinte. L'ensemble est relié à la terre. Par ailleurs, l'huile de la pompe à diffusion étant conductrice, son dépôt éventuel sur les parois de l'enceinte ne présente pas un risque accru d'accumulation de charges locales.

Les composantes horizontales du champ magnétique terrestre sont compensées grâce à deux paires de bobines (non représentées figure IV.1), placées autour de l'enceinte à vide. Le courant parcourant chaque paire est calibré en orientant perpendiculairement à son axe l'aiguille d'une boussole placée au niveau de la zone de détection, le système optique collectant la fluorescence étant ôté, et l'autre paire de bobines éteinte. Les courants correspondants, de l'ordre de 0,2 A, sont fournis par des alimentations dont la stabilité d'un jour à l'autre n'est guère inférieure à 15 %, ce qui limite d'autant la fiabilité de la compensation : nous en tiendrons compte dans l'analyse de nos mesures. De nouvelles alimentations, plus stables, ont été mises en place à l'issue de nos prises de données.

À la latitude du laboratoire, l'induction magnétique du champ terrestre à compenser est de 21 μT vers le nord et 0,4 μT vers l'est, avec des variations méridiennes de l'ordre de 20 nT [BCMT 2020]. La composante verticale du champ magnétique terrestre, ordinairement de 43 μT vers le bas à notre latitude, est dans notre cas atténuée par la structure métallique du bâtiment. Nous ne la compensons pas, mais la mesurons au moyen d'une sonde à effet Hall (*SENSYS FGM3D*) : elle est de 11,3 (2) μT , vers le bas. Notons que le métal constituant l'enceinte, visserie comprise, est faiblement magnétique.

Ces conditions permettent l'application d'un champ magnétique homogène d'intensité contrôlée. Vertical, transverse au jet atomique, et d'induction avoisinant 20 mT (200 G), c'est ce champ qui nous permet de déterminer la distribution des vitesses atomiques en induisant un effet Stark motionnel. Un courant électrique de l'ordre de 150 A est nécessaire pour le produire au moyen de deux bobines de 37 cm de diamètre, placées autour de l'enceinte à vide (figure IV.1). Une circulation d'eau intérieure permet de les refroidir [HAGEL 2001]. La valeur de l'induction magnétique ainsi appliquée est mesurée dans le référentiel des atomes, en déterminant la fréquence d'une composante hyperfine de la transition $1S-3S$ sensiblement déplacée par effet Zeeman (voir chapitre VII).

IV.5 Détection de fluorescence

De toute la zone où l'interaction entre les atomes et le faisceau laser est la plus probable, seule une longueur de 12 mm, centrée sur le col de la cavité Fabry-Perot à 205 nm, est imagée au moyen d'une série de lentilles sur un tube photomultiplicateur (PM, figure IV.1). Un filtre interférentiel permet de ne détecter que les photons émis par la désexcitation spontanée des atomes entre les niveaux 3S et 2P, d'une longueur d'onde de 656 nm. C'est l'angle d'acceptance de ce filtre, de 15°, qui limite l'extension de la zone imagée sur le photomultiplicateur [HAGEL 2001, § 3.2.1]. Une fente, de largeur ajustable, orientée dans l'axe du faisceau, est placée au conjugué intermédiaire de la zone de détection afin d'écranter les côtés du faisceau et d'ainsi réduire la proportion de photons parasites perçus.

Pour augmenter l'angle solide de détection, un miroir métallique concave, dont le foyer est placé au niveau de la zone de détection, renvoie en direction du photomultiplicateur les photons de fluorescence émis vers le bas (figure IV.1). On peut estimer que l'ouverture angulaire du système (le demi-angle du cône de lumière collecté par le dispositif optique) vaut $\Theta = 45^\circ$ pour les photons émis vers le haut, et 37° pour ceux émis vers le bas.

Le signal de sortie du photomultiplicateur est ensuite traité par un comparateur déclenchant, chaque fois que le signal dépasse une valeur seuil, une impulsion TTL. Cette impulsion est reçue par un compteur d'impulsions, dont le modèle actuellement en place (*Keysight 53230A*) a été installé en 2018. C'est la mesure réalisée par ce compteur, sur un temps de porte d'une seconde, qui constitue notre signal de détection de la transition $1S - 3S$. Sa synchronisation avec le balayage de la fréquence laser d'excitation sera détaillée à la section VI.4.1.

Le compteur permet également d'horodater les impulsions qu'il reçoit, c'est-à-dire d'enregistrer chaque durée s'écoulant entre deux impulsions successives. Il est ainsi possible d'étudier les caractéristiques statistiques de la fluorescence détectée. En particulier, on peut observer que le temps d'attente entre deux impulsions suit une loi de probabilité exponentielle, comme attendu lorsque l'on considère les processus d'émission d'un photon par les atomes du jet comme indépendants, et sans mémoire (figure IV.4).

On peut également remarquer que la distribution du nombre d'impulsions détectées par unité de temps, lorsque la fréquence laser est à résonance avec la transition $1S - 3S$, ne suit pas la statistique poissonnienne à laquelle on pourrait s'attendre [COOK 1981]. Cela est dû aux fluctuations de l'asservissement de la cavité Fabry-Perot à 205 nm, dans laquelle se propage le faisceau excitant la transition : nous verrons au chapitre suivant que, malgré les améliorations que nous lui avons apportées, cet asservissement reste très sensible aux vibrations, aléatoires, de l'enceinte.

Considéré alors, plus généralement, comme résultant de la somme de processus aléatoires indépendants, le nombre d'impulsions comptées par seconde peut être modélisé par une loi normale, dont la variance est supérieure à celle de la loi de Poisson attendue – d'un facteur 20 typiquement (figure IV.4). Cette dispersion excessive constitue une importante limitation à l'augmentation du rapport signal-sur-bruit de nos mesures.

IV.6 Bruit de fond

Quatre autres sources principales de bruit affectent la détection du signal de fluorescence : le bruit de l'électronique de détection des impulsions ; le bruit thermique du photomultipli-

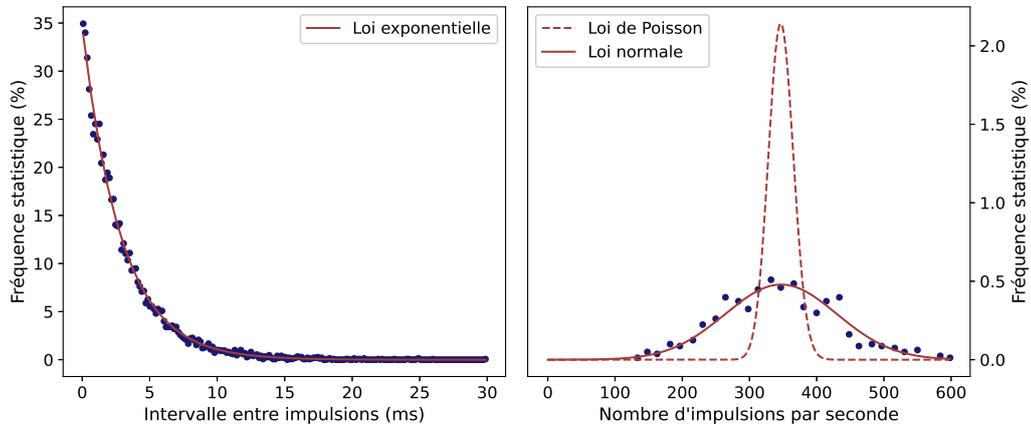


Fig. IV.4 *Statistiques de comptage des photons de fluorescence (à résonance)*. Les valeurs expérimentales (en bleu) correspondent à l'horodatage de 10 000 coups successifs, sur une durée de 28,8 s, pendant que la cavité Fabry-Perot à 205 nm est asservie sur le faisceau laser, lui-même à résonance avec la transition $1S - 3S$ du deutérium. Les courbes rouges ne sont pas ajustées sur les points expérimentaux, mais prédites à partir de la valeur moyenne de ces points. Il s'agit, à gauche, de la densité de probabilité d'une loi exponentielle paramétrée par l'intervalle moyen entre coups, valant 2,9 ms. À droite, la courbe en pointillés représente la fonction de masse d'une loi de Poisson paramétrée par le nombre moyen de coups par unité de temps ($\lambda = 347$ cps/s) ; et la courbe continue correspond à une loi normale de moyenne λ et de variance égale à 20λ .

cateur ; les photons de fluorescence émis par les atomes d'hydrogène en se désexcitant dans le tube à décharge ; et les photons de fluorescence émis par d'autres atomes que l'hydrogène, et engendrés par le faisceau laser à 205 nm.

La première n'était pas négligeable avant 2019 : le comparateur alors utilisé était perturbable par le rayonnement de la décharge RF, et pouvait en outre être sensible à son propre signal de sortie. Ce comparateur a donc été remplacé par un module *Hamamatsu C9744*, isolé des ondes RF par une cage de Faraday d'aluminium et relié à la terre en limitant les boucles de masse, tandis que l'impédance du court câblage le reliant au photomultiplicateur était adaptée à $50\ \Omega$. Cela a permis d'optimiser à la baisse le seuil de détection du comparateur, et donc d'accroître la sensibilité du dispositif de comptage de photons. Par ailleurs, la stabilité de la tension d'alimentation des anodes du photomultiplicateur, de -1950 V pour la dernière d'entre elles, a été fortement accrue par l'installation d'un nouveau générateur (*Hamamatsu C9727*) et le changement du câblage haute-tension les y reliant.

Pour réduire le bruit de fond thermique, le photomultiplicateur est refroidi à -40°C par un dispositif à effet Peltier. L'ensemble de l'optique de détection est enveloppé d'une toile noire, et l'éclairage de la pièce entièrement éteint lors des prises de données. Dans ces conditions, lorsque l'arrivée d'hydrogène et le faisceau laser à 205 nm sont coupés, le compteur de photons enregistre un bruit de fond moyen de 12 (4) impulsions par seconde. La figure IV.5 présente la dispersion, poissonnienne, de ce comptage, obtenue par horodatage.

La majeure partie de la fluorescence Balmer- α émise par les atomes d'hydrogène dans

le tube à décharge n'atteint pas le photomultiplicateur, grâce à l'angle droit que forme la direction du tube à celle de la buse, et grâce aux diaphragmes qui séparent la buse de la zone de détection (figure IV.1). Une fraction non négligeable y parvient cependant, se propageant par diffusion dans l'épaisseur des pièces de téflon qui guident les atomes. En optimisant le positionnement de ces pièces les unes par rapport aux autres, nous avons observé qu'il était possible de réduire cette fluorescence parasite de 20 %. À la pression usuelle de notre campagne de mesure ($P_f = 5 \times 10^{-5}$ mbar), le cumul du bruit de fond thermique et du bruit induit par la décharge est alors typiquement de 23 (5) impulsions par seconde (figure IV.5).

Enfin, en l'absence d'atomes d'hydrogène mais en présence du faisceau laser à 205 nm, un important bruit de fond était détecté par le photomultiplicateur, en dépit du filtre interférentiel. Nous avons suspecté la silice qui compose les lentilles de fluorescer, en absorbant des photons UV diffusés dans l'enceinte, d'une lueur rouge susceptible de franchir le filtre. Une telle fluorescence est en effet visible sur certaines lentilles focalisant un faisceau laser à 266 nm utilisé ailleurs dans l'expérience. Pour y remédier, nous avons installé en 2019 un miroir dichroïque, réfléchissant à 205 nm (à 85 %) et transparent à 656 nm (à 92 %), intercalé entre la zone de détection et les lentilles de silice. Le bruit de fond induit par la propagation du faisceau UV s'est alors trouvé réduit de près de 60 %. Son amplitude dépend beaucoup de la puissance du faisceau UV, de la surtension de la cavité Fabry-Perot, et de la qualité de son asservissement : en l'absence d'atomes d'hydrogène, décharge RF éteinte, le nombre d'impulsions par seconde enregistré par le compteur vaut ainsi entre 25 (5) et 100 (12).

Grâce à l'ensemble de ces améliorations, le contraste de la détection du signal de la transition $1S - 3S$ a été notablement accru. Cela peut être quantifié au travers du rapport entre le nombre de photons détectés lorsque la fréquence du faisceau UV est à résonance avec la transition $1S - 3S$, et lorsqu'elle est décalée hors résonance, de 2,5 MHz par exemple en fréquence atomique¹. Pour le protium, ce rapport vaut à présent 3,8, tandis qu'il était en moyenne de 2,1 lors de la campagne de mesure réalisée en 2013, et de 2,6 en 2017.

1. Le nombre de photons détectés pour une excitation à 2,5 MHz de la résonance n'est pas dû au seul bruit de fond, puisque le signal de fluorescence élargi par temps de transit y contribue notablement. Cela constitue cependant un bon point de comparaison, les campagnes de mesure de 2013 et de 2017 n'ayant pas enregistré de spectre sur une plus large fenêtre.

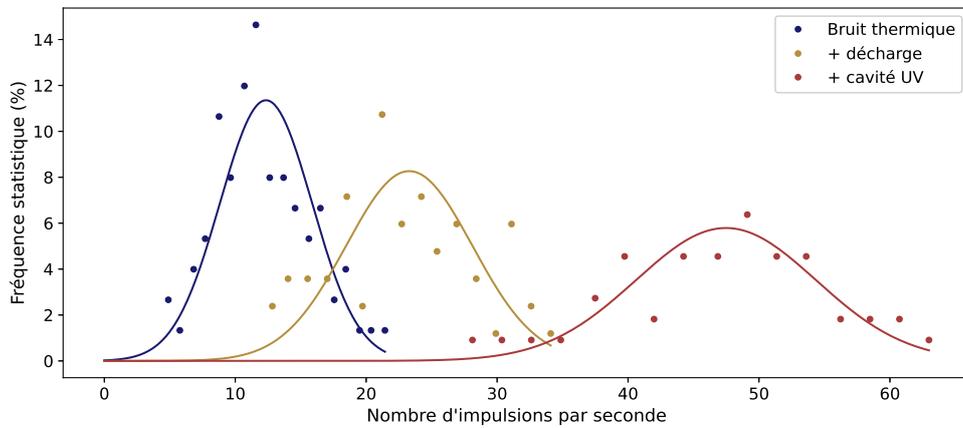


Fig. IV.5 Statistiques de comptage du bruit de fond (hors résonance). Chaque série de points expérimentaux correspond à l'horodatage de 1000 impulsions successives, durant un temps T , dans différentes configurations. En bleu, la décharge RF et le faisceau laser étant coupés ($T = 81,0$ s) ; en jaune, la décharge étant allumée et le faisceau coupé ($T = 42,9$ s) ; en rouge, la décharge étant allumée et la cavité Fabry-Perot asservie sur le faisceau laser ($T = 21,1$ s). Le débit de dihydrogène correspond à la valeur moyenne utilisée durant notre campagne de mesure ($P_f = 5,0 \times 10^{-5}$ mbar) ; le faisceau laser est désaccordé de 44 MHz, en fréquence atomique, par rapport à la transition $1S - 3S$ du deutérium. Les courbes continues ne sont pas ajustées sur les points expérimentaux : elles représentent la loi de probabilité de Poisson paramétrée, dans chaque configuration, par le nombre moyen d'impulsions détectées par seconde.

Chapitre V

Cavités optiques et sources laser

La première partie de ce chapitre décrit la cavité Fabry-Perot à 205 nm qui permet à la transition $1S - 3S$ d'être excitée par des photons contra-propageants, et qui amplifie l'intensité du faisceau laser d'excitation perçue par les atomes. La somme de fréquences permettant de produire un faisceau continu à 205 nm est ensuite présentée, ainsi que les sources laser à 266 et 895 nm qui l'alimentent et leurs systèmes d'asservissement à court terme. Nous renverrons au chapitre suivant le détail de la stabilisation à long terme de leur fréquence.

V.1 Cavité Fabry-Perot à 205 nm

La cavité Fabry-Perot à 205 nm est située à l'intérieur de l'enceinte à vide, représentée figure IV.1. Elle est constituée de deux miroirs concaves, de rayon de courbure $r_c = 25$ cm, en configuration quasi-concentrique. Un revêtement diélectrique confère aux miroirs d'entrée et de sortie des coefficients de réflexion nominaux, à 205 nm, valant respectivement $R_e = 96,7\%$ et $R_s = 98,5\%$. La technologie actuelle ne permet pas d'obtenir un coefficient de réflexion plus élevé à cette longueur d'onde.

Afin de contrôler finement la longueur de la cavité, les miroirs sont montés chacun sur une cale piézoélectrique (de céramique PZT), en anneau afin de laisser passer le faisceau lumineux. Les supports sur lesquels sont fixées ces cales sont eux-même rattachés aux extrémités de l'enceinte à vide ; leur orientation peut être ajustée grâce à des vis micrométriques accessibles depuis l'extérieur de l'enceinte.

Polarisé verticalement, le faisceau laser entre dans l'enceinte à vide par une fenêtre de silice fondue inclinée à l'angle de Brewster. Son diamètre est préalablement adapté à l'aide d'un télescope, pour en maximiser le recouvrement avec le mode TEM_{00} de la cavité. Le couplage n'est cependant pas total, en raison de la géométrie complexe du faisceau source à 205 nm (voir figure V.5).

En sortie de la cavité, à l'extérieur de l'enceinte, une photodiode mesure l'intensité transmise (PHD, figure IV.1). L'ultraviolet dégradant au fil du temps la sensibilité de la photodiode, celle-ci est interfacée par un petit tube contenant une solution de fluorescéine, convertissant l'ultraviolet en photons moins énergétiques. Par ailleurs, afin d'évaluer la reproductibilité de la mesure de l'intensité transmise, critique pour corriger certains effets systématiques, une lame mince placée devant la photodiode à fluorescéine prélève une faible

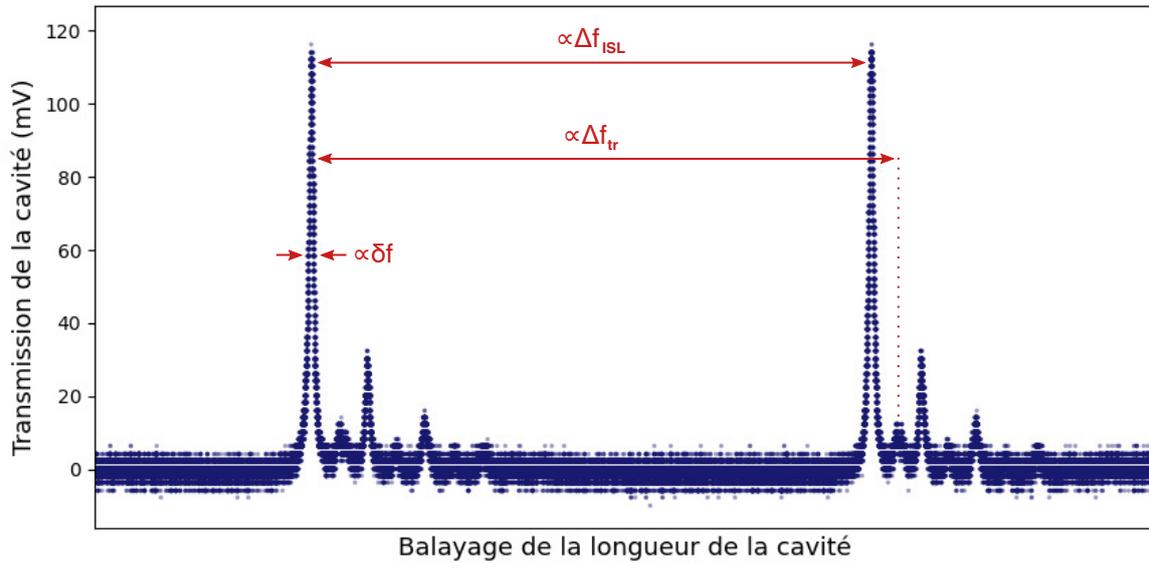


Fig. V.1 Spectre de transmission de la cavité Fabry-Perot à 205 nm. Le signal de transmission est détecté par une photodiode UV et échantillonné par un oscilloscope numérique à un taux de 2,5 GHz, la longueur de la cavité étant balayée à vitesse constante. La variation du déphasage de Gouy subi par le faisceau étant négligeable entre deux longueurs résonantes successives de la cavité, on peut considérer que ce spectre est équivalent à celui que l'on aurait obtenu en balayant, non pas la longueur de la cavité, mais la fréquence du faisceau laser.

fraction du faisceau transmis pour la renvoyer sur deux autres photodiodes, redondantes, adaptées à la mesure de faibles intensités UV.

V.1.1 Spectre de transmission

La géométrie de la cavité peut être caractérisée précisément en étudiant son spectre de transmission, obtenu en balayant l'extension de la cale PZT soutenant l'un de ses miroirs. Le spectre présenté figure V.1 correspond à la configuration dans laquelle se trouvait la cavité lors de notre campagne de mesure. Cette configuration dépend du complexe alignement simultané de la direction d'injection du faisceau à 205 nm, de la position des lentilles du télescope d'entrée et de l'orientation des miroirs de la cavité, le tout relativement à l'axe du jet atomique. Un alignement qui varie légèrement au cours de la journée : la dilatation thermique de l'enceinte à vide dépend en effet du remplissage du piège à azote liquide, ce qui impose de régulièrement réoptimiser l'orientation des miroirs, toutes les deux heures typiquement.

Nous reprendrons ici les résultats d'optique gaussienne introduits au chapitre 3, notant f_L la fréquence du faisceau laser, w_0 le *waist* de la cavité et x_R sa longueur de Rayleigh. D'après l'équation (III.4), le déphasage subi par le faisceau au cours d'un aller-retour dans la cavité – c'est-à-dire après avoir parcouru quatre fois la distance d entre le centre de la

cavité et l'un de ses miroirs, la cavité étant symétrique – vaut :

$$4 \left[\frac{2\pi f_L d}{c} - \phi(d) \right]$$

On observe un pic de transmission à la sortie de la cavité si ce déphasage est un multiple de 2π . Si l'on détaille l'expression de la phase de Gouy ϕ pour un faisceau dans un mode TEM_{lm} (III.4), et si l'on rappelle que $R(d) = r_c = d + x_R^2/d$, on obtient alors la relation suivante entre f_L et d , pour $p, l \in \mathbb{N}$, $m \in \llbracket -l; l \rrbracket$:

$$4 \left[\frac{2\pi f_L d}{c} - (2l + |m| + 1) \arctan \left(\frac{1}{\sqrt{r_c/d - 1}} \right) \right] = 2\pi p$$

Autrement dit, la fréquence laser est à résonance avec la longueur de la cavité si elle vérifie $f_L = p \Delta f_{ISL} + (2l + |m| + 1) \Delta f_{tr}$. Dans cette expression, $\Delta f_{ISL} = c/4d$ est l'intervalle spectral libre de la cavité ; et l'écart entre ses pics transverses d'ordres successifs est :

$$\Delta f_{tr} = \frac{c}{2\pi d} \arctan \left(\frac{1}{\sqrt{r_c/d - 1}} \right) = \frac{c}{4\pi d} \arccos \left(1 - \frac{2d}{r_c} \right)$$

En ajustant par des fonctions lorentziennes les pics du spectre de transmission, on peut déterminer le rapport $\Delta f_{tr}/\Delta f_{ISL}$, et ainsi calculer la longueur de la cavité et le *waist* du faisceau :

$$2d = r_c \left[1 - \cos \left(\pi \frac{\Delta f_{tr}}{\Delta f_{ISL}} \right) \right] = 496.8 \text{ (3) mm.}$$

$$w_0 = \sqrt{c/\pi f_L} \sqrt[4]{d(r_c - d)} = 36 \text{ (1) } \mu\text{m.}$$

Cette valeur de *waist* se trouve être environ 20 % plus faible que celle mesurée lors des précédentes campagnes de mesure. L'intensité perçue par les atomes au niveau de la zone de détection est donc a priori plus élevée : c'est avantageux, dans la mesure où la probabilité d'excitation de la transition $1S - 3S$ est quadratique en intensité. On peut également s'attendre à ce que l'effet de déplacement lumineux soit plus important, et plus facile à caractériser.

Mais cela signifie aussi qu'un plus petit nombre d'atomes est susceptible d'intercepter le faisceau et de contribuer au signal de fluorescence. En outre, l'élargissement par temps de transit est accru pour les atomes ne se propageant pas dans l'axe du faisceau, et les variations d'intensité lumineuse le long de cet axe sont également plus prononcées – mais la longueur de Rayleigh $x_R = \pi f_L w_0^2/c = 20 \text{ (1) mm}$ demeure toutefois supérieure à la demi-longueur de la zone où l'excitation des atomes est détectée. Nous examinerons au chapitre VIII l'incidence que cela a pu avoir sur les résultats de notre campagne de mesure.

La finesse \mathcal{F} de la cavité peut être estimée à partir de la largeur à mi-hauteur δf des pics de transmission. La bande passante du montage de conversion courant-tension et d'amplification de la photodiode UV ne limite pas cette estimation. On obtient :

$$\mathcal{F} = \Delta f_{ISL}/\delta f \approx 110 \text{ (5)}$$

Le produit des coefficients de réflexion des miroirs est directement relié à la finesse (lorentzienne) de la cavité. Nominale, ce produit vaut $R_e R_s = 95,2\%$, correspondant à

une finesse de 130. En utilisant la détermination précédente de la finesse, on peut l'évaluer en pratique à :

$$R_e R_s = \exp^{-2\pi/\mathcal{F}} = 94,4(2) \%$$

Le temps caractéristique τ_{FP} d'établissement d'une onde stationnaire dans la cavité peut quant à lui être calculé comme l'inverse de la largeur des pics de transmission. Connaissant les valeurs de \mathcal{F} et $\Delta f_{ISL} = 300$ MHz, on obtient : $\tau_{FP} = 0,4 \mu\text{s}$.

Enfin, le facteur de surtension S de la cavité peut être évalué à partir de la transmission $T_e = 1 - R_e$ du miroir d'entrée : $S = T_e / (1 - \sqrt{R_e R_s})^2 \approx 40$. En raison des pertes par absorption subies par le faisceau UV au travers des éléments optiques en entrée de l'enceinte, de la géométrie particulière du faisceau incident (figure V.5), et des fluctuations de l'asservissement de l'écart des miroirs (section V.1.3), on peut supposer que seule une fraction $\eta \approx 60$ à 80 % de la puissance initiale à 205 nm se propage effectivement de manière résonance dans la cavité. Au col de cette dernière, l'intensité laser I_L perçue par les atomes est la somme des intensités des deux sens de propagation du faisceau, et a donc pour ordre de grandeur :

$$I_L = 2 \frac{\eta S P_{205}}{\pi w_0^2} \approx 10^8 \text{ W/m}^2$$

V.1.2 Dégradation de la réflexivité des miroirs UV

Lorsque la cavité est asservie, on observe au fil du temps une nette diminution de l'intensité lumineuse transmise, de l'ordre parfois de 80 % au cours d'une journée. Nous avons en 2017 étudié ce phénomène, causé par un dépôt se formant sur les surfaces traversées par le faisceau UV. Présent sur les faces d'entrée comme de sortie des miroirs, ainsi que sur la face intérieure de la fenêtre d'entrée de l'enceinte à vide, ce dépôt peut être nettoyé à l'hexane ou à l'acétone, en frottant avec un papier optique.

Une fois les miroirs nettoyés, réalignés et l'enceinte remise sous vide, la transmission de la cavité retrouve, pour quelques heures, son niveau initial ; mais le temps que prennent ces opérations ralentit considérablement les prises de données. Nous avons pu cependant constater que ce ralentissement était secondaire, face au gain en rapport signal-sur-bruit vis-à-vis du spectre de la transition $1S - 3S$ qu'occasionne une meilleure surtension dans la cavité. Durant notre campagne de mesure, nous avons ainsi systématiquement nettoyé (ou changé) les miroirs de la cavité et la fenêtre d'entrée de l'enceinte à vide une fois par semaine. Lors des précédentes campagnes, les miroirs n'étaient inspectés qu'au bout de plusieurs mois d'utilisation.

Le problème des surfaces contaminées par un dépôt carboné, lorsqu'elles sont irradiées par un faisceau d'énergie élevée, est bien connu de la physique des synchrotrons [GILLETTE 1971 ; KOIDE 1987 ; HANSEN 1993]. S'inspirant de ces travaux, on peut émettre l'hypothèse que, dans notre cas, les hydrocarbures présents dans l'enceinte et s'adsorbant sur les miroirs sont photolysés par le faisceau UV en des composants plus petits, tels que le monoxyde de carbone, qui se fixent plus durablement. L'origine la plus probable de ces hydrocarbures est l'huile qu'utilisent nos pompes, et que les pièges à froid ne peuvent empêcher tout à fait de pénétrer dans l'enceinte.

Une solution, couramment employée dans les synchrotrons, consisterait alors à insuffler de l'oxygène sur les surfaces contaminées, qui en présence d'un rayonnement UV se transformerait en ozone et oxyderait le dépôt en des composants plus volatils. Cette technique est

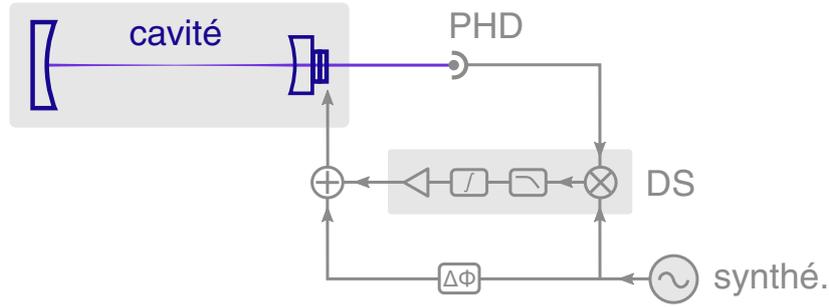


Fig. V.2 Schéma de l'asservissement de la cavité Fabry-Perot à 205 nm. La détection synchrone (DS) est composée, de la droite vers la gauche, d'un mixeur, d'un filtre passe-bas, d'un intégrateur et d'un amplificateur. Un déphaseur ($\Delta\phi$) permet d'ajuster la synchronisation entre les signaux de modulation et de démodulation produits par le synthétiseur. Ces signaux sont additionnés avant d'être appliqués, portés à haute tension, à la cale PZT soutenant le miroir de sortie de la cavité.

mise en œuvre à l'Institut Max Planck d'optique quantique de Garching, grâce à un pompage différentiel des miroirs et du jet atomique. L'adaptation de notre système expérimental était toutefois trop lourde pour que cette solution puisse être envisagée avant la fin du présent travail de thèse.

V.1.3 Asservissement de la cavité

La longueur de la cavité Fabry-Perot est asservie à résonance avec le faisceau à 205 nm, en appliquant à la cale PZT qui supporte le miroir de sortie¹ de la cavité un signal d'erreur généré par détection synchrone (figure V.2). Pour cela, la position de cette cale PZT est faiblement modulée, à une fréquence proche de 10 kHz, et l'intensité transmise par la cavité est démodulée à cette même fréquence. Le profil du signal d'erreur obtenu est représenté figure V.3. Il est ensuite filtré par un montage intégrateur, avant d'être sommé à la modulation initiale en entrée de l'amplificateur haute-tension, conçu à l'atelier d'électronique du laboratoire, qui alimente la cale PZT.

Depuis 2018, la génération de la modulation sinusoïdale et la démodulation sont assurées par une carte *RedPitaya*, dont nous détaillerons le fonctionnement au chapitre suivant. Par comparaison avec la détection synchrone commercialement précédemment utilisée, la bande passante élevée de la *RedPitaya*, et sa plus fine paramétrabilité, ont permis d'améliorer notablement la robustesse de l'asservissement.

Les perturbations qu'il vise à corriger sont principalement dues aux vibrations qui se propagent dans le bâti de l'enceinte, en dépit des plaques de caoutchouc qui l'isolent du sol, et d'un massif bloc de ciment amortissant les oscillations de la pompe à palettes. Leur

1. Plusieurs configurations d'asservissement ont été testées, consistant à appliquer la modulation sur le miroir d'entrée et le signal d'erreur sur celui de sortie, ou inversement ; ou les deux sur le même miroir. Aucune différence notable n'ayant été constatée, nous avons choisi de n'utiliser comme actionneur que le miroir de sortie, afin d'éviter de porter à haute tension la cale du miroir d'entrée, situé à proximité de l'arrivée des atomes d'hydrogène. S'il se trouve que le miroir de sortie est également des deux le plus petit, cela n'a pas d'incidence, les fréquences de résonance des ensembles cale-miroir se trouvant dans tous les cas en dehors de la bande passante nécessaire à l'asservissement.

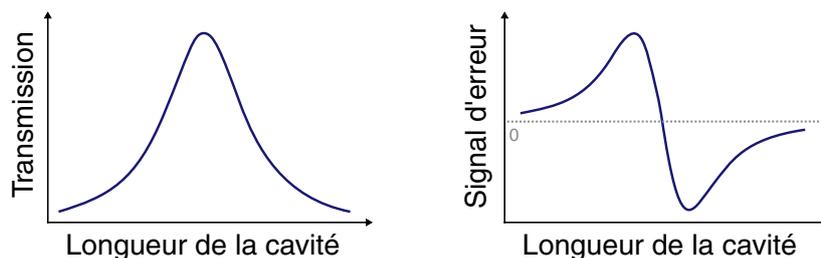


Fig. V.3 Profils du pic de transmission de la cavité Fabry-Perot vis-à-vis du centre duquel est asservie la longueur de la cavité, et signal d'erreur obtenu par détection synchrone. Le signal d'erreur correspond à l'amplitude des oscillations de l'intensité transmise à la fréquence à laquelle est modulée la longueur de la cavité – c'est-à-dire à la pente du signal de transmission.

fréquence est donc de l'ordre de quelques dizaines à quelques centaines de hertz.

Pour compenser avec suffisamment de réactivité les vibrations les plus rapides, la fréquence de coupure du filtre passe-bas de la démodulation est ajustée à 1,2 kHz. Cette valeur suffit pour ne pas introduire, au sein du signal d'erreur, le bruit dû aux retards de propagation dans le circuit électronique ; par ailleurs, le bruit de scintillation est fortement atténué à la fréquence à laquelle le signal de photodétection est démodulé. Et pour garantir que la correction des vibrations les plus amples s'opère avec assez de gain, la fréquence de coupure de l'intégrateur est réglée à 15 Hz, ce qui permet également de suivre la dérive induite à plus long terme par les variations de température de l'enceinte.

Même après avoir optimisé ces valeurs, les fluctuations de la longueur de la cavité lorsqu'elle est asservie demeurent importantes ; en outre, l'amplitude de modulation doit à son tour être assez grande pour rester discernable. Cela conduit l'écart-type de l'intensité transmise, au cours d'une seconde de temps d'intégration, à valoir entre 5 et 10% de l'intensité maximale atteignable². Il arrive également que de brefs désasservissements, inférieurs au dixième de seconde, surviennent jusqu'à quelques dizaines de fois par minute. Ce sont toutes ces raisons qui causent la sur-dispersion, évoquée au chapitre précédent (section IV.6), de nos mesures de fluorescence.

Une solution à ce problème serait de découpler mécaniquement les supports des miroirs de l'enceinte à vide. La conception d'un tel dispositif a d'ores et déjà été entamée, conjointement à celle d'un système de pompage exempt d'huile, recourant à une pompe turbomoléculaire à paliers magnétiques – mais sa mise en place sort du cadre du travail de thèse présenté ici.

Lorsqu'un désasservissement perdure plus d'un dixième de seconde, le programme de pilotage de l'expérience le détecte, réinitialise alors l'intégrateur et incrémente la tension appliquée à la cale PZT jusqu'à ce que la cavité soit de nouveau asservie. Une carte d'acquisition *NI USB-6259 BNC* assure la communication entre l'ordinateur qui exécute ce programme, la photodiode à fluorescéine, le condensateur de l'intégrateur (court-circuitable via un commutateur *ADG202*), et le circuit sommateur de l'amplificateur haute-tension.

L'automatisme est écrit en python, et interfacé avec la carte d'acquisition par la librairie *PyDAQmx* (développée par Pierre Cladé). Optimisé en 2019, il permet maintenant de

2. La fréquence de la modulation appliquée à la cale PZT étant de 10 kHz, le temps caractéristique correspondant de l'évolution de l'intensité laser perçue par les atomes est de 100 μ s : au vu des résultats présentés section III.6, il est assez grand pour ne pas induire d'élargissement par temps de transit des raies observées.

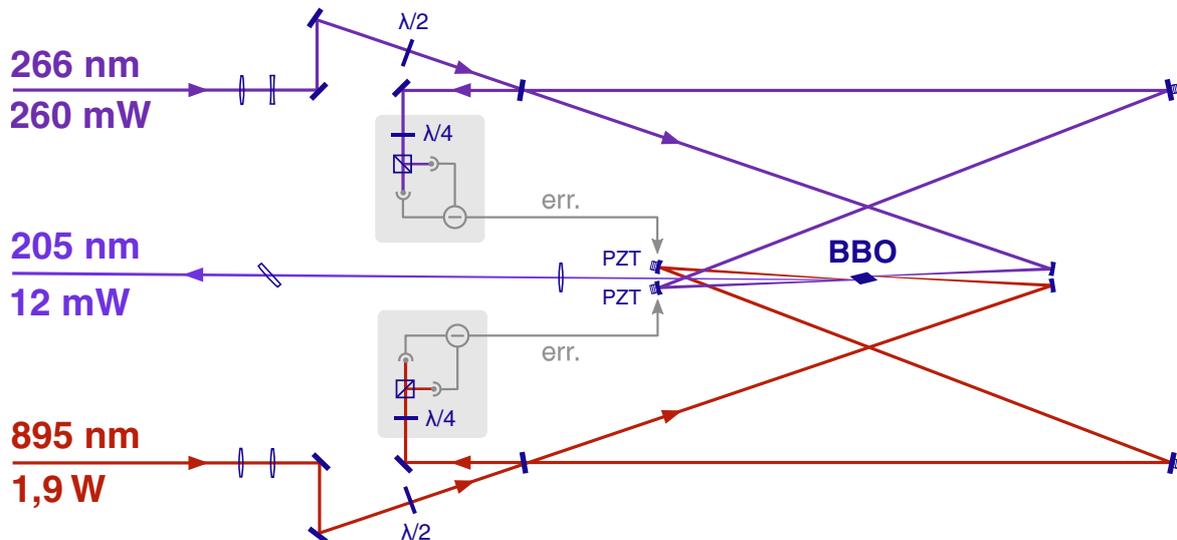


Fig. V.4 Schéma du dispositif de somme de fréquence. Les blocs grisés symbolisent, pour chacune des deux cavités optiques, la méthode Hänsch-Couillaud d'obtention d'un signal d'erreur permettant leur asservissement. Ce signal est amplifié à haute tension avant d'alimenter les cales PZT qui soutiennent certains miroirs (pour simplifier le schéma, l'alimentation des cales figurant tout à droite n'est pas représentée).

réasservir la cavité et poursuivre les prises de données en quelques dixièmes de seconde, au lieu d'une à deux secondes auparavant : une accélération cruciale à l'échelle d'une longue campagne de mesure.

V.2 Somme de fréquences

Il n'existe pas, du moins à l'heure actuelle, de milieux amplificateurs permettant l'émission directe d'un faisceau laser à la fois continu et suffisamment puissant à 205 nm, c'est-à-dire dans l'ultraviolet lointain. Stabiliser et mesurer la fréquence d'un tel faisceau serait de surcroît plutôt ardu : il est difficile de transmettre ou réfléchir cette longueur d'onde sans l'absorber. C'est donc en exploitant un processus non-linéaire, la somme de fréquences dans un cristal de BBO (bêta-borate de baryum), que nous obtenons un rayonnement à 205 nm, d'une puissance de 11 à 13 mW, à partir de faisceaux laser de plus basses fréquences (fig. V.4). Le dispositif que nous utilisons, et qui est décrit ici, a été construit par Sandrine Galtier entre 2012 et 2013.

Le BBO est un cristal uniaxe négatif, que nous utilisons dans une configuration de type I [GALTIER 2014b] : deux faisceaux incidents à 895 et 266 nm, polarisés selon une direction ordinaire du cristal (dans notre cas, horizontalement), donnent naissance au cours de leur propagation à un faisceau à 205 nm, polarisé selon la direction extraordinaire (dans notre cas, verticalement). L'efficacité du processus est de l'ordre de 10^{-4} W/W^2 . Elle est réduite de moitié si l'on s'écarte typiquement de plus de 10 secondes d'arc de l'angle d'accord de phase (de $58,6^\circ$) entre l'axe du cristal et la direction des vecteurs d'onde des faisceaux [SMITH 2021].



Fig. V.5 Allure de la section du faisceau laser à 205 nm. La biréfringence du cristal entraîne un étalement du faisceau à mesure que celui-ci se propage (walk-off), accompagné de franges causées par l'interférence du faisceau avec lui-même.

Cette dernière direction n'est pas celle dans laquelle progresse, au sein du cristal, l'intensité du faisceau à 205 nm : un angle de double réfraction de 89 mrad les sépare. Cet angle est à l'origine de la géométrie particulière de la section du faisceau obtenu, représentée figure V.5. À la sortie du cristal, la dispersion suffit ensuite pour isoler des autres le faisceau à 205 nm, qui est alors collimaté par une lentille sphérique et une lentille cylindrique à l'incidence de Brewster, avant d'être injecté dans la cavité Fabry-Perot présentée ci-devant.

L'efficacité de la somme de fréquences dépend fortement de l'état du cristal de BBO. Celui que nous avons mis en place en 2017 et utilisé tout au long du présent travail de thèse, de $4 \times 4 \times 5,75 \text{ mm}^3$, a été produit par *Crylight*. Ses surfaces sont pourvues d'un revêtement de MgF_2 . Un faible flux de dioxygène permet de les garder propres, l'ozone produit sous l'effet du rayonnement à 266 nm agissant comme un réducteur des dépôts potentiels (cf. V.1.2). Le BBO étant hygroscopique, il est constamment chauffé à 40 °C par un module à effet Peltier, pour limiter la condensation. La régulation de la température du cristal permet également de modérer les variations d'indice optique qu'induit, par échauffement, le passage des faisceaux lumineux.

Il arrive qu'un phénomène de conjugaison de phase se produise au sein du cristal. C'est-à-dire que la direction du vecteur d'onde des photons à 266 nm tend à s'inverser au cours de leur propagation, les empêchant dès lors de contribuer à la génération de photons à 205 nm. Le temps de déclenchement typique de l'inversion du sens de propagation étant de l'ordre de la minute, il est possible de l'éviter en déplaçant simplement le cristal, sans modifier son orientation, pour en illuminer un autre point. Après quelques dizaines de minutes, les zones précédemment affectées peuvent être utilisées de nouveau. Différentes interprétations ont été proposées de ce phénomène [BOURZEIX 1995, §4.C.b ; HAGEL 2001, §2.2.4], mais n'ont pas permis d'en identifier le remède.

À cause de cela, mais aussi parce que les photons à 266 nm peuvent endommager le cristal, il est préférable, afin d'obtenir davantage de photons à 205 nm, de maximiser la puissance incidente à 895 nm plutôt que celle à 266 nm. C'est pourquoi la face d'entrée du cristal est taillée à l'angle de Brewster pour une longueur d'onde de 895 nm.

V.2.1 Cavités de surtension

Pour augmenter la puissance lumineuse contribuant à la somme de fréquence, les faisceaux laser à 266 et 895 nm se propagent chacun dans une cavité Fabry-Perot en anneau, asservie à résonance. Ces deux cavités sont identiques (fig. V.4), constituées de deux miroirs plans et de deux miroirs sphériques de 30 cm de rayon de courbure, et définissent une longueur optique d'environ 1,8 m. Elles s'interceptent en leurs cols, au centre du cristal.

À cet endroit, leur section présente un rayon gaussien d'environ $30\ \mu\text{m}$, résultant d'un compromis entre l'accroissement de l'intensité et la réduction de la courbure du front d'onde du faisceau gaussien à l'intérieur du cristal [GALTIER 2014b, § 2.3]. Les angles d'incidence sur les miroirs sphériques des cavités sont calculés pour compenser l'astigmatisme causé, dans le plan horizontal, par l'inclinaison des faces du cristal à l'incidence de Brewster. La puissance intracavité peut être estimée, en présence du cristal, comme valant entre 1,5 et 2,5 W pour le faisceau à $266\ \text{nm}$ ³; et entre 120 et 170 W à $895\ \text{nm}$ [GALTIER 2014b].

L'asservissement de la longueur de chaque cavité s'effectue grâce à deux cales PZT, une épaisse et une fine, auxquelles sont appliquées respectivement les composantes à basse et haute fréquence d'un signal d'erreur obtenu par la méthode Hänsch-Couillaud⁴. Le montage optique et électronique correspondant est schématisé figure V.4. Notons que l'échauffement du cristal, en particulier lorsque la cavité de surtension à $266\ \text{nm}$ est asservie, modifie le déphasage que subit le faisceau dans la cavité, de sorte que la tension de décalage de l'amplificateur différentiel qui produit le signal d'erreur doit être légèrement réajustée au fil du temps.

La stabilité de l'environnement des cavités de surtension est essentielle, aussi bien pour ne pas compromettre leur asservissement que pour faciliter leur maintenance. En effet, le réglage des cavités de surtension est particulièrement délicat, puisqu'il s'agit à la fois d'optimiser l'alignement de chacune des cavités, la superposition des faisceaux qui s'y propagent au centre du cristal et l'angle d'accord de phase du processus non-linéaire. Cette optimisation peut prendre plusieurs semaines : on préfère donc n'avoir à l'effectuer qu'au plus une ou deux fois par an.

Pour cela, les supports des miroirs des cavités sont montés sur une platine rigide, elle-même fixée sur un bloc de granit de 500 kg pour l'isoler des vibrations. Les cavités sont encloses dans une enceinte de plexiglas qui les isole des variations de pression de l'air, que celles-ci soient d'origine acoustiques, provoquées par des fermetures de portes à proximité, ou par le vent sur la façade du bâtiment. Une légère surpression d'air sec est établie dans cette enceinte, afin d'éviter que la poussière et l'humidité n'y pénètrent. Enfin, la régulation de la température de la pièce, à $21\pm 1\ ^\circ\text{C}$, limite les déformations thermiques. Toutes ces précautions sont également mises en œuvre dans le cas des autres systèmes laser décrits par la suite.

Il a été observé que l'absorption dans l'air des photons à $895\ \text{nm}$ [GALTIER 2014b, § 2.2.2] aussi bien qu'à $266\ \text{nm}$ [FLEURBAEY 2017b, § 2.1.3] limitait de façon non négligeable la surtension atteinte dans les cavités. Pour éviter cela, depuis 2017, la majeure partie du trajet des faisceaux dans les deux cavités a lieu sous une atmosphère d'azote. Insufflé continûment, le gaz est issu des pièges à azote liquide mentionnés au chapitre précédent.

3. Notons que, malgré cette puissance, et contrairement aux miroirs de la cavité à $205\ \text{nm}$, l'altération de la réflectivité des miroirs de la cavité à $266\ \text{nm}$ sous l'effet des photons UV est assez lente. Il n'est ainsi nécessaire de les nettoyer qu'une ou deux fois par an, à l'hexane par exemple.

4. La méthode d'asservissement Hänsch-Couillaud se fonde sur la présence d'un élément polarisant à l'intérieur de la cavité, en l'occurrence le cristal coupé à l'incidence de Brewster. Celui-ci impose que seul un faisceau de polarisation horizontale peut s'y propager – et notamment ressortir par le miroir d'entrée. En ressortant, ce faisceau se superpose à la fraction du faisceau incident réfléchi par le miroir d'entrée; mais il y a entre les deux un déphasage, qui n'est pas un multiple de 2π si la longueur optique de la cavité n'est pas elle-même un multiple de la longueur d'onde. En faisant passer cette superposition au travers d'une lame quart-d'onde, puis en l'analysant avec un montage soustrayant l'intensité lumineuse des composantes horizontale et verticale de sa polarisation, on produit le signal d'erreur recherché [HANSCH 1980].

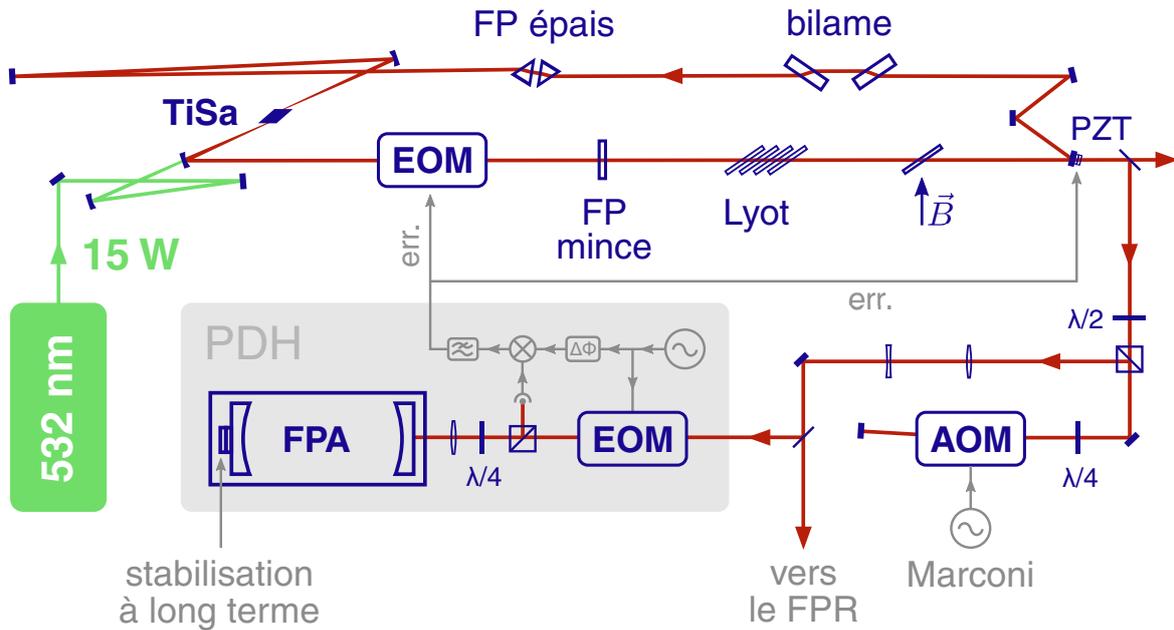


Fig. V.6 Source laser à 895 nm. TiSa : titane-saphir. PDH : asservissement Pound-Drever-Hall. err. : signal d'erreur d'asservissement. FP : Fabry-Perot. FPA : cavité Fabry-Perot annexe. FPR : Fabry-Perot de référence. EOM : modulateur électro-optique. AOM : modulateur acousto-optique. PZT : cale piézoélectrique.

Dans ces conditions, un alignement particulièrement méticuleux des cavités de surtension nous a permis d'obtenir, en 2020, un record de puissance pour un faisceau laser continu à 205 nm : 16,6(1) mW pendant plusieurs minutes. La recherche de ce record n'est pas superfétatoire, elle nous conduit à améliorer toujours davantage le rapport signal-sur-bruit de nos mesures, et donc la précision de nos résultats. De manière générale, lors des prises de données, afin que la puissance à 205 nm perçue par les atomes soit à la fois la plus élevée et la plus stable possible, l'alignement de l'ensemble des cavités optiques de l'expérience et le réglage des gains de leurs asservissements font l'objet d'une réoptimisation plusieurs fois par jour.

V.3 Source laser à 895 nm

Le laser infrarouge que nous utilisons, puissant, étroit et accordable, a initialement été développé par François Biraben au début des années 1990 : il constitue depuis un élément clef des expériences de spectroscopie menées par notre équipe.

Le milieu amplificateur permettant l'émission d'un rayonnement à 895 nm est un cristal de titane-saphir (TiSa), pompé par un faisceau laser à 532 nm. Le cristal, taillé à l'incidence de Brewster pour une polarisation horizontale, est enchâssé dans un support en laiton refroidi par eau à environ 17 °C, afin de réduire les pertes par relaxation thermique. Il est situé au col d'une cavité en anneau formée par deux miroirs sphériques, de 10 cm de rayon de courbure, et de quatre miroirs plans (fig. V.6). Leurs coefficients de réflexion sont maximaux à 895 nm, hormis pour le miroir de sortie, qui présente un coefficient de transmission d'environ 2%.

La longueur optique de la cavité est d'environ 1,70 m, correspondant à un intervalle spectral libre de 176 MHz. Elle peut être ajustée grossièrement au moyen de deux lames de verre symétriques (bilame, fig. V.6), d'orientation réglable, permettant de faire varier sans déviation l'épaisseur optique traversée par le faisceau laser. Elle peut être ajustée finement grâce à une cale PZT, sur laquelle est fixé le miroir de sortie, ainsi que par effet Pockels grâce à un modulateur électro-optique (EOM).

Le laser de pompe à 532 nm a été remplacé en 2020 par un modèle *Millenia eV (Spectra)* de 15 W. Si ce changement a permis d'augmenter la puissance du pompage (le précédent modèle était en pratique borné à 13,5 W), cela n'a cependant pas entraîné la production de davantage de puissance infrarouge, l'échauffement du cristal de TiSa devenant alors un facteur limitant. On obtient ainsi, au mieux, entre 1,8 et 2,0 W de faisceau à 895 nm.

V.3.1 Fonctionnement monomode

L'alignement des miroirs de la cavité permet de s'assurer que seuls des modes spatiaux TEM₀₀ s'y propagent. On sélectionne parmi eux un unique mode de fréquence de la cavité, en induisant des pertes sur la propagation des autres, grâce à la conjonction de trois dispositifs : un filtre de Lyot et deux interféromètres de Fabry-Perot [BIRABEN 1982].

Le filtre de Lyot est constitué de quatre lames biréfringentes, dont l'épaisseur croît en puissances de deux : elles rendent elliptique la polarisation du faisceau qui les traverse, sauf pour certaines plages de fréquence bien particulières. Ces plages sont larges de 19 GHz ; leur position peut être choisie en variant l'orientation de l'axe optique des lames, dont le support est motorisé. Seules ces plages sont susceptibles de circuler sans atténuation dans la cavité, puisqu'elles ne subissent pas de réflexion sur les différents dioptres qui s'y trouvent et sont inclinés à l'angle de Brewster.

Le premier Fabry-Perot (un étalon épais) est formé par deux prismes qui se font face à une distance de 8 mm : il sélectionne des plages de fréquence espacées de 19 GHz. Un traitement diélectrique assure un coefficient de réflexion de 30 % sur les faces des prismes en vis-à-vis, de sorte que la largeur de ses pics de transmission est de 8 GHz. Cette largeur est suffisamment petite pour qu'un seul des modes TEM₀₀ de la cavité puisse en pratique s'y propager sans pertes.

Le second Fabry-Perot (un étalon mince) est une simple lame en verre de silice, d'indice optique $n = 1,45$ et d'épaisseur $l = 0,7$ mm, définissant un intervalle spectral libre de $c/2nl \approx 150$ GHz : il permet d'écarter toute ambiguïté quant à la sélection d'un unique pic du premier Fabry-Perot par le filtre de Lyot. Son orientation est motorisée afin de pouvoir ajuster finement l'épaisseur effectivement traversée par le faisceau. L'écartement des prismes du premier Fabry-Perot est lui aussi réglable, au moyen d'une cale PZT. Une fois optimisée la coïncidence entre les pics de transmission désirés du filtre de Lyot et des Fabry-Perot, cet écartement est asservi par détection synchrone, en appliquant à la cale PZT une faible modulation à 3 kHz, afin de maximiser la puissance en sortie de la cavité laser.

Un ingénieux dispositif permet de garantir que la cavité, en anneau, n'est parcourue par le faisceau que dans un seul sens [BIRABEN 1979a]. D'une part, une lame de verre à effet Faraday, placée dans l'entrefer d'un aimant, induit une rotation de la polarisation du faisceau laser indépendante de sa direction de propagation. D'autre part, un système de trois miroirs non coplanaires avec le reste de la cavité provoque une rotation de polarisation équivalente, mais dont le sens dépend de la direction de propagation. L'orientation à l'angle de Brewster

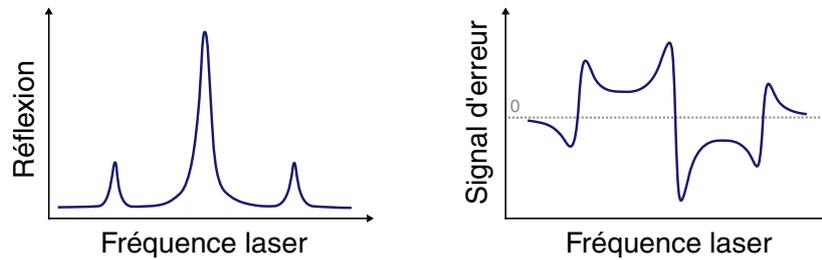


Fig. V.7 Illustration du principe de la méthode d'asservissement Pound-Drever-Hall. À gauche, signal de réflexion d'une cavité Fabry-Perot auxiliaire servant de référence ; à droite, signal d'erreur obtenu en analysant ce signal de réflexion. La phase du faisceau laser injecté dans la cavité Fabry-Perot est préalablement modulée par un modulateur électro-optique à une fréquence f_m : cette modulation engendre sur le spectre du laser, autour de sa fréquence centrale, deux bandes latérales en opposition de phase. Chacune de ces bandes latérales interfère avec la fréquence centrale, résultant en un battement de fréquence f_m ; et ces deux battements à leur tour interfèrent, de façon plus ou moins destructive selon le déphasage que subit la fréquence centrale à sa réflexion sur la cavité Fabry-Perot. L'intensité lumineuse réfléchie est alors détectée par une photodiode rapide et, pour finir, démodulée par mixage avec un signal de fréquence f_m judicieusement déphasé [DREVER 1983].

de plusieurs éléments de la cavité permet alors de privilégier le sens de circulation qui voit ces deux rotations se compenser.

V.3.2 Asservissement Pound-Drever-Hall

La longueur optique de la cavité est asservie en appliquant, respectivement, à la cale PZT du miroir de sortie et au modulateur électro-optique placé à l'intérieur de la cavité, les composantes à basses et hautes fréquences d'un signal d'erreur généré par la méthode de Pound-Drever-Hall, dont le principe est résumé figure V.7. Pour obtenir ce signal d'erreur, une fraction du faisceau laser à 895 nm est modulée en phase à 15 MHz par un modulateur électro-optique, et envoyée dans une cavité Fabry-Perot auxiliaire ultrastable (voir le bloc *PDH*, figure V.6).

Le signal de réflexion de la cavité est démodulé par mixage et application d'un filtre passe-bas, dont la fréquence de coupure de 5 MHz permet de filtrer la fréquence somme générée par le mixage. Pour améliorer l'efficacité de l'asservissement, le gain de la correction apportée par la cale PZT est réglé en excès, de sorte à faire surosciller la boucle de rétroaction et à laisser le modulateur électro-optique compenser cette suroscillation. Avec ce procédé, l'excursion du signal d'erreur asservi peut être réduite de près d'un ordre de grandeur.

L'un des intérêts de la méthode Pound-Drever-Hall est que la réactivité de l'asservissement n'est pas limitée par le temps d'établissement d'une onde stationnaire dans la cavité Fabry-Perot, celle-ci étant exploitée en réflexion [HELMCKE 1982, § II]. Par ailleurs, la production du signal d'erreur n'est pas sensible aux fluctuations d'intensité du laser, puisque le signal réfléchi mesuré est nul à résonance ; tandis que le bruit de scintillation de la photodétection est minimale à la fréquence de modulation employée. En prime, la plage de capture du signal d'erreur est avantageusement élargie par la proximité des bandes latérales résultant de la modulation.

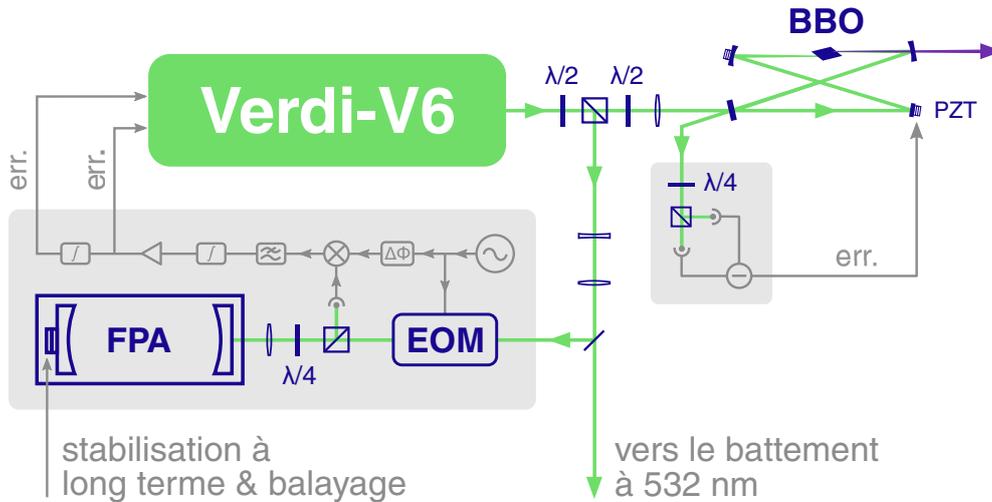


Fig. V.8 Source laser à 266 nm.

La cavité Fabry-Perot auxiliaire utilisée (FPA_{895}) est constituée de deux miroirs espacés de 25 cm, fixés sur un barreau d'Invar. La largeur de ses pics est d'environ 6 MHz, et sa finesse de l'ordre de 100 [GALTIER 2014a, §3.1.1]. Pour éviter les fluctuations de pression de l'air, la cavité est suspendue à l'intérieur d'une enceinte hermétique en laiton. L'un des miroirs est monté sur une cale piézoélectrique pour corriger les évolutions à long terme de la longueur de la cavité – nous en reparlerons au chapitre suivant.

Un modulateur acousto-optique (AOM, figure V.6), est monté en double passage en amont de la cavité FPA_{895} . Il est piloté par un synthétiseur (*Marconi 2030*), à une fréquence f_{AOM} de l'ordre de 200 MHz. En modifiant f_{AOM} , on contraint le système d'asservissement Pound-Drever-Hall à répercuter une modification opposée ($-2 \times f_{AOM}$) sur la fréquence du laser, afin de rester à résonance avec la cavité FPA_{895} . C'est ce qui nous permet de balayer finement, et à volonté, le spectre de la transition $1S - 3S$.

V.4 Source laser à 266 nm

Le faisceau laser à 266 nm est issu du doublage de fréquence, dans un cristal de BBO, d'un rayonnement laser à 532 nm. Le doublage est réalisé dans une cavité en anneau (*Coherent MBD266*), intégrée dans un support monolithique et asservie par la méthode Hänsch-Couillaud. Le processus non linéaire est de type I, pour un angle d'accord de phase de $47,7^\circ$. Le cristal, de $5 \times 6 \times 10 \text{ mm}^3$, est taillé à l'angle de Brewster à 532 nm et ses surfaces sont sans revêtement ; il est maintenu chauffé à 50°C . Celui utilisé depuis 2020 a été produit par *Eksma Optics*.

Pour prolonger sa durée de vie, la puissance à 532 nm injectée dans la cavité de doublage ne doit pas dépasser 1,2 W, ce qui limite la puissance du faisceau à 266 nm obtenu à environ 260 mW à 266 nm. Malgré cela, les zones irradiées du cristal se détériorent, en quelques heures parfois, si bien qu'il est fréquemment nécessaire de déplacer le cristal et réaligner la cavité.

La source laser à 532 nm est un *Verdi-V6* (*Coherent*), fournissant un faisceau monomode d'une puissance ajustable entre 4,5 et 6 W. Il est constitué d'une cavité en anneau contenant

un cristal de vanadate ($\text{Nd}:\text{YVO}_4$), pompé par une diode laser afin d'émettre un rayonnement laser à 1064 nm ; et d'un cristal de triborate de lithium (LBO) doublant la fréquence de ce rayonnement à 532 nm. Deux cales PZT, une lente et une rapide, permettent d'asservir cette cavité vis-à-vis d'un Fabry-Perot auxiliaire (FPA_{532}) par la méthode Pound-Drever-Hall, tout comme pour le laser *TiSa*. Le signal d'erreur est ici généré grâce une modulation à 12 MHz, démodulée avec une bande passante de 2 MHz ; la finesse du FPA_{532} est d'environ 400, et la largeur de ses pics de transmission de 1,5 MHz.

Là aussi, les composantes à basse et haute fréquence du signal d'erreur sont appliqués séparément sur deux actionneurs, une épaisse et une fine cale PZT supportant certains miroirs de cavité du *Verdi*, l'épaisse étant placée dans un régime de suroscillation compensé par la fine. Deux intégrateurs successifs permettent d'ajuster finement le profil spectral envoyé à chacun des actionneurs (figure V.8) ; le réglage de leurs constantes de temps et de leurs gains respectifs est délicat, mais crucial pour diminuer la largeur spectrale du laser. Le vieillissement du système rend malheureusement plus difficile cet ajustement.

Une correction additionnelle de la fréquence du faisceau avait été mise en place en 2014 : un modulateur acousto-optique (AOM), monté en double passage à la sortie du laser, était alimenté par un signal modulé en fréquence par les composantes rapides du signal d'erreur PDH, qui se trouvaient ainsi répliquées sur la fréquence du faisceau [GALTIER 2014a – §3.1.2]. Cependant, l'intensité du faisceau laser détériorait avec le temps le cristal de l'AOM, restreignant la puissance disponible pour le doublage de fréquence. Par ailleurs, ce montage ne paraissait pas réduire de façon sensible la largeur spectrale du laser *Verdi*, si bien que nous avons cessé de l'utiliser.

Cette largeur spectrale constitue une importante limite à la réduction de l'incertitude de nos mesures. Elle a été estimée en 2013, dans des conditions optimales de fonctionnement du *Verdi*, à environ 50 kHz [GALTIER 2014a, §3.1.2]. Cette estimation a été réalisée en mesurant, au moyen d'un analyseur de spectre doté d'une étroite bande passante de résolution, la largeur à mi-hauteur du battement à 532 nm entre le *Verdi* et le *Prometheus* – l'élargissement dû au second étant négligeable devant celui dû au premier. En 2020, en raison du vieillissement du laser, la largeur du même battement est susceptible d'apparaître plus élevée. Surtout, elle dépend beaucoup du réglage fin de l'asservissement PDH du *Verdi* : il suffit que ce réglage ne soit pas tout à fait optimal pour qu'elle soit augmentée d'un facteur deux, voire trois.

Or le faisceau que produit le *Verdi* est doublé en fréquence avant de contribuer à la génération des photons à 205 nm : à l'échelle des fréquences atomiques, l'élargissement que ce faisceau induit sur les raies de l'hydrogène observées vaut ainsi au moins 200 kHz. Ce n'est pas négligeable, rapporté à la largeur naturelle de la transition, de 1 MHz en fréquence atomique. Par comparaison, la largeur spectrale du *TiSa* est estimée à environ 10 kHz, soit une contribution à hauteur de 20 kHz à la largeur des raies observées. La stabilité à très court terme du *Verdi* est ainsi l'une des principales cause d'élargissement des spectres que nous étudierons au chapitre VII. Pour remédier à ces difficultés, il est prévu qu'une nouvelle source laser étroite soit mise en place, après la fin du présent travail de thèse.

Chapitre VI

Comptage et stabilisation des fréquences laser

Ce chapitre conclut la description de notre dispositif expérimental, abordant l'étalonnage et la mise en œuvre de la mesure des fréquences de nos lasers, et leurs asservissements à long terme. Ces asservissements ont connu une importante évolution au cours du travail de thèse présenté ici, et nous en détaillerons les différentes étapes.

VI.1 Référence de fréquence à 10 MHz

Afin d'assurer la conformité de nos mesures de fréquence avec la définition de l'unité du Système International correspondante – c'est-à-dire le hertz –, l'ensemble de nos synthétiseurs et compteurs sont référencés vis-à-vis de la réalisation française légale de la seconde [DÉCRET DU 6 MARS 2017]. Cette réalisation est assurée par le LNE-SYRTE, à l'Observatoire de Paris [ROVERA 2016]. Un maser à hydrogène y produit un signal stable et ininterrompu à environ 100 MHz. Sa fréquence est mesurée à intervalles réguliers grâce à quatre fontaines atomiques¹, et le résultat de cette mesure est utilisé pour décaler à 100 MHz précisément la fréquence d'une partie du signal du maser.

L'intensité d'une diode laser à 1,3 μm est alors modulée à la fréquence obtenue, et transmise par une fibre optique jusqu'à notre salle d'expérience, située à 3 km de l'Observatoire de Paris. Cette fibre, dédiée, a été mise en place au milieu des années 1990 [DE BEAUVOIR 1998]; elle fait maintenant partie du réseau de transfert de fréquences d'envergure européenne REFIMEVE+ [XU 2019]. Dans notre laboratoire, le signal à 100 MHz extrait de la fibre est divisé en fréquence par dix, puis utilisé pour asservir en phase un oscillateur à quartz thermostaté (OXCO 8600-3, *Oscilloquartz*). C'est le signal produit par ce dernier, à 10 MHz, que l'on utilise comme référence de fréquence.

VI.2 Peigne de fréquences optiques

Le principal outil dont nous disposons pour déterminer la fréquence des lasers *TiSa* et *Verdi* est un laser à impulsions femtosecondes verrouillé en phase. Le spectre d'un tel laser

1. Cette mesure est effectuée par l'intermédiaire d'un oscillateur cryogénique, plus stable encore à court terme, asservi en phase sur le signal du maser. L'exactitude associée est ainsi de l'ordre de 10^{-16} .

est constitué de pics étroits très régulièrement espacés – on le qualifie pour cette raison de « peigne de fréquences » – dont il est possible de connaître avec précision la position [JONES 2000 ; HOLZWARTH 2000]. Il suffit alors de mesurer, dans le domaine RF, la fréquence du battement de l'une des « dents » de ce peigne avec un laser quelconque pour connaître la fréquence de ce dernier.

Le peigne que nous utilisons est un modèle *M-Comb* fabriqué par *Menlo*, intégré au sein d'un système de contrôle *FC1500*. Son milieu amplificateur est une fibre dopée à l'erbium, produisant un faisceau dont la fréquence est centrée à 1560 nm. Les propriétés dispersives de la cavité laser sont ajustées au moyen d'un prisme d'insertion variable, pilotable depuis le logiciel de contrôle du peigne.

Son taux de répétition f_{rep} est d'environ 250 MHz. Il peut être contrôlé en mesurant le battement résultant de l'interférence entre dents voisines du peigne. En mixant ce battement avec un signal oscillant à la fréquence du taux de répétition désiré, et en extrayant la composante basse fréquence, on obtient un signal d'erreur que l'on applique alors à une cale PZT contrôlant la longueur de la cavité. Dans notre cas, pour une plus grande précision, c'est la quatrième harmonique du battement entre dents qui, après avoir été décalée en fréquence à environ 20 MHz par mixage avec un signal fixe à 980 MHz, est comparée à la sortie d'un synthétiseur *SMC100A* (*Rhode&Schwartz*). En changeant la fréquence de ce synthétiseur, on peut régler f_{rep} sur une plage de ± 1 MHz.

Le déphasage que subit le faisceau d'une impulsion à l'autre se traduit par le décalage de l'ensemble du spectre du peigne d'une fréquence dite d'*offset*, f_0 . La fréquence de chacune des composantes du spectre du peigne vaut ainsi $f_0 + N \times f_{rep}$, avec $N \in \mathbb{N}$. Cette fréquence d'offset peut être mesurée en faisant battre le peigne avec lui-même, après l'avoir doublé en fréquence au travers d'un cristal de PPLN (Periodically Poled Lithium Niobate). Ce battement permet d'asservir la valeur de f_0 à 20 MHz précisément, relativement au signal de référence à 10 MHz doublé en fréquence : battement et référence sont pour cela analysés par un comparateur de phase digital, dont la sortie est utilisée pour corriger la puissance de pompage du milieu amplificateur.

VI.3 Battements radiofréquence

VI.3.1 Battement à 895 nm

La sortie doublée du peigne, centrée à 780 nm, est utilisée pour mesurer la fréquence du laser *TiSa* (figure VI.1). Pour cela, des composantes à 895 nm sont générées au travers d'une fibre à cristal photonique (PCF) à partir du spectre de cette sortie. En réglant finement la polarisation et la direction du faisceau injecté dans cette fibre, longue de 5 cm, on peut en effet modifier la répartition de l'amplitude des différentes dents du peigne sur une plage de quelques centaines de nanomètres.

Le diamètre du faisceau issu du *TiSa* est ajusté au moyen d'un télescope pour maximiser son recouvrement avec celui issu de la PCF ; une lame demi-onde permet de faire coïncider leurs polarisations, toutes deux linéaires. Les deux faisceaux sont ensuite superposés sur une lame semi-transparente, et dirigés sur une photodiode rapide. En amont de la photodiode, un réseau de diffraction suivi d'un diaphragme permet de filtrer spatialement le spectre issu de la PCF, et d'ainsi réduire le bruit induit par les modes du peigne qui se trouvent à d'autres longueurs d'ondes. La photodiode est polarisée à environ 200 V par un amplificateur

à tubes stable. Elle délivre un signal RF, que l'on filtre grossièrement pour isoler des autres le battement qui nous intéresse, avant de l'amplifier à environ 0 dBm. Le battement est à ce stade mixé avec le signal, doublé en fréquence, du générateur qui alimente aussi l'AOM de balayage du *TiSa* (cf. V.3.2). Cela permet de compenser le décalage produit par le double passage dans l'AOM et donc de compter une fréquence fixe, ce qui facilite le filtrage d'éventuelles perturbations. Le rapport signal-sur-bruit obtenu, mesuré au moyen d'un analyseur de spectre avec une bande passante de 1 MHz, vaut entre 20 et 25 dB.

VI.3.2 Battement à 532 nm

L'élargissement du spectre engendré par la PCF ne permet malheureusement pas d'obtenir une puissance suffisante du peigne à 532 nm pour pouvoir observer directement son battement avec le laser *Verdi*. Nous employons donc un laser « intermédiaire », un modèle *Prometheus* (*Coherent*)², produisant un faisceau à 1064 nm et doublant également ce faisceau en fréquence. En mesurant à la fois la fréquence du battement du faisceau non doublé avec le peigne, et celle du faisceau doublé avec le *Verdi*, on parvient à déterminer la fréquence de ce dernier³.

La sortie non doublée du peigne passe par un module d'amplification par fibre dopée à l'erbium (EDFA), dont les réglages permettent de concentrer la puissance du faisceau impulsif autour de la longueur d'onde de 1064 nm. Le battement est obtenu de la même manière qu'à 895 nm, à ceci près que la superposition des faisceaux est réalisée dans un coupleur de fibre. On peut réduire le bruit qui affecte le battement à 1064 nm en le mixant avec le signal du battement d'offset du peigne. En effet, une large part de ce bruit est due à des fluctuations de l'asservissement de f_0 , que la soustraction de fréquence par mixage permet de compenser. Le battement résultant présente un rapport signal-sur-bruit allant de 20 à 25 dB (pour une bande passante d'analyse de 1 MHz).

Le battement à 532 nm est, lui, plus simple à obtenir : effectué entre deux lasers continus, il n'est pas limité par la faible puissance d'une unique dent du peigne. Il présente ainsi, toujours pour une bande passante d'analyse de 1 MHz, un rapport signal-sur-bruit supérieur à 50 dB. La superposition des faisceaux est réalisée dans un coupleur de fibres et détectée par une photodiode rapide polarisée sous une tension stable de 12 V, que génère une batterie au plomb.

Le laser *Prometheus* est naturellement spectralement très étroit, de l'ordre du kilohertz, il n'est donc pas nécessaire de l'asservir à court terme. On le stabilise en revanche à long terme, sur une cavité Fabry-Perot ultrastable (figure VI.1). Pour cela, une fraction du faisceau à 532 nm est modulée en intensité au moyen d'un AOM, et l'intensité transmise par la cavité est analysée par détection synchrone [FLEURBAEY 2017a, § 2.3.3].

VI.4 Comptage de fréquence

Le taux de répétition du peigne et la fréquence du *Prometheus* peuvent être réglés de sorte que les battements à 895, 1064 et 532 nm aient tous une fréquence comprise entre quelques dizaines et quelques centaines de mégahertz. Depuis 2018, nous mesurons ces fréquences

2. Nous remercions Ouali Acef, au LNE-SYRTE, pour le prêt de ce laser.

3. Notons qu'un faisceau à 1064 nm est présent à l'intérieur de la cavité du *Verdi*, avant d'être doublé à 532 nm ; il ne nous est malheureusement, par construction, pas accessible depuis l'extérieur du laser.

au moyen de compteurs *K53230A* (*Keysight*). Utilisés en configuration Λ^4 , ils présentent une résolution pouvant atteindre 10^{-12} sur un temps de porte de 1 s; leur exactitude est déterminée par le signal de référence à 10 MHz.

Chaque battement entrant dans un compteur de fréquence est en permanence visualisé sur un analyseur de spectre. Cela permet de s'assurer de ne pas compter accidentellement, par exemple, les pics parasites susceptibles d'être générés au cours des différentes étapes de mixage et les harmoniques potentiellement présents en sortie des amplificateurs RF; la position des flancs des filtres qui servent à discriminer ces pics parasites; ou encore les signaux rayonnés par les amplificateurs et coupleurs RF employés à proximité et à des fréquences différentes. Précisons que les câbles utilisés dans l'ensemble du montage sont des câbles coaxiaux, les fréquences transmises ne dépassant pas quelques centaines de mégahertz. L'impédance d'entrée des compteurs est elle-même de $50\ \Omega$; l'amplitude pic à pic des signaux traités est ajustée pour se trouver typiquement entre 0,5 et 1 V.

VI.4.1 Synchronisation des mesures

Afin de garantir que les fréquences des lasers *TiSa* et *Verdi* sont comptées simultanément, et en coïncidence avec la mesure de la fluorescence des atomes d'hydrogène, tous les compteurs *K53230A* de l'expérience sont déclenchés par un signal commun. Il s'agit du front montant d'un créneau TTL, généré par la carte numérique déjà présentée section V.1.3, et distribué par des câbles coaxiaux de longueur identique. Il initie l'ouverture d'une porte de comptage, dont la durée est arrêtée par l'horloge interne de chaque compteur, référencée comme on l'a vu sur le signal à 10 MHz.

Les données produites par chaque compteur sont ensuite récupérées par protocole ethernet, au travers d'un réseau local. Remplaçant l'ancien système de transmission par protocole GPIB, ce réseau, filaire, a été largement étendu en 2019 pour inclure les deux salles occupées par notre expérience et relier entre eux l'ensemble des ordinateurs et instruments susceptibles de s'y connecter, avec un débit de 1 Gbps.

VI.4.2 Générateurs de suivi

En raison du relativement faible rapport signal-sur-bruit des battements à 895 et 1064 nm, le comptage de leur fréquence est susceptible d'être sous-estimé, certains cycles d'oscillation risquant de ne pas être comptabilisés. Pour s'assurer que ce n'est pas le cas, un dispositif de mesure redondant est mis en place. Il consiste à asservir en phase avec le battement un oscillateur commandé en tension (VCO), et à compter la fréquence de ce dernier, qui offre un bien meilleur rapport signal-sur-bruit. L'asservissement est simplement obtenu en mixant les deux signaux, du battement et du VCO, et en retenant comme signal d'erreur la composante à basse fréquence du résultat, traitée ensuite par un montage intégrateur (figure VI.1).

Il était auparavant nécessaire, chaque fois que cet asservissement décrochait, de se rendre dans la pièce où se trouvent les compteurs et de le réinitialiser manuellement. Pour l'éviter, un système de réasservissement automatique a été développé en 2019. Sur une proposition de

4. Les compteurs de type Λ subdivisent leur temps de porte en un certain nombre de sections, et calculent la moyenne glissante des fréquences mesurées pour chacune d'elles. Cela revient à réduire le poids statistique du comptage des périodes d'oscillation situées au début et à la fin du temps de porte, où des erreurs de déclenchement sont susceptibles d'être commises. La résolution s'en trouve améliorée [RUBIOLA 2005; STHAL 2010].

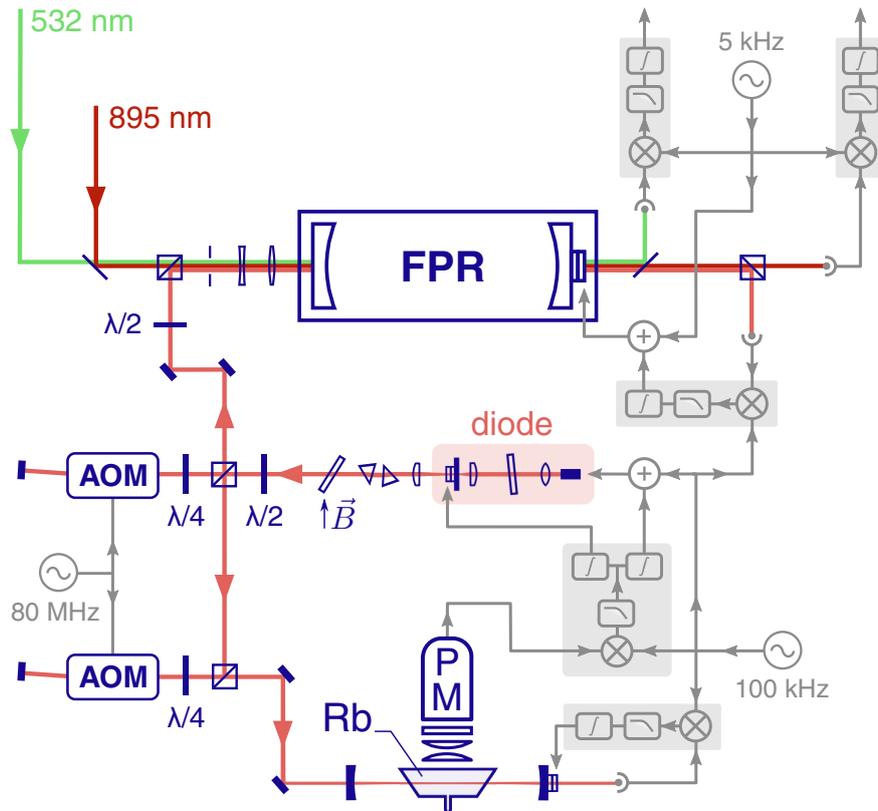


Fig. VI.2 *Système de stabilisation à long terme des lasers, en usage avant 2020. Il permet de produire deux signaux d'erreur corrigeant les variations lentes de la fréquence de deux faisceau lasers, à 532 et 895 nm.*

Pierre Cladé, ce système utilise les entrées et sorties lentes d'une carte *RedPitaya* (voir section VI.7) pour détecter la saturation de l'intégrateur susmentionné, révélatrice du décrochage, et déclencher sa remise à zéro en court-circuitant sa capacité. Cela suffit pour retrouver, en quelques dixièmes de seconde, la plage d'accrochage de l'asservissement. Ce système est opéré en permanence grâce à un script python, exécuté sur le processeur de la carte.

Lors des prises de données, le rapport signal-sur-bruit de l'ensemble des battements est réoptimisé plusieurs fois par jour. La différence entre les fréquences comptées directement et par l'intermédiaire des générateurs de suivi est alors en moyenne de l'ordre de 20 Hz, et systématiquement inférieure à 100 Hz. Cela renforce le crédit que l'on peut accorder à nos mesures de fréquences, qui ne paraissent donc pas constituer un facteur limitant quant à l'incertitude des résultats finaux.

VI.5 Système antérieur de stabilisation

Pour que l'indication des compteurs de fréquence reflète fidèlement l'énergie des photons perçus par les atomes d'hydrogène, il est nécessaire que les fréquences des lasers soient constantes tout au long du temps de porte du comptage. Et il est également indispensable que ces fréquences soient stables à plus long terme : à l'échelle de la durée d'acquisition de

plusieurs spectres de la transition $1S - 3S$, pour pouvoir les moyennner entre eux ; et même à l'échelle de toute une campagne de mesure, pour ne pas avoir à réadapter continuellement la configuration du schéma de comptage. Avant 2020, c'est en utilisant comme référence une transition à deux photons de l'atome de rubidium que cette stabilisation était assurée.

VI.5.1 Étalon de fréquence au rubidium

Construit dans le cadre de la thèse de Béatrice de Beauvoir [DE BEAUVOIR 1996, § 2.1], le dispositif repose plus précisément sur l'excitation de la transition $5S_{1/2, F=3} - 5D_{5/2, F=5}$ de l'isotope 85 du rubidium. Les atomes se trouvent dans une cellule en silice, chauffée aux alentours de 100°C. La cellule est placée au centre d'une cavité Fabry-Perot, dans laquelle se propage un faisceau laser à 778 nm issu d'une diode en cavité étendue. La fréquence de ce faisceau est légèrement modulée, à environ 100 kHz : cela permet d'asservir à résonance la longueur de la cavité, en analysant par détection synchrone l'intensité qu'elle transmet (figure VI.2).

Lorsqu'ils se dés excitent après avoir absorbé deux photons à 778 nm, les atomes émettent un rayonnement de fluorescence à 420 nm, que l'on détecte grâce à un photomultiplicateur. En démodulant à 100 kHz le signal du photomultiplicateur, on génère alors un signal d'erreur permettant d'asservir la fréquence du faisceau à résonance avec la transition. Plus précisément, les composantes à haute fréquence de ce signal d'erreur sont retranscrites sur le courant d'alimentation de la diode laser, tandis que celles à basse fréquence corrigent la longueur de sa cavité étendue.

VI.5.2 Diode laser

Le montage en cavité étendue que nous utilisons a été développé au LNE-SYRTE [BAILLARD 2006]. Il est constitué d'un miroir partiellement réfléchissant monté sur une cale PZT, à 10 cm face à la diode. Celle-ci produit nominalelement un faisceau de 50 mW à 785 nm. Une lentille de grande ouverture numérique collimate le faisceau à la sortie de la diode ; une seconde lentille le focalise sur le miroir afin de limiter l'impact des désalignements éventuels de celui-ci. Un filtre interférentiel, d'inclinaison réglable, permet de sélectionner la longueur d'onde qui se propage dans la cavité. L'ensemble est fixé à l'intérieur d'une enceinte monobloc hermétique, dont la température est régulée par un module à effet Peltier. Quatre autres modules sont également placés au plus près de la diode, pour ajuster finement sa température, et ainsi obtenir un point de fonctionnement stable à la longueur d'onde voulue, relativement éloignée de sa valeur initiale. Avec la diode actuelle, mise en place en 2019, on peut ainsi générer 10 mW d'un faisceau monomode à 778 nm.

En sortie de la cavité étendue, le faisceau est mis en forme par un prisme anamorphoseur. La déstabilisation de la diode laser par rétro-réflexion du faisceau sur un élément optique est évitée à la fois par un rotateur de Faraday et par un modulateur acousto-optique (AOM) monté en double passage. Celui-ci permet également de rapprocher, de 160 MHz, de celle de la transition visée la fréquence du faisceau. Cette dernière peut être mesurée au travers d'un battement avec la sortie doublée, et élargie par la PCF, du peigne de fréquences. Réalisée régulièrement, cette mesure nous permet de contrôler la fiabilité de notre dispositif de détermination des fréquences optiques : la valeur attendue pour la résonance à la transition $5S - 5D$ est en effet bien connue [TOUAHRI 1997], et n'est susceptible de varier à long terme que sous l'effet d'un déplacement lumineux changeant, de quelques kilohertz tout au plus.

VI.5.3 Fabry-Perot de référence

Une fraction du faisceau est ensuite conduite dans une fibre optique à maintien de polarisation avant d'être injectée dans une cavité Fabry-Perot ultrastable, dite *de référence* (FPR). Constituée d'un miroir plan et d'un miroir sphérique séparés de 50 cm par un tube de verre Zerodur, cette cavité présente un intervalle spectral libre de 300 MHz, et une finesse de 30 environ. Le revêtement d'argent des miroirs les rend réfléchissants pour une large gamme de longueurs d'onde. L'ensemble est suspendu à l'intérieur d'une massive enceinte de laiton, maintenue sous vide par une pompe ionique. La longueur de la cavité est ajustée grâce à une cale PZT soutenant l'un de ses miroirs ; elle est asservie par détection synchrone, en démodulant à 100 kHz l'intensité transmise à 778 nm (figure VI.2).

Dans cette même cavité FPR sont enfin injectés deux faisceaux à 895 et 532 nm, issus des lasers *TiSa* et *Verdi*. Leurs intensités transmises respectives sont isolées au moyen d'un cube séparateur de polarisation et d'un miroir dichroïque. La longueur du FPR étant par ailleurs modulée à environ 5 kHz, ces intensités transmises fournissent, par détection synchrone, deux signaux d'erreur. Intégrés avec une constante de temps de 1 s, ils permettent de stabiliser la longueur des cavités FPA₈₉₅ et FPA₅₃₂ vis-à-vis desquelles, rappelons-le, le *TiSa* et le *Verdi* sont eux-mêmes asservis. Cette stabilisation se veut lente : la fréquence de coupure des détections synchrones employées est réglée à quelques hertz. À l'échelle de trente secondes, elle permet usuellement de maintenir fixe la fréquence du *TiSa* avec un écart-type d'environ 1,4 kHz ; et celle du *Verdi*, avec un écart-type compris entre 4 et 5 kHz.

VI.6 Évolution du système de stabilisation

VI.6.1 Nécessité d'un balayage plus large des fréquences laser

En 2019, l'étude et l'amélioration du rapport signal-sur-bruit du spectre de la transition $1S - 3S$ (cf. IV.6) se sont accompagnées d'une découverte : une large part de ce qu'on pensait alors être un bruit de fond d'amplitude constante était en fait une contribution très élargie au pic de fluorescence de la transition. Dans le cas du protium, cette contribution est apparue comme près de vingt fois plus étendue que la largeur naturelle $\Gamma_{3S}/2\pi \approx 1$ MHz. Elle était auparavant passée inaperçue, en raison de la faible amplitude de balayage permise par l'AOM qui contrôle la fréquence du laser *TiSa* (V.3.2). En effet, l'efficacité de diffraction de cet AOM, monté en double passage, diminue notablement lorsque sa fréquence de modulation s'écarte typiquement de plus de 1 MHz de la valeur pour laquelle il a été aligné, limitant à ± 4 MHz l'excursion possible, en fréquence atomique.

C'est l'observation d'une corrélation entre le bruit de fond mesuré et la fréquence du faisceau laser qui l'engendrait, qui a permis de suspecter l'existence de cette contribution élargie, et qui a motivé la modélisation présentée section III.7. Pour caractériser cette contribution, et en tenir compte lors de l'ajustement des spectres enregistrés, il fallait que la fréquence du faisceau à 205 nm pût être changée à volonté sur une plage de quelques dizaines de MHz. La solution la plus simple était de faire varier la fréquence du faisceau à 532 nm : le laser *Verdi* est doté d'une large accordabilité, qui est de plus multipliée par deux grâce au doublage à 266 nm.

On l'a vu, cette fréquence dépend de la longueur de la cavité FPA₅₃₂, par le biais de l'asservissement Pound-Drever-Hall du *Verdi* : il nous suffisait donc, en pratique, de chercher

à générer un signal d'erreur permettant d'asservir à une valeur arbitraire la longueur de ce Fabry-Perot, sans que cela ne nécessite une très large bande passante. Il se trouve qu'un système de détection était déjà en place, susceptible d'être exploité pour former un tel signal d'erreur : celui du signal RF du battement à 532 nm, entre le *Verdi* et le *Prometheus*. Pourvu que la fréquence de ce dernier soit fixe, on pouvait alors en principe arriver simplement à nos fins, en comparant à une référence stable la fréquence ou la phase du battement à 532 nm.

VI.6.2 Asservissement analogique en fréquence

Une première tentative a été réalisée, en 2019, au moyen d'un circuit électronique d'asservissement préexistant [NEZ 1993, §IV.2.b]. Dans ce circuit, le signal radiofréquence du battement à 532 nm est traité par deux diviseurs de fréquence successifs, qui le transforment en une suite d'impulsions TTL de durée fixe, espacées de 2560 fois la période du battement. Un filtre passe-bas en évalue ensuite la valeur moyenne, qui est proportionnelle à sa fréquence. Un simple montage soustracteur permet alors de comparer cette valeur moyenne à une tension de référence arbitraire, ce qui fournit après intégration le signal d'erreur désiré.

Le problème de ce circuit est qu'il suffit d'une faible fluctuation de l'une des deux tensions soustraites pour entraîner une forte perturbation relative du signal d'erreur. Nous avons en particulier constaté que les variations de température de notre salle d'expérience, même climatisée, affectaient de manière non négligeable l'impédance des composants du circuit, induisant d'importantes variations de la fréquence du *Verdi* ainsi asservi, à une vitesse de l'ordre du kilohertz par seconde. Une dérive que ni le remplacement des composants critiques par d'autres moins sensibles aux variations de température, ni le perfectionnement de l'isolation thermique du circuit n'ont permis d'enrayer.

VI.6.3 Asservissement numérique en phase

Une deuxième tentative a donc été entreprise, en tirant cette fois parti de la présence d'un comparateur de phase (*DXD200*) inutilisé parmi les équipements dévolus à l'asservissement du peigne femtoseconde. Ce comparateur génère une tension proportionnelle au déphasage, modulo 64π , qui sépare deux signaux sinusoïdaux, pourvu que leurs fréquences soient toutes deux proches de 20 MHz. Le battements à 532 nm, préalablement divisé en fréquence par un facteur $N = 15$, constitue l'un de ces signaux, l'autre étant fourni par un synthétiseur. Un intégrateur, en amont de l'amplificateur haute-tension de la cale PZT du FPA₅₃₂, prend en charge la compensation des dérives lentes du système. Très efficace, cet asservissement en phase nous a d'emblée permis de contrôler la fréquence moyenne du battement à 532 nm à quelques dizaines de hertz près sur un temps de comptage de 30 s, soit une amélioration de deux ordres de grandeur par rapport au système de stabilisation antérieur. En changeant la fréquence du synthétiseur, on peut facilement et fidèlement balayer celle du *Verdi*.

L'intérêt de la division de fréquence, assurée elle aussi par un module inutilisé de l'électronique d'asservissement du peigne (*FDT1G*), est de réduire l'impact des sauts de phase du laser que l'on cherche à stabiliser. En effet, une progression $\Delta\phi$ de la phase du battement à 532 nm entraîne une correction proportionnelle à $\Delta\phi [N \times 64\pi]$: pour peu que $\Delta\phi$ soit supérieur à $N \times 64\pi$, la rétroaction n'est plus linéaire, et l'asservissement décroche. Nous avons donc intérêt à choisir N le plus grand possible ; une valeur trop élevée réduit cependant la réactivité de l'asservissement, puisqu'il s'écoule au minimum N périodes d'oscillations entre la détection d'une perturbation et sa correction.

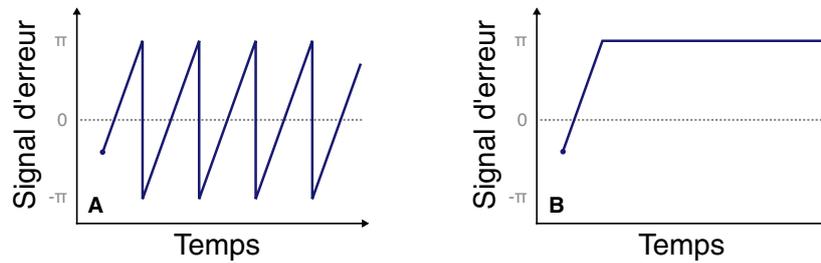


Fig. VI.3 Évolution au cours du temps du signal d'erreur en boucle ouverte produit par un comparateur de phase sans saturation (A) et avec saturation (B), mesurant le déphasage entre deux signaux de fréquences différentes et constantes. Dans le premier cas, le signal d'erreur varie rapidement entre, dans cet exemple, $-\pi$ et π : une fois cumulé par l'intégrateur, sa valeur est nulle, et le désasservissement perdure. Dans le second cas, le signal d'erreur, ensuite intégré, ramène toujours le système asservi vers son point de consigne, même lorsque le déphasage est important.

VI.6.4 Asservissement en phase avec saturation

Malgré nos efforts d'optimisation de la valeur de ce facteur N , ainsi que de la constante de temps de l'intégrateur, pour limiter l'excursion du signal d'erreur au-delà de sa plage de linéarité, les décrochages restaient fréquents. Typiquement, le moindre claquement de porte dans le couloir de notre salle d'expérience, déviant momentanément la fréquence du *Prometheus*, peut suffire pour accumuler un écart de phase excessif entre le signal du synthétiseur et celui du battement. Pour pallier cette difficulté, nous avons donc imaginé disposer d'un comparateur de phase saturant lorsque le déphasage qu'il mesure atteint $-\pi$ ou π : ainsi, une fois à saturation, le signal d'erreur peut être cumulé par l'intégrateur jusqu'à ce qu'il suffise à ramener à la valeur souhaitée la fréquence du *Verdi* (figure VI.3).

Avec semblable dispositif, la plupart des cas de désasservissement ne sont que temporaires, il n'y a plus besoin d'interrompre toutes les mesures en cours pour replacer à la main le système dans son étroite plage d'accrochage – et pour réasservir de surcroît toutes les cavités résonantes avec un faisceau issu du *Verdi*. Une troisième tentative a donc été réalisée en programmant nous-mêmes un tel comparateur de phase sur une carte *RedPitaya*, au moyen de la librairie *Odéon*, que nous présenterons plus en détail à la section suivante.

VI.6.5 Asservissement numérique en fréquence

Un autre problème a toutefois requis encore l'amélioration de notre système : très réactif, l'asservissement en phase répercute sur la fréquence du *Verdi* toutes les fluctuations de celle du *Prometheus*. Or, si le *Prometheus* est intrinsèquement stable à court terme, et s'il est asservi à long terme par détection synchrone sur une cavité ultrastable, il existe une échelle de temps intermédiaire où sa fréquence varie. Des variations, nulles en moyenne, que ni la trop grande largeur (quelques mégahertz) du pic de transition de la cavité ultrastable servant à l'asservissement, ni la trop grande constante de temps (quelques dixièmes de seconde) de la détection synchrone, ne permettent de contrôler. Recopiées sur la fréquence du *Verdi*, elles se traduisent sur le spectre de la transition $1S - 3S$ par un surélargissement de plusieurs centaines de kilohertz.

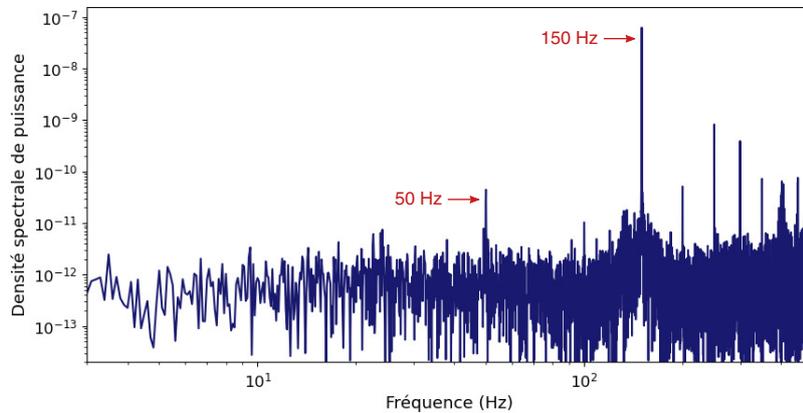


Fig. VI.4 Densité spectrale de puissance (normalisée) de la mesure de la fréquence du battement à 778 nm entre la diode laser asservie sur la transition $5S - 5D$ du rubidium, et la sortie doublée du peigne. La mesure a été réalisée sans temps mort, durant 10 s et avec un temps de porte de 1 ms. Les mêmes pics sont visibles sur la densité spectrale de puissance des battements que forme le peigne à 895 et 1064 nm avec le *TiSa* et le *Prometheus*, que ces derniers soient stabilisés vis-à-vis de la transition du rubidium ou d'une cavité ultrastable laissée libre.

On peut souhaiter, pour éviter cela, n'asservir le *Verdi* que sur la fréquence moyenne du *Prometheus*, en appliquant au signal d'erreur un filtre passe-bas. Ce traitement rend malheureusement l'asservissement en phase instable; mais il est en revanche possible de filtrer ainsi le signal d'erreur d'un asservissement en fréquence. Ce sera l'objet de notre quatrième, et dernière, tentative. La comparaison de fréquences se fait encore une fois entre le battement à 532 nm et le signal d'un synthétiseur, grâce à une simple modification de l'algorithme que nous avons mis au point sur la carte *RedPitaya* (section VI.7). La fréquence du battement stabilisé présente alors un écart-type, sur 30 s de comptage, de l'ordre de la centaine de hertz, ce qui pour notre usage est plus que suffisant.

VI.6.6 Asservissement des lasers sur le peigne de fréquence

Ces outils développés, il est apparu intéressant de nous en servir également pour asservir le *TiSa* et le *Prometheus* au travers des battements qu'ils forment avec un autre laser – le peigne de fréquences. De nombreuses configurations ont été essayées : asservissement en phase ou en fréquence, différentes valeurs du facteur N de division de fréquence, de la constante de temps du moyennage du signal d'erreur, etc. Nous nous sommes alors aperçus que la position des dents du peigne était légèrement modulée, à une fréquence de 150 Hz, sans doute en raison d'une atténuation défaillante de la troisième harmonique du courant alternatif alimentant le peigne et son électronique d'asservissement.

L'amplitude de cette modulation est importante, d'environ 400 kHz. Elle apparaît nettement sur la densité spectrale de puissance de la mesure en continu de la fréquence des battements, pourvu que le temps de porte choisi soit assez petit (figure VI.4). Par ailleurs, sa phase dépend de la puissance circulant dans le réseau électrique continental européen

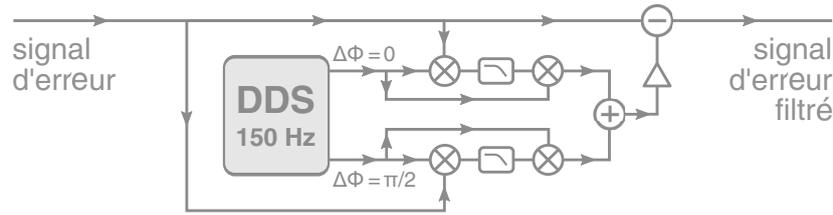


Fig. VI.5 Système de filtrage d’une modulation indésirable à 150 Hz présente au sein d’un signal d’erreur. Son principe est le suivant : on extrait du signal d’erreur, par détection synchrone, l’amplitude de ses deux composantes en quadrature de phase oscillant à 150 Hz ; puis on resynthétise un signal à partir de ces amplitudes, que l’on soustrait au signal d’erreur. Il a été programmé sur une carte RedPitaya en utilisant la librairie Odéon, et en employant un module de synthèse numérique directe (DDS) pour générer le signal interne à 150 Hz.

[ENTSO-E 2020] : elle varie donc au cours du temps. Nous avons tenté de compenser cette modulation, dans le signal d’erreur d’asservissement produit par la *RedPitaya*, en lui additionnant en opposition de phase un signal sinusoïdal à 150 Hz produit par un synthétiseur numérique intégré à la carte. La détermination du déphasage idoine était assurée par l’analyse des quadratures de la modulation à corriger (figure VI.5). Cela n’a cependant pas permis de l’atténuer suffisamment.

Une meilleure solution a consisté, pour le *TiSa*, à simplement mettre en œuvre un asservissement en fréquence entre le battement à 895 nm et le signal d’un synthétiseur, et à en moyennner le signal d’erreur sur une durée bien supérieure à celle de la période de modulation à 150 Hz, avant de l’utiliser pour corriger la position de la cale PZT du FPA₈₉₅. Pour le *Prometheus*, le plus efficace a été d’asservir en phase son battement à 1064 nm avec le signal d’un autre synthétiseur, en rétro-agissant avec une large bande passante sur la cale PZT interne de sa cavité. Il devient alors à son tour modulé à 150 Hz ; mais ce n’est pas gênant, dans la mesure où l’asservissement en fréquence subséquent du *Verdi* procède lui-aussi en moyennnant son signal d’erreur sur une durée suffisamment longue pour annuler l’effet de la modulation.

Dans les deux cas, le signal oscillant stable utilisé comme référence peut être aussi bien produit par un synthétiseur externe (*SMC100A*) que par la carte *RedPitaya* elle-même, selon le degré de stabilité désiré. Comme pour l’asservissement du *Verdi*, notons encore que dans les deux cas, des circuits intégrateurs prennent en charge la génération de la composante continue du signal d’erreur. L’organisation globale de ce nouveau système de stabilisation est présentée figure VI.6 ; ses performances seront étudiées section VI.8, après avoir introduit le module *RedPitaya* que nous avons conçu.

VI.7 Module d’asservissement RedPitaya

VI.7.1 Carte RedPitaya

La carte *RedPitaya STEMLab 125-14* que nous utilisons est constituée d’un circuit logique programmable cadencé à 125 MHz, auquel sont connectées deux entrées et deux sorties analogiques rapides par l’intermédiaire de convertisseurs analogique–numérique dotés d’une résolution de 14 bits.

Le circuit logique est un réseau de portes programmables in situ (FPGA) *Xilinx Artix-7*, composé de 28 000 cellules logiques. Il est associé, sur la même puce *Xilinx Zynq 7010*, à un processeur *ARM Cortex-A9* sur lequel opère un système d'exploitation *Linux*, permettant d'implémenter la configuration voulue du circuit logique et de piloter les registres mémoire auxquels celui-ci a accès. Pourvue d'une prise RJ45, la carte peut être intégrée au réseau local de nos salles d'expérience. Il est ainsi aisé de faire exécuter à son système d'exploitation toutes sortes de commandes depuis un ordinateur distant, via le protocole ssh par exemple.

La fréquence maximale transmissible par les entrées et sorties rapides de la carte, suivant le théorème d'échantillonnage, est limitée à une cinquantaine de mégahertz. Par ailleurs, les retards de propagation induits par les étapes de conversion analogique–numérique en entrée et en sortie de la carte, de l'ordre d'une vingtaine de cycles d'horloge, limitent sa bande passante à quelques mégahertz dans le cadre d'une utilisation au sein d'une boucle d'asservissement.

Le signal d'horloge du circuit à 125 MHz est fourni par un oscillateur à quartz interne (série BF, *TXC Corp.*). Il présente une stabilité nominale à long terme de 50 ppm. On peut lui substituer un signal à 125 MHz généré par la carte à partir d'une référence externe à 10 MHz, ce qui permet de lui conférer une stabilité allant de 10^{-12} sur une seconde à 10^{-15} sur une heure [OLAYA 2019]. Nous n'en avons cependant dans notre cas pas eu besoin.

Les tensions admises et produites par les entrées et sorties rapides de la carte sont comprises entre -1 et 1 V. En pratique, on peut considérer qu'elles sont encodées avec une résolution effective de 13 bits lorsqu'elles sont manipulées par le circuit logique [NEUHAUS 2016, § 6.2.1]. Quatre entrées (0 – 3,3 V) et quatre sorties (0 – 1,8 V) analogiques lentes, échantillonnées à une fréquence de 100 kHz et numérisées avec une moindre résolution, sont également accessibles au circuit logique. Des ports GPIO complètent la connectivité de l'appareil.

Nous disposons sur l'ensemble de notre expérience de six cartes *RedPitaya*. Quatre d'entre elles sont logées dans des boîtiers protecteurs au format 6U conçus par Pierre Cladé, permettant de réguler leur alimentation et de connecter des câbles coaxiaux à chacune de leurs entrées et sorties. Deux autres, mobiles, sont réservées en cas de panne d'un instrument (synthétiseur, détection synchrone, intégrateur, oscilloscope, analyseur de spectre, etc.) pour pouvoir s'y substituer rapidement le temps de sa réparation. Notons que la sensibilité au bruit des *RedPitaya* peut varier d'un exemplaire à l'autre : sur les sept cartes que nous avons eu l'occasion d'essayer, cinq fournissaient un signal de sortie d'une grande stabilité, tandis que deux présentaient des fluctuations incompatibles avec leur utilisation dans une boucle d'asservissement précise.

VI.7.2 Programmation

Plusieurs options existent, pour piloter une carte *RedPitaya*. Un certain nombre de modules génériques ont par exemple été développés par le constructeur : ils sont régulièrement mis à jour, et aisément paramétrables depuis une interface graphique sur navigateur web ; mais ils sont cependant peu adaptés à la spécificité de notre utilisation. D'autres, à l'inverse, ont été spécialement conçus pour permettre l'asservissement en phase de sources laser [TOURIGNY-PLANTE 2018 ; LUDA 2019] mais ils sont alors trop adaptés au contexte expérimental particulier qui a motivé leur conception pour être simples à mettre en œuvre, et le dépôt en ligne de leur code est par ailleurs trop rarement maintenu.

Deux solutions intermédiaires se trouvent heureusement avoir été développées au sein

de notre laboratoire : *PyRPL* et *Odéon*. La première, *PyRPL*, a été conçue dans l'équipe d'opto-mécanique du LKB dans le cadre de la thèse de Léonard Neuhaus [NEUHAUS 2016]. Elle donne accès à de nombreuses fonctionnalités, particulièrement adaptées aux expériences d'optique : modules PID, démodulateurs IQ, filtres IIR, synthétiseurs, etc. Ces modules sont préprogrammés dans la configuration logique de la carte ; on peut les articuler les uns avec les autres et les piloter depuis l'interpréteur python d'un ordinateur distant, au travers d'une librairie dédiée. Une interface graphique facilite ces opérations. Nous l'utilisons couramment sur notre expérience, lorsqu'un appareil électronique tombe en panne, qu'il est possible de remplacer rapidement par une carte *RedPitaya*. Malheureusement, *PyRPL* ne dispose pas déjà d'un comparateur de fréquence ou de phase simple à implémenter, a fortiori avec saturation, et la programmation d'un nouveau module requiert une substantielle initiation.

La seconde solution, *Odéon*, a été réalisée par Pierre Cladé, au sein de notre équipe de métrologie. Sa spécificité est de permettre de programmer entièrement en langage python – et de façon relativement simple par rapport aux autres possibilités de programmation existantes – de nouveaux modules exploitant les capacités du FPGA. Par ailleurs, ces modules se pilotent directement depuis le système d'exploitation de la *RedPitaya*, doté pour ce faire d'un interpréteur python : au contraire d'avec *PyRPL*, les cartes programmées avec *Odéon* peuvent donc être autonomes, elles ne nécessitent pas une connexion régulière avec un ordinateur distant.

Odéon utilise la librairie *myhdl* pour décrire, en python, l'algorithme qu'on souhaite voir le FPGA exécuter. Cet algorithme consiste en des opérations basiques effectuées entre un certain nombre de signaux et de registres, qui sont chacun représenté par un nombre entier⁵ codé sur un nombre prédéfini de bits et actualisé à chaque cycle d'horloge. Les signaux peuvent être internes au circuit logique, issus de la conversion analogique → numérique des entrées de la carte, ou envoyés vers le convertisseur numérique → analogique de ses sorties. Les registres, eux, peuvent être lus et modifiés depuis le système d'exploitation de la carte. Les opérations possibles sont l'addition, la soustraction, la multiplication, la division par une puissance de deux, et les opérations bit à bit en général. On peut comparer entre eux signaux comme registres.

Une fois cet algorithme écrit, *Odéon* et *myhdl* permettent de le convertir en un fichier HDL, dans le langage Verilog. Le programme de synthèse *Vivado*, édité par *Xilinx*, transforme alors ce fichier en un *bitfile*, prescrivant la configuration des cellules logiques du FPGA qui permet de réaliser l'algorithme. Nous avons utilisé la version 2018.1 de *Vivado*. Ce *bitfile* est copié sur la carte SD qui sert de support mémoire à la *RedPitaya*, conjointement avec le programme python initial qui décrit l'algorithme. La librairie *Odéon*, préalablement importée dans l'environnement python actif sur la *RedPitaya*, permet alors de charger le *bitfile* pour configurer le FPGA. Parallèlement, un objet python peut être instancié, dont les attributs coïncident avec les registres mémoire du FPGA, permettant de les lire et de les modifier à tout moment.

En pratique, cet objet peut être instancié et manipulé sur l'interpréteur python de la *RedPitaya*, depuis n'importe quel ordinateur distant connecté au même réseau local : directement par ssh à partir d'un interpréteur de commande, ou en utilisant la librairie *RPyC* à partir d'une console python. Plusieurs ordinateurs, potentiellement aussi élémentaires qu'une *Raspberry Pi*, peuvent même s'y connecter simultanément, ce qui simplifie grandement le pilotage

5. Il est également possible de manipuler ces signaux et ces registres, entiers, comme des nombres à virgule flottante, en leur associant un attribut définissant la position de la virgule.

d'une expérience relativement étendue telle que la nôtre.

VI.7.3 Comparateur de phase et de fréquence

Il existe une large variété de méthodes permettant de déterminer quel déphasage sépare deux signaux de fréquence proche. La plus élémentaire, déjà mentionnée section VI.4.2, consiste à simplement mixer les signaux, et à ne retenir du produit que sa composante basse fréquence ; mais cela ne fonctionne que pour de petits déphasages. La sortie moyennée d'une porte XOR (ou exclusif) appliquée aux deux signaux fournit également une indication exploitable [TRAN-TIEN 1979, § 8]. Une autre solution courante, qui est celle employée section VI.6.3, procède en moyennant la valeur d'un compteur, incrémenté d'une unité à chaque front montant de l'un des deux signaux et décrémenté d'autant à chaque front montant de l'autre. Enfin, la détermination des quadratures de l'un des signaux par rapport à l'autre, telle qu'évoquée section VI.6.6, permet de remonter au déphasage qui les sépare, en calculant l'équivalent de l'arctangente de leur ratio par un algorithme de type CORDIC [KUMM 2010 ; SINCLAIR 2015].

C'est cependant une tout autre méthode que nous avons choisi de mettre en œuvre, plus simple, présentant une plus large plage de fonctionnement, et permettant de comparer sélectivement la phase ou la fréquence des signaux considérés. Son principe est le suivant : on mesure, en unités de cycle d'horloge, la durée de N périodes du signal à asservir, et on soustrait à cette durée une valeur de consigne. Le résultat est alors accumulé, c'est-à-dire intégré, pour obtenir un asservissement en phase ; ou il ne l'est pas, pour obtenir un asservissement en fréquence. Si le signal obtenu dépasse un seuil prédéfini (positif et négatif), la valeur de ce seuil lui est substituée. Il est enfin moyenné par un filtre passe-bas de fréquence de coupure f_c , pour lisser les potentielles erreurs de comptage des périodes du signal, puis multiplié par un facteur de gain réglable. Ce gain peut être positif ou négatif, pour déterminer le sens de la rétroaction. L'annexe C présente cet algorithme sous la forme d'un pseudo-code.

La valeur de consigne peut être un paramètre constant prédéfini : la stabilité à long terme du système ainsi asservi est alors celle de la fréquence d'horloge de la *RedPitaya*. Mais cette valeur peut aussi être évaluée en continu, comme étant la durée en unités de cycle d'horloge de N oscillations d'un signal externe, branché sur la seconde entrée rapide de la carte. La fréquence maximale que l'on peut donner pour consigne est limitée par le taux d'échantillonnage de la *RedPitaya*, pour éviter les effets de repliement du spectre. Sa valeur minimale est, elle, déterminée par le bruit à basse fréquence de l'électronique de détection utilisée pour produire le signal à asservir. Pour un fonctionnement optimal du module, on ne considérera donc que des signaux oscillant entre 5 et 25 MHz. Un filtre passe-haut et un filtre passe-bas sont ainsi programmés en entrée du module, pour limiter les sources de bruit en dehors de cette gamme de fréquence.

L'identification des périodes d'oscillation du signal se fait en détectant ses changements de signe. Cette détection ne souffre pas de beaucoup d'ambiguïté, étant donnés le taux d'échantillonnage du circuit (125 MHz) et la fréquence du signal à asservir : le signe de celui-ci n'est évalué que huit à dix fois au cours d'une oscillation. L'erreur que la relative faiblesse de ce taux d'échantillonnage induit sur la mesure de la période du signal à asservir peut être compensée par le choix d'une valeur élevée de N (et, dans une certaine mesure, d'une valeur suffisamment faible de la fréquence de coupure de l'étape de moyennage). En pratique, l'asservissement de nos lasers présente un bon compromis entre résolution et réacti-

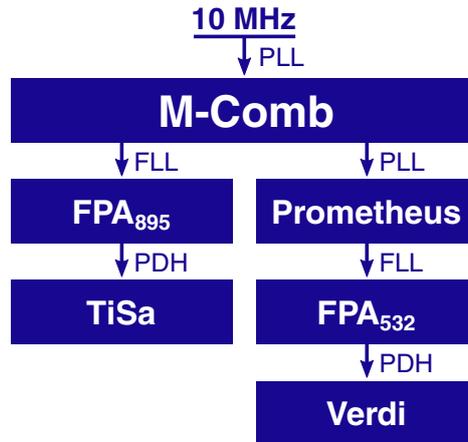


Fig. VI.6 Organisation du système de stabilisation des fréquences laser mis en place en 2020. Il combine asservissements en phase (PLL, Phase Lock Loop) et en fréquence (FLL, Frequency Lock Loop) afin de transférer aux sources lasers la stabilité à long terme de notre référence de fréquence à 10 MHz. Leur stabilité à court terme est assurée via la méthode Pound-Drever-Hall (PDH), détaillée au chapitre précédent.

ité pour $N = 500$. Notons que ce mode de détection permet au comparateur de traiter aussi bien des signaux TTL que sinusoïdaux et, jusqu'à un certain point, de tolérer la présence d'harmoniques.

Le filtre passe-bas qui moyenne le signal avant de l'envoyer vers la sortie de la *RedPitaya* fonctionne comme un intégrateur : il accumule à chaque cycle d'horloge, de période $dt = 1/125$ MHz, la valeur du signal multipliée par $2\pi f_c dt$ – ou plus exactement, divisée par $2^{E(\log_2(1/2\pi f_c dt))}$. Cette accumulation n'est pas infinie : grâce au positionnement en aval de la *RedPitaya* d'un intégrateur analogique, le signal traité par le filtre passe-bas repasse fréquemment à zéro. Ce dernier intégrateur pourrait être également programmé sur la *RedPitaya* ; mais la tension de sortie de la carte est limitée à ± 1 V, tandis que celle fournie par un amplificateur opérationnel peut être avantageusement quinze fois supérieure.

Pour un asservissement lent en fréquence, une valeur de f_c de l'ordre du hertz ou de la dizaine de hertz est idéale ; dans notre cas, pour éviter la modulation à 150 Hz mentionnée plus haut, nous avons utilisé $f_c = 1$ Hz. La bande passante d'un asservissement en phase doit être plus étendue ; nous avons pris, pour l'asservissement du *Prometheus* sur le peigne de fréquences, $f_c = 2$ kHz. Cela reste bien en deçà de la fréquence de résonance, autour de 100 kHz, de l'actionneur piezoélectrique utilisé. Le module est programmé pour que ses différents paramètres (f_c , N , gain final, asservissement en phase ou en fréquence, consigne externe ou interne, et valeur de consigne dans le second cas) soient intuitifs à consulter et à modifier, par l'intermédiaire de descripteurs python, même par de futurs utilisateurs ignorants de son architecture interne.

VI.8 Nouveau système de stabilisation

La mise en place du système de stabilisation exploitant notre nouveau module *RedPitaya* s'est faite pendant notre campagne de mesure consacrée à la transition $1S - 3S$ du deutérium,

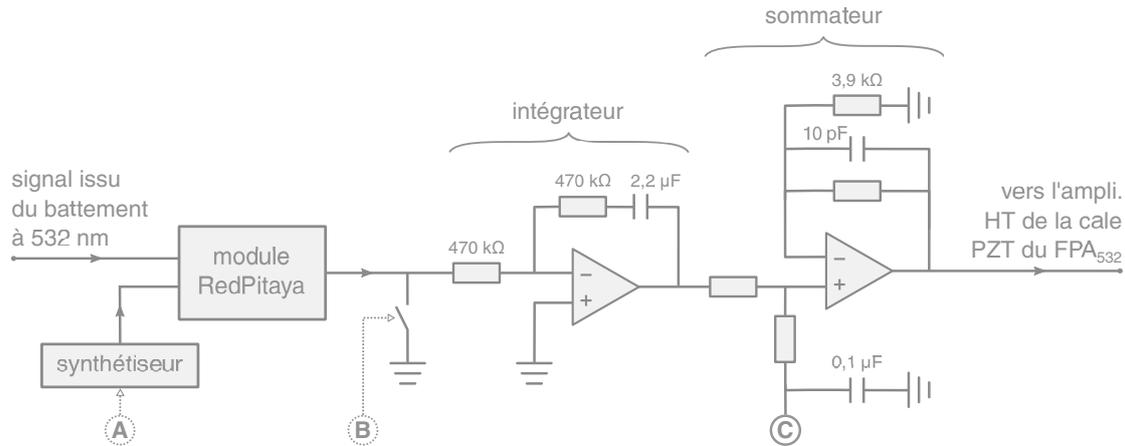


Fig. VI.7 Schéma simplifié du circuit électronique permettant de balayer rapidement et sans à-coups la fréquence du laser Verdi. On rappelle que dans notre nouveau système de stabilisation, le Verdi est asservi sur une cavité FPA_{532} dont la longueur est asservie en comparant la fréquence du battement à 532 nm à celle d'un signal produit par un synthétiseur. Lors d'un changement de consigne de fréquence (A), le signal d'erreur en entrée de l'intégrateur est court-circuité au moyen d'un interrupteur ADG202 commandé par la carte NI-6259 (B) associée à l'ordinateur de pilotage de l'expérience. La tension de sortie de l'intégrateur reste donc constante le temps que la fréquence du synthétiseur varie. En parallèle, une tension continue (C), générée par la carte NI-6259 et sommée avec la sortie de l'intégrateur, est modifiée pour pré-positionner la cale PZT du FPA_{532} à une valeur proche de celle correspondant à la nouvelle consigne. Le court-circuit est alors levé, et l'asservissement réinstauré. La conversion entre fréquence de consigne et tension à appliquer en (C) est obtenue empiriquement. Pour limiter les sources de bruit, des filtres passe-bas de faible constante de temps sont ajoutés au circuit sommateur.

et s'est achevée dans les tout derniers jours de cette campagne. Le temps a manqué pour en parfaire les réglages, aussi les résultats présentés ici ne sont-ils que préliminaires.

VI.8.1 Balayage du laser Verdi

Le système de stabilisation antérieur nous imposait de rechercher une configuration des fréquences des lasers telle que celles-ci coïncidaient avec des pics de résonance de la cavité FPR. Avec le nouveau système, la fréquence des lasers peut être choisie librement, ce qui facilite grandement le passage de la spectroscopie du protium à celle du deutérium, ou encore l'observation de raies déplacées par l'application d'un champ magnétique, par exemple. Une dent du peigne se trouvera en effet toujours à moins de $f_{rep}/2 = 125$ MHz de la fréquence du *TiSa* ou du *Prometheus*, et la fréquence du battement entre les deux pourra toujours être décalée dans la gamme d'entrée de la *RedPitaya* par mixage avec un synthétiseur. Pour ne pas être limité par l'étendue de cette gamme, on peut également intercaler un diviseur de fréquence en amont de la *RedPitaya*, pourvu que le rapport signal-sur-bruit du battement soit suffisant. La fréquence du laser peut alors être balayée sans discontinuité sur une plage de plusieurs dizaines, voire centaines, de mégahertz.

Dans notre cas, la fréquence du battement à 532 nm est ramenée par mixage à environ

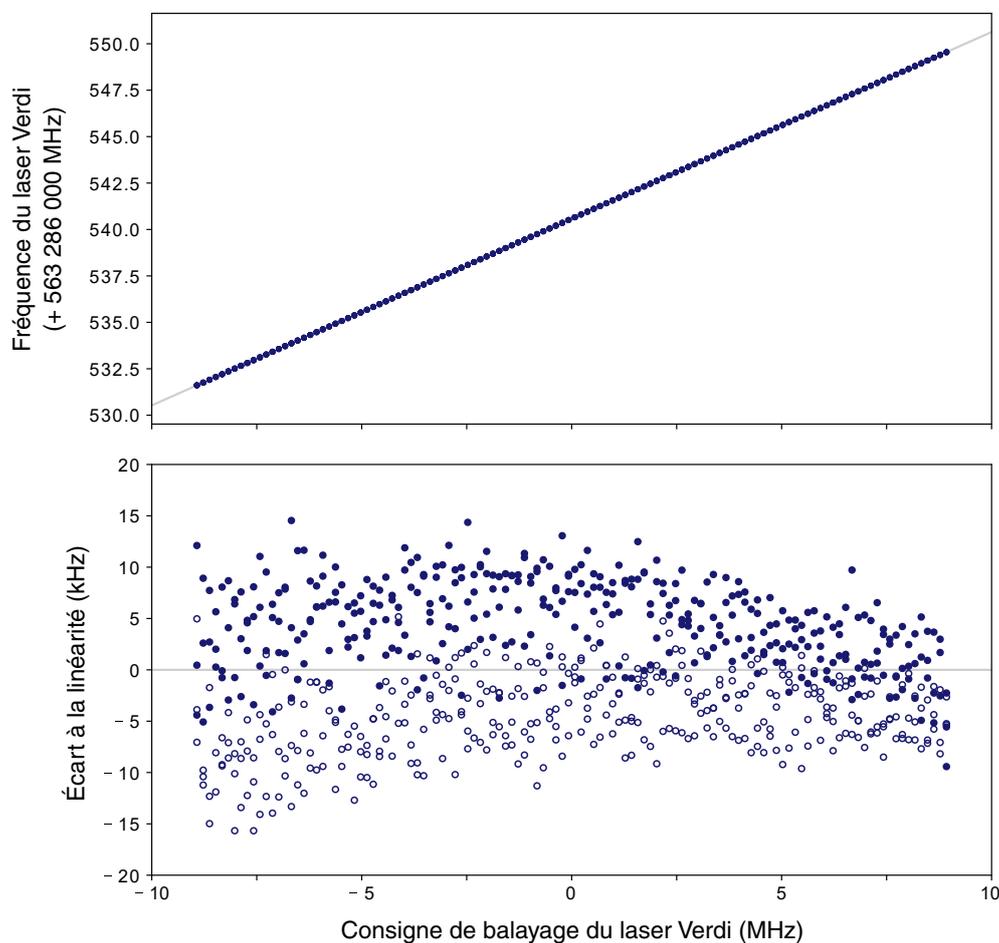


Fig. VI.8 Balayabilité du laser Verdi avec le nouveau système de stabilisation. La séquence de balayage ici représentée est composée de 120 points, chacun correspondant à 1 s de temps d'intégration. Elle est parcourue six fois, alternativement dans un ordre croissant (○) et décroissant (●). En gris, ajustement affine de l'ensemble, par rapport auquel est évalué l'écart à la linéarité. La dispersion des points est représentative d'un jour de mesure où la fréquence du Verdi était particulièrement instable; l'écart-type de l'écart à la linéarité, pour chaque sens de parcours, est de 4 kHz. L'hystérésis qui est ici visible entre les deux sens de balayage est due à un trop faible délai d'attente, de 250 ms, entre le positionnement de la fréquence du laser et l'ouverture de la porte de comptage de sa fréquence : ce délai a été par la suite étendu.

50 MHz, et divisée par trois, avant d'alimenter notre module de comparaison de fréquence. Cela suffit pour scanner la transition $1S - 3S$ du protium sur plus de deux fois la largeur de la contribution élargie par temps de transit que l'on cherche à caractériser. La consigne de l'asservissement est fournie par un synthétiseur dont la fréquence est commandée depuis l'ordinateur de pilotage de l'expérience. La figure VI.8 donne un aperçu des possibilités de balayage obtenues.

La rapidité avec laquelle le changement de fréquence du laser *Verdi* peut être effectué est un enjeu important pour nos mesures, qui doivent être répétées un grand nombre de fois. Pour que cette rapidité ne soit pas limitée par la présence de l'intégrateur placé en aval de la *RedPitaya*, dont la fréquence de coupure est de 1 Hz, nous avons mis en place un circuit électronique, schématisé figure VI.7. Il permet d'interrompre l'asservissement et de pré-régler la longueur de la cavité FPA₅₃₂ au moment d'un changement de consigne. On peut ainsi déplacer la fréquence du laser à volonté en quelques dixièmes de seconde, indépendamment de sa valeur initiale, et sans décrochage de l'asservissement. Cela nous permet de scanner la transition $1S - 3S$ selon une séquence de balayage arbitraire – et en particulier, aléatoire.

VI.8.2 Stabilité de la fréquence du faisceau à 205 nm

Nous l'avons déjà évoqué, notre module *RedPitaya* permet un contrôle plus fin de la fréquence des différents lasers, par rapport au système de stabilisation antérieur. Plus précisément, la fréquence du faisceau somme à 205 nm, calculée à partir des fréquences des battements à 895, 532 et 1064 nm, présentait auparavant un écart-type d'environ 9 à 10 kHz sur 30 s de comptage ; il est désormais compris entre 2 et 3 kHz. Nous contrôlons donc maintenant la fréquence que perçoivent les atomes d'hydrogène à 2×10^{-12} près.

Par ailleurs, le système antérieur était sensible aux variations d'intensité des faisceaux transmis par la cavité FPR. Des variations notamment dues à la distorsion, évoluant au fil du temps, de la polarisation des faisceaux se propageant dans des fibres optiques avant d'être injectées dans le FPR ; ou à la moindre efficacité de diffraction de l'AOM de balayage du *TiSa* lorsqu'il est piloté à une fréquence différente de celle pour laquelle il a été aligné. Dans ce dernier cas, la fréquence effective à laquelle le *TiSa* s'asservissait différait de sa valeur de consigne corrélativement à celle-ci ; le nouveau système a donc également amélioré la linéarité du balayage (figure VI.9).

On peut enfin caractériser l'amélioration de la stabilité à plus ou moins long terme des fréquences lasers, permise par notre nouveau système, au moyen de l'écart-type d'Allan. Il s'agit de la valeur efficace de l'écart entre les valeurs moyennes de plusieurs ensembles successifs de mesures de fréquence, en fonction de la taille de ces ensembles. À l'échelle de plusieurs minutes (figure VI.10) comme d'une fraction de seconde (VI.11), on observe une nette amélioration de la stabilité des lasers par rapport au système antérieur. En particulier, à l'échelle du temps de porte de nos mesures (1 s), c'est un facteur trois à quatre de réduction du bruit qui est observé. Ainsi qu'on pouvait s'y attendre, on remarque que c'est la stabilité du *Verdi* qui limite celle du faisceau somme à 205 nm.

VI.8.3 Amélioration de la disponibilité des lasers

La principale difficulté de notre expérience réside dans le nombre des dispositifs qu'il est nécessaire de faire fonctionner simultanément et de façon optimale pour réaliser chaque

mesure. Cela implique d'abord un lourd travail de maintenance : nos équipements ayant quasiment tous entre dix et quarante ans, les pannes sont fréquentes, et leur identification souvent complexe. Cela requiert aussi un long effort de réalignement et de réoptimisation avant chaque prise de données ; et cela nécessite enfin, pendant les enregistrements, une surveillance globale de l'ensemble des appareils et le réasservissement perpétuel des boucles de contrôle.

À ces égards, l'importante simplification du dispositif expérimental permise par le nouveau système de stabilisation s'avère d'un intérêt crucial. La stabilisation de la diode laser sur la transition du rubidium avait en effet une fâcheuse tendance au désasservissement, d'autant plus inopportune qu'elle se trouvait en amont d'une cascade d'autres asservissements, situés de plus dans des pièces différentes : elle provoquait une interruption régulière des prises de données, préjudiciable à la réduction des incertitudes statistiques. Par ailleurs, le système antérieur comportait une diversité non négligeable d'éléments optiques et électroniques, que l'entropie n'avait pas coutume d'épargner : en se passant d'eux, on réduit la durée de maintenance de l'ensemble de l'expérience, et on diminue donc la probabilité qu'une nouvelle panne survienne pendant ce temps.

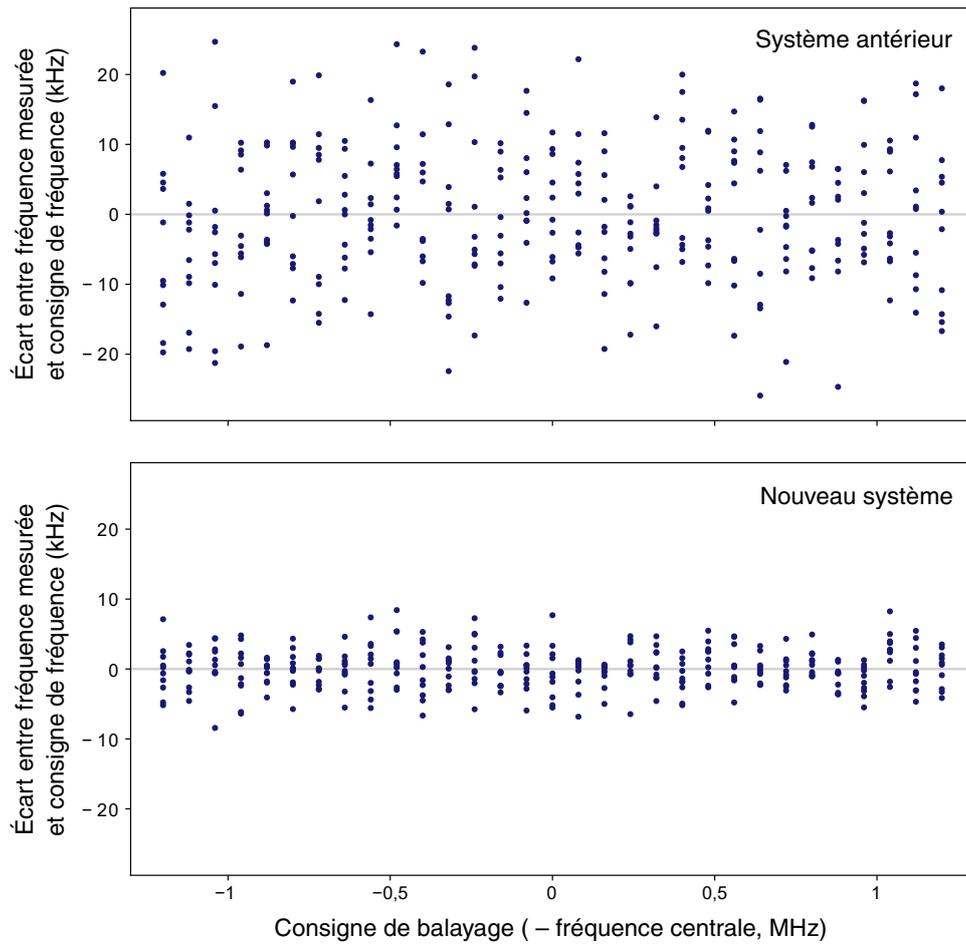


Fig. VI.9 Variabilité de la fréquence du faisceau à 205 nm, le laser TiSa étant balayé et le laser Verdi étant fixe. Chaque point correspond à un temps de mesure de 1 s; le balayage est aléatoire. En haut, avec le système antérieur de stabilisation ($\sigma = 9,1$ kHz); en bas, avec le nouveau système ($\sigma = 2,4$ kHz). On rappelle que $f_{205} = f_{TiSa} + 2 \times f_{Verdi}$.

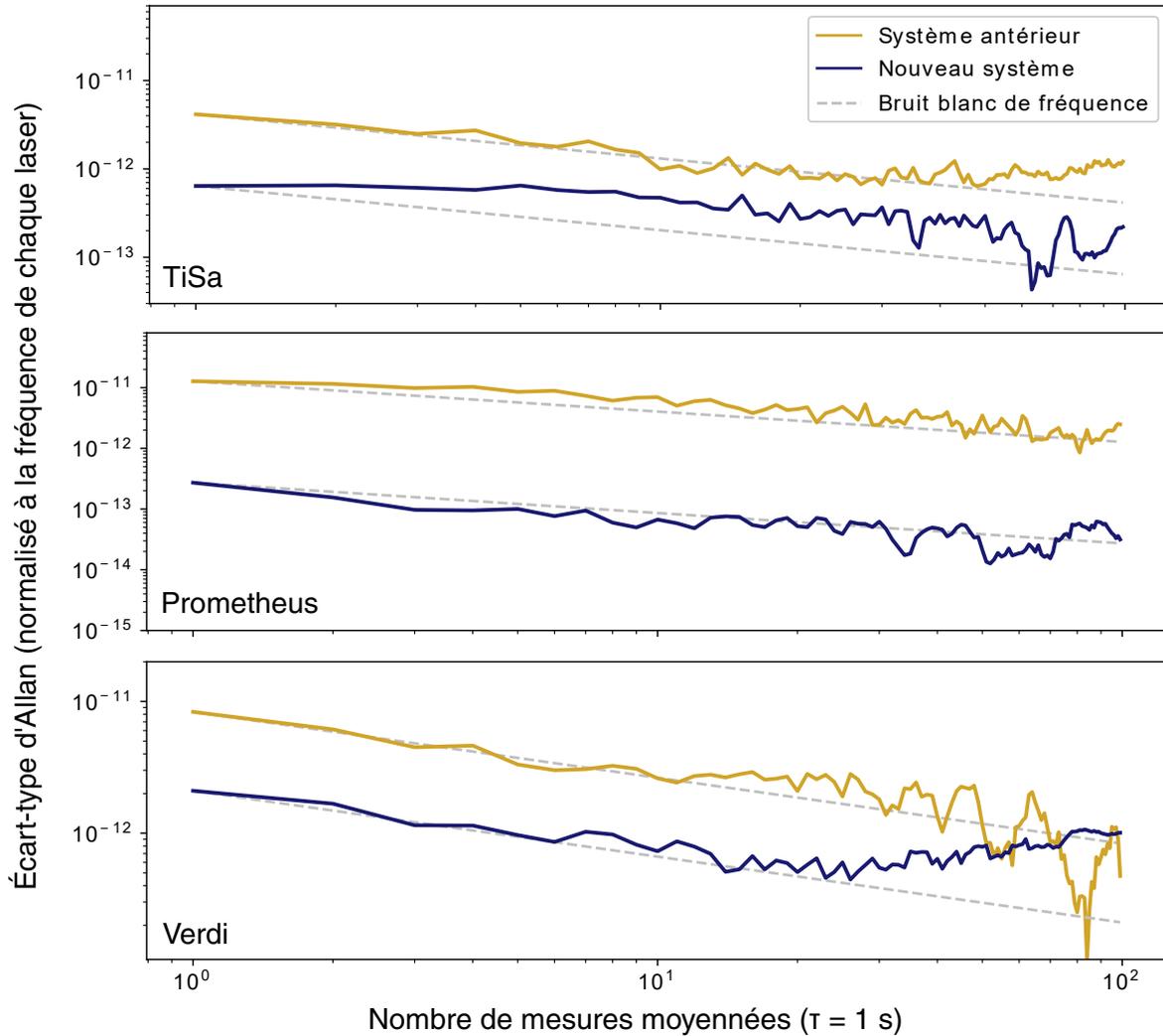


Fig. VI.10 Écart-type d'Allan des fréquences absolues des différents lasers, calculé à partir de 310 mesures effectuées avec un temps de porte de 1 s et espacées d'environ 0,5 s. En pointillés, la tendance attendue à partir de la valeur initiale de l'écart-type : une loi de puissance $-1/2$ caractéristique d'un bruit blanc de fréquence. Pour ce type particulier de bruit, les mesures peuvent ne pas avoir été obtenues sans temps mort, sans entraver pour autant l'estimation de l'écart-type d'Allan [BARNES 1990].

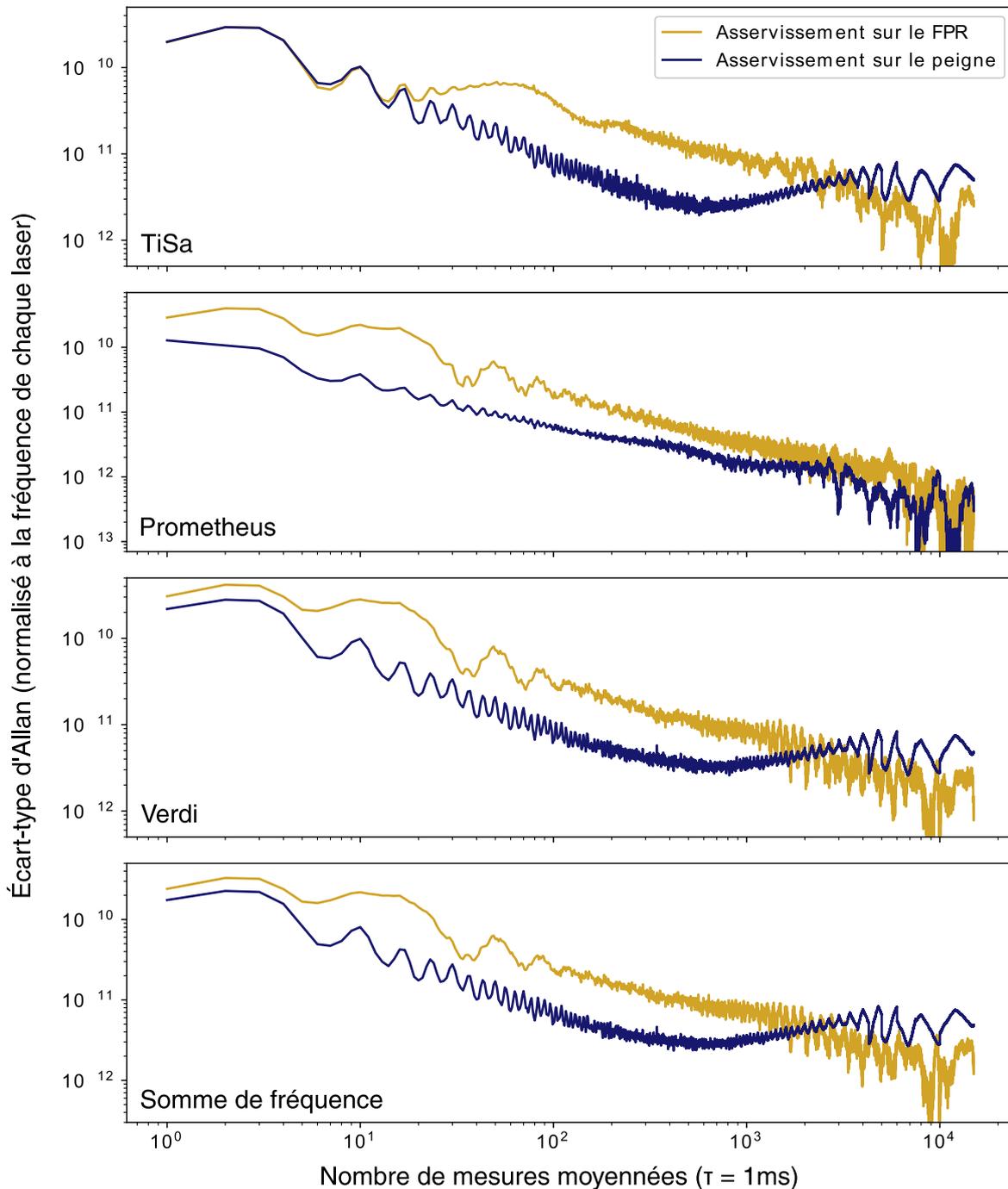


Fig. VI.11 Écart-type d'Allan des fréquences absolues des différents lasers, calculé à partir de 30 000 mesures successives effectuées sans temps-mort et avec un temps de porte de 1 ms. Deux configurations sont présentées ici. Dans la première, la cavité FPA₈₉₅ et le laser Prometheus sont asservis par détection synchrone sur la cavité FPR, et le laser Verdi est asservi en phase au travers de son battement avec le Prometheus. Dans la seconde, le TiSa et Prometheus sont asservis vis-à-vis de leurs battements avec le peigne de fréquence, respectivement en fréquence et en phase, et le Verdi est asservi en fréquence par rapport au Prometheus. La dérive que l'on peut ici observer pour le TiSa et le Verdi, entre 1 et 10 s, est due à une valeur inadéquate du gain de l'asservissement, qui a par la suite été corrigée.

Troisième partie

Comparaison
théorie – expérience

Nous examinerons enfin, dans cette partie, les spectres de la transition $1S-3S$ de l'atome de deutérium que nous avons enregistrés, au moyen du dispositif expérimental présenté partie II. Nous ajusterons ces spectres, en utilisant les résultats théoriques obtenus partie I, et en déduirons une valeur de la fréquence f_{1S-3S} pour le deutérium.

Une étude plus approfondie des effets systématiques qui affectent cette valeur reste encore à accomplir. Le temps nous a notamment manqué pour caractériser en détail l'effet Doppler du second ordre : aussi ces résultats ne peuvent-ils être considérés que comme préliminaires.

C'est donc à titre illustratif que nous entamerons, pour finir, le travail de comparaison évoqué en introduction, vis-à-vis des résultats obtenus par d'autres équipes, sur d'autres transitions et isotopes de l'atome d'hydrogène.

Mentionnons qu'un certain nombre de mesures ont également été réalisées, au cours du présent travail de thèse, concernant la transition $1S-3S$ du *protium*. En particulier, 317 spectres ont été enregistrés à basse température, le jet atomique étant refroidi à environ 120 K (soit 40 % de la température ambiante) par le système cryogénique présenté section IV.3.

La fréquence centrale moyenne de ces spectres apparaît déplacée de +66,8 (5,8) kHz, par rapport à des mesures équivalentes à température ambiante. Cela représente 49 (4) % de l'amplitude de l'effet Doppler du second ordre, tel que déterminé pour le protium dans la référence [FLEURBAEY 2018] : les résultats donnés dans cette référence ne semblent donc pas infirmés par les mesures à basse température. Les spectres correspondants peuvent être consultés à l'annexe E, figure 9.

Nous restreindrons toutefois le champ de ce manuscrit au seul cas du *deutérium*. Nous n'aborderons donc pas davantage dans ce qui suit le sujet de ces mesures. De même, nous n'examinerons pas l'impact potentiel des résultats introduits dans cette partie sur une éventuelle réanalyse des mesures précédemment réalisées dans notre équipe, qui portaient sur le protium.

Chapitre VII

Campagne de mesure

Minimiser l'incertitude statistique sur la détermination de la fréquence de la transition $1S - 3S$ implique d'enregistrer un très grand nombre de fois les mêmes mesures, pour moyenner le bruit des données qu'on ajuste, et moyenner encore les résultats des ajustements. En outre, ces mesures doivent être répétées dans différentes conditions expérimentales, afin de permettre l'évaluation des effets systématiques qui les affectent. Dans notre cas, ces conditions correspondent à différentes valeurs de pression atomique, d'intensité laser ou de champ magnétique, afin de corriger les déplacements collisionnel et lumineux, et l'effet Doppler du second ordre.

C'est ainsi, au total, près d'un demi-million de points de mesure, correspondant chacun à une durée d'intégration de 1 s, que nous avons enregistrés au cours de la campagne de mesure menée à l'automne 2020. Nous verrons dans ce chapitre comment nous avons optimisé et organisé cette campagne : quels enregistrements nous avons choisi de réaliser, avec quel balayage de la fréquence d'excitation, et selon quelle procédure nous les avons traités.

Il s'agit de la troisième campagne de mesure réalisée au Laboratoire Kastler Brossel sur la transition $1S - 3S$ de l'hydrogène, et la première consacrée au deutérium : elle fait suite à celles effectuées en 2013 [GALTIER 2014a] et en 2016 [FLEURBAEY 2017a], sur le protium.

VII.1 Enregistrements de l'automne 2020

Après plusieurs dizaines de mois consacrés à la préparation et à l'optimisation du dispositif expérimental présenté dans la précédente partie de ce manuscrit, il nous est apparu, à l'automne 2020, que les conditions nécessaires à la mesure de la fréquence de la transition $1S - 3S$ du deutérium, avec une incertitude suffisamment faible, étaient enfin réunies. Les prises de données se sont échelonnées du 20 octobre au 17 décembre ; elles ont été réalisées avec le concours de François Nez et de Pauline Yzombard. La figure VII.1 présente le tout premier enregistrement obtenu.

La table VII.1 répertorie les différents jeux de données enregistrés au cours de cette campagne, pour différentes valeurs du champ magnétique transverse Be_z appliqué au jet atomique, et pour différentes valeurs de la pression résiduelle P_f mesurée dans l'enceinte du jet. Nous verrons plus en détail, au cours des paragraphes qui suivent, sous quelle forme ces jeux de données ont été obtenus.

L'acquisition de chacun d'entre eux a duré entre deux et quatre jours, généralement non

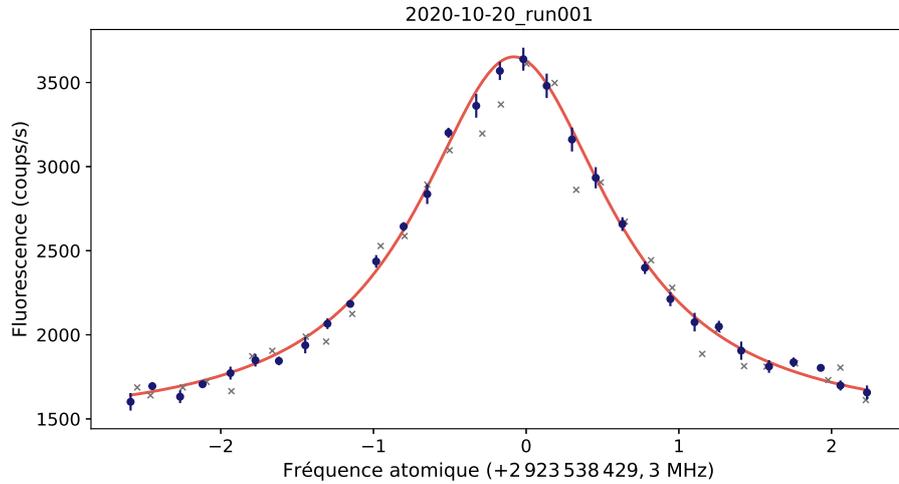


Fig. VII.1 Premier enregistrement de la campagne de mesure de l'automne 2020. Les points bleus correspondent à la moyenne de cinq spectres enregistrés successivement, chacun balayé dans un ordre différent et aléatoire ; chaque point bleu correspond donc à un temps d'intégration de 5×1 s. Les croix représentent le premier de ces spectres. En rouge, ajustement par une fonction lorentzienne. La pression résiduelle P_f est de 4,2 mPa, et le champ magnétique appliqué est nul.

consécutifs. En effet, comme nous l'avons mentionné plus haut, l'enceinte à vide était ouverte une fois par semaine, durant la campagne, afin de nettoyer les miroirs de la cavité à 205 nm. Nous avons donc veillé à répartir les jours de mesure pour équilibrer l'intensité lumineuse perçue par les atomes – nettement plus élevée à la suite d'un nettoyage – à l'échelle de chaque jeu de données. C'est en tirant profit de cette variabilité incontrôlable de l'intensité que nous évaluerons l'effet du déplacement lumineux.

Ces ouvertures hebdomadaires impliquaient un réalignement complet de la cavité à 205 nm : la plupart des jeux de données comportent donc des enregistrements obtenus selon différents alignements du faisceau UV. Cela présente l'avantage, pour nos mesures, d'être peu susceptibles d'être biaisées par un éventuel effet systématique négligé, associé à la forme ou à la position de ce faisceau.

Les jeux de données présentés table VII.1 ont été obtenus en scannant la transition $1S - 3S_{F=3/2, |m_F|=3/2}$ sur une plage de $\pm 2,5$ MHz autour de la résonance, en fréquence atomique. Afin de caractériser la contribution, élargie par temps de transit, du gaz résiduel dans l'enceinte à vide, deux autres jeux de données ont également été enregistrés sur une plage de ± 12 MHz autour de la résonance. Ils correspondent à un champ magnétique de 16,5 et 18,6 mT sous une pression de 4,0 mPa.

VII.2 Calibration du champ magnétique vertical

Les valeurs de B indiquées table VII.1 sont celles de l'induction du champ magnétique perçue en moyenne par les atomes dans leur propre référentiel. Elles sont obtenues en comparant l'intensité I_{bob} alimentant les bobines de champ transverse avec la fréquence des raies

Jeu	B (mT)	P_f (mPa)	Enregistrements	Spectres	$u(f_0)$ (kHz)
a	0,03	4,2	129	1264	1,08
b	2,07	4,3	94	938	1,26
c	-2,01	4,4	100	994	1,33
d	16,48	4,1	96	945	1,96
e	16,59	4,0	33	216	4,82
f	-16,40	4,3	125	1242	1,70
g	18,60	4,5	71	663	1,65
h	-18,58	4,1	132	1309	1,65
i	-2,01	1,8	76	754	1,90
j	-2,01	7,7	111	1109	1,60

Table VII.1 *Récapitulatif des différents jeux de données enregistrés au cours de la campagne de l'automne 2020. L'incertitude statistique $u(f_0)$ correspond à l'incertitude sur la détermination de la fréquence centrale f_0 de chaque jeu, hors correction des effets systématiques.*

$1S - 3S_{F=3/2, m_F=1/2}$, fortement sensibles à l'effet Zeeman.

Les mesures que nous avons réalisées sur le deutérium corroborent la calibration donnée dans la référence [FLEURBAEY 2017a, § 2.5.2] pour le protium : nous obtenons $B = 0,1458 \times I_{bob} - 0,029$ mT, pour une intensité exprimée en ampères. Par convention, le champ vertical B est positif lorsqu'il est dirigé vers le bas. Notons que le nouveau système de stabilisation des fréquences laser facilite l'observation des transitions déplacées par effet Zeeman.

Pour une valeur donnée de I_{bob} , comme détaillé table VII.1, des enregistrements sont systématiquement réalisés aussi bien avec le champ magnétique dirigé vers le haut que vers le bas : cela nous permettrait, le cas échéant, de mettre en évidence un éventuel défaut de notre calibration. Rappelons que les valeurs de $|B|$ choisies, voisines de 18,6 et de 16,5 mT, correspondent respectivement au maximum et au minimum du déplacement induit par effet Stark motionnel (cf. section III.3), qui nous permettra de déterminer la distribution des vitesses atomiques.

VII.3 Compensation du champ magnétique horizontal

Nous l'avons déjà évoqué section IV.4, les alimentations en courant des bobines de compensation du champ magnétique terrestre que nous avons utilisées sont peu stables, d'un jour à l'autre. Pour limiter l'impact d'un potentiel effet systématique associé à cette instabilité, nous avons réoptimisé leurs réglages à quatre reprises durant la campagne de mesure.

Trois jeux de données (c, f et g) ont été enregistrés aussi bien avant qu'après certaines de ces réoptimisations : à chaque fois, la fréquence moyenne obtenue après est compatible à mieux que 1σ avec celle obtenue avant. Cela n'est pas surprenant dans la mesure où, lorsqu'un important champ magnétique vertical est appliqué aux atomes, les petites fluctuations de la compensation du champ terrestre deviennent relativement moins conséquentes.

Notons toutefois que l'une des quatre réoptimisations était défailante, ce dont nous nous sommes aperçus en réouvrant l'enceinte à vide pour un nettoyage des miroirs, après quatre jours de mesures, et en déterminant au moyen d'une sonde à effet Hall le champ régnant dans l'enceinte. L'ensemble des enregistrements obtenus durant ces quatre jours, soit 1310 spectres, a donc été exclu des données présentées table VII.1.

VII.4 Mesures à 2 mT

Les mesures en champ magnétique nul présentent un rapport signal-sur-bruit d'autant plus important que toutes les composantes hyperfines de la transition $1S - 3S_{F=3/2}$ y contribuent simultanément. Nous choisisons cependant, dans le restant de notre analyse, de ne pas nous fonder sur de telles mesures, mais de considérer à la place des enregistrements obtenus sous l'application d'un champ $B \geq 2$ mT.

La raison de ce choix est que, parmi les composantes hyperfines non résolues en champ nul, certaines sont très sensibles à l'effet Zeeman : en présence du moindre champ magnétique parasite, le centre de la raie observée est donc susceptible d'être déplacé notablement (figure VII.2, à gauche). Autour de $B = 0,03$ mT, la dépendance en B du centre de la raie est ainsi de 410 kHz/mT.

Au contraire, sous un champ magnétique B de l'ordre de quelques milliteslas, le centre de la raie dépend peu du champ B (figure VII.2, à droite). En particulier, $B = 3,3$ mT est une valeur suffisante pour que les composantes $1S - 3S_{|m_F|=1/2}$ de la transition, déplacées par effet Zeeman, soient nettement résolues et distantes ; et une valeur assez faible pour que l'anticroisement avec les niveaux $3P_{1/2}$ ne déplace pas encore la fréquence de la transition $1S - 3S_{|m_F|=3/2}$, au travers de l'effet Stark motionnel déjà mentionné.

Lors de la conception de cette idée, les calculs de forme de raie présentés partie I n'étaient pas encore achevés, aussi n'avons nous pas choisi une valeur de 3,3 mais de 2,0 mT. La dépendance en champ magnétique de la position de la raie demeure cependant bien plus faible qu'en champ quasi-nul : elle est de $-0,05$ kHz/mT. La figure VII.3 présente le spectre obtenu, balayé largement, à 2,0 mT : on observe, de part et d'autre de la raie centrale de la transition $1S - 3S_{|m_F|=3/2}$, des raies qui s'en écartent par effet Zeeman, correspondant aux transitions $1S - 3S_{|m_F|=1/2}$.

VII.5 Échantillonnage du balayage

Pour enregistrer, en un temps fini, le plus grand nombre possible de spectres de la transition $1S - 3S$, il nous faut chercher à ne mesurer la fluorescence des atomes que pour un nombre le plus réduit possible de points de fréquence. En outre, plus un spectre est enregistré rapidement, moins les conditions de son acquisition sont susceptibles de varier entre le début et la fin de sa mesure : or, dans notre expérience, la puissance du faisceau laser à 205 nm et l'alignement de la cavité Fabry-Perot résonante avec ce faisceau peuvent certains jours se dégrader avec une durée caractéristique de l'ordre de la minute.

Nous avons donc cherché, préalablement à la campagne de mesure, à minimiser le nombre de points de fréquence selon lesquels échantillonner les spectres – c'est-à-dire selon lesquels balayer les fréquences laser – tout en veillant à ce que cela ne soit pas préjudiciable à l'incertitude sur l'ajustement des spectres, et surtout à ce que cela n'induisse pas d'effet systématique.

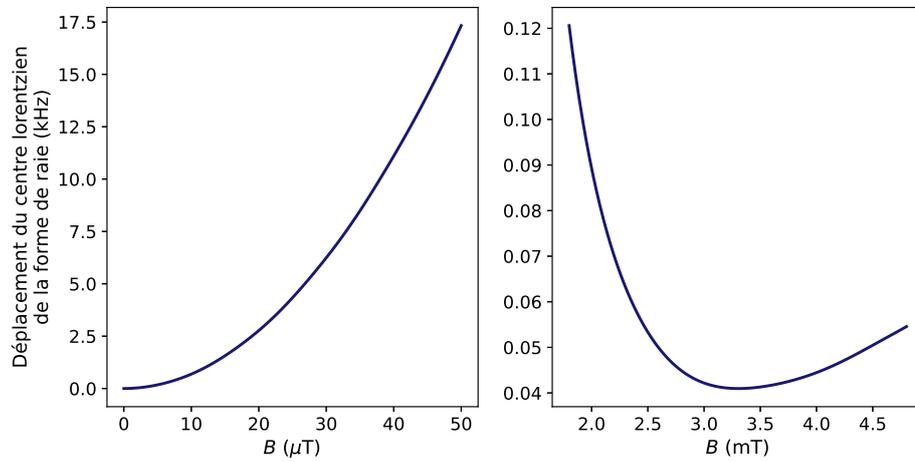


Fig. VII.2 Dépendance en champ magnétique de la position du centre de la raie observée.

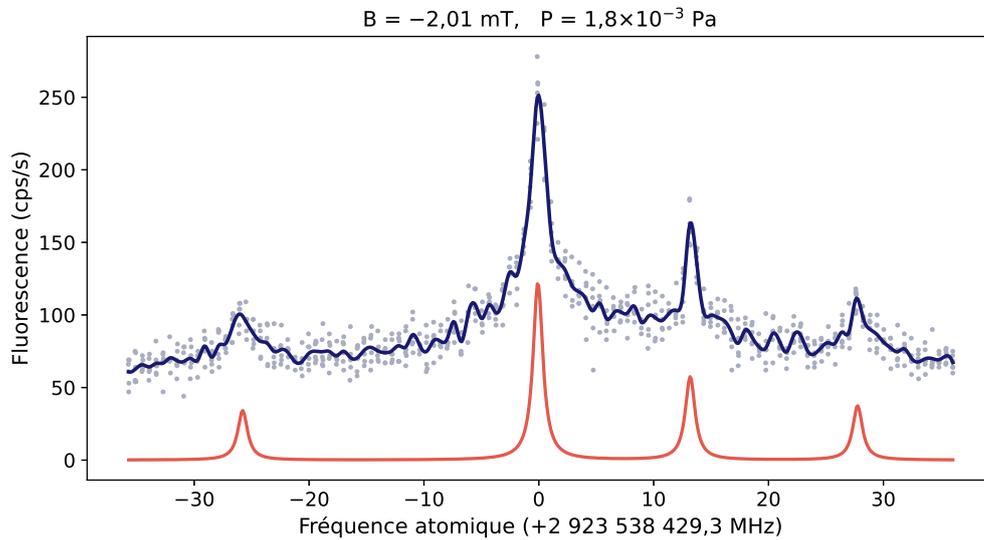


Fig. VII.3 Balayage large de la transition $1S - 3S_{F=3/2}$ du deutérium, sous un champ magnétique vertical de $-2,01$ mT. Chaque point de mesure, en gris, correspond à 1 s de temps d'intégration ; la courbe bleue en est la moyenne. En rouge, courbe théorique $F_{\bar{v}}(2f_L)$ telle que présentée partie I, pour $B = -2,01$ mT, $\bar{v} = 2,1$ km/s, $t = 10$ μ s, $I_L = 7 \times 10^7$ W/m².

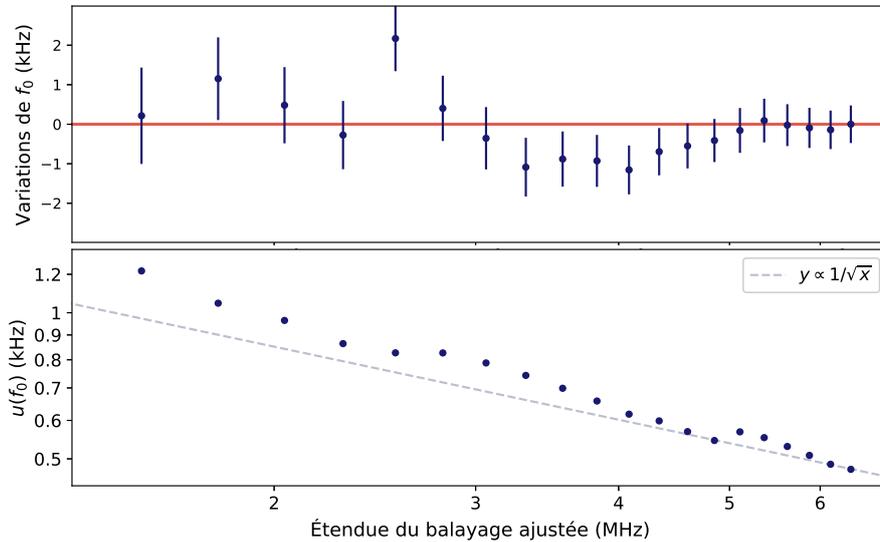


Fig. VII.4 Influence de l'étendue du balayage de la transition $1S - 3S$ sur la fréquence centrale f_0 d'un ajustement lorentzien de la raie obtenue. En bas : évolution de l'incertitude (à 1σ) sur l'ajustement de f_0 . En pointillés : évolution attendue pour un bruit uniforme.

La figure VII.4 présente l'évolution de l'incertitude $u(f_0)$ sur la fréquence centrale f_0 de l'ajustement par une lorentzienne d'un spectre expérimental, en fonction de l'étendue de l'échantillonnage prise en compte dans l'ajustement. On remarque qu'en-deçà d'une étendue de 4 MHz (± 2 MHz autour de la résonance), l'incertitude décroît plus vite que la puissance $-1/2$ du nombre de points de mesure inclus dans l'ajustement : nous avons donc statistiquement intérêt à choisir un balayage plus large que 4 MHz.

On observe également que l'ajustement des pieds de la forme de raie, jusqu'à une largeur de 6,5 MHz en tout cas, contribue suffisamment à la détermination de la fréquence centrale de la raie pour $u(f_0)$ ne décroisse pas plus lentement que la puissance $-1/2$ du nombre de points inclus. Par ailleurs, à partir d'une étendue de typiquement 5 MHz, la valeur de f_0 obtenue ne dépend pas du nombre de points inclus : c'est donc cette valeur, correspondant à un balayage de $\pm 2,5$ MHz autour de la résonance, que nous retiendrons.

À l'intérieur de cette étendue, il peut être tentant de concentrer les points de mesure sur les flancs de la forme de raie, qui traduisent le plus sensiblement la position de son centre. Cela peut toutefois introduire un biais lors de l'ajustement des données. On peut estimer ce biais en simulant numériquement une forme de raie lorentzienne affectée d'un bruit aléatoire gaussien, et en ajustant un échantillonnage non uniforme, concentré sur les flancs, par une fonction lorentzienne.

Que l'ajustement soit réalisé en recherchant le minimum du χ^2 ou le maximum de vraisemblance, la fréquence centrale résultant de l'ajustement est susceptible d'être décalée de près de 2 kHz par rapport à celle de la forme de raie initiale, pour une amplitude de bruit valant 15% de la hauteur de la raie. Or, un tel bruit peut être couramment observé sur nos mesures : nous avons donc privilégié un échantillonnage uniforme de nos spectres, constitué

de 31 points de fréquence équidistants, qui ne révèle pas de biais à l'ajustement, même en présence de bruit.

Pour préserver nos mesures d'une corrélation avec la diminution tendancielle de l'intensité perçue par les atomes, ou avec d'éventuelles dérives à moyen terme de la fréquence des lasers, la séquence de balayage n'est pas parcourue de façon monotone, mais réordonnée aléatoirement par le programme de pilotage de l'expérience avant l'acquisition de chaque spectre. Notons que cette procédure diffère de celle employée lors des campagnes de mesure de 2013 et 2016, sur le protium, qui suivaient une séquence de balayage pseudo-aléatoire prédéterminée, toujours identique.

VII.6 Vitesse de balayage

Nous l'avons vu dans la partie précédente, la fréquence du laser *Verdi* peut être déplacée de 10 MHz en un dixième de seconde, tandis que la fréquence du laser *TiSa* peut dans le même temps être changée de 2,5 MHz. Pour accélérer l'enregistrement des spectres, le positionnement des fréquences de ces deux lasers est réalisé simultanément avant l'acquisition de chaque point de mesure.

Un délai d'attente est ajouté par sécurité, entre la fin de l'émission de la consigne de positionnement et l'ouverture des portes de comptage des fréquences lasers et des photons de fluorescence. Lorsque seul le *TiSa* est balayé, ce qui est le cas pour tous les balayages étroits recensés table VII.1, cette marge est fixée à 100 ms. Elle est prise à 400 ms lorsque la fréquence du *Verdi* est également balayée, ce qui est le cas pour les balayages larges de ± 12 MHz susmentionnés. Nous avons vérifié qu'une valeur plus élevée du délai d'attente n'était pas corrélée à une variation de la fréquence centrale de la raie observée, ou à une diminution de sa largeur.

Durant toute la campagne, le temps d'intégration de chaque point de mesure, c'est-à-dire le temps de porte du comptage des fréquences laser et des photons de fluorescence, a été de 1 s. Une valeur plus grande correspondrait à un trop grand risque de désasservissement de l'une des cavités optiques de l'expérience au cours d'une mesure ; une valeur plus petite serait statistiquement peu rentable, car l'intervalle de temps s'écoulant entre deux points de mesure serait alors supérieur à la durée de la mesure elle-même. On rappelle que l'identité de ce temps d'intégration entre tous les compteurs est assurée par leur référencement à 10 MHz.

À l'issue de la mesure, les différents compteurs transmettent les valeurs obtenues au programme de pilotage de l'expérience, en utilisant le protocole *VISA*, via les bibliothèques python *PyVISA* et *PyVISA-Py*, et au travers du réseau local ethernet que nous avons déployé en 2019. La durée de cette transmission est limitée par le temps de la mise en mémoire tampon des données sur les compteurs, et de leur envoi à l'ordinateur de pilotage : un temps mort de près de 300 ms succède ainsi à chaque mesure. Il serait possible de réduire partiellement ce délai en laissant les données stockées dans la mémoire interne des compteurs, par exemple le temps de l'acquisition d'un spectre entier ; cela rendrait toutefois plus difficile de garantir l'exacte correspondance des mesures effectuées par les différents instruments, et risquerait par ailleurs d'impliquer une perte de données en cas de problèmes de communication avec les appareils.

À la fin de chaque point de mesure, le programme de pilotage compare les différentes grandeurs mesurées à des intervalles de référence prédéfinis, afin de détecter si un désas-

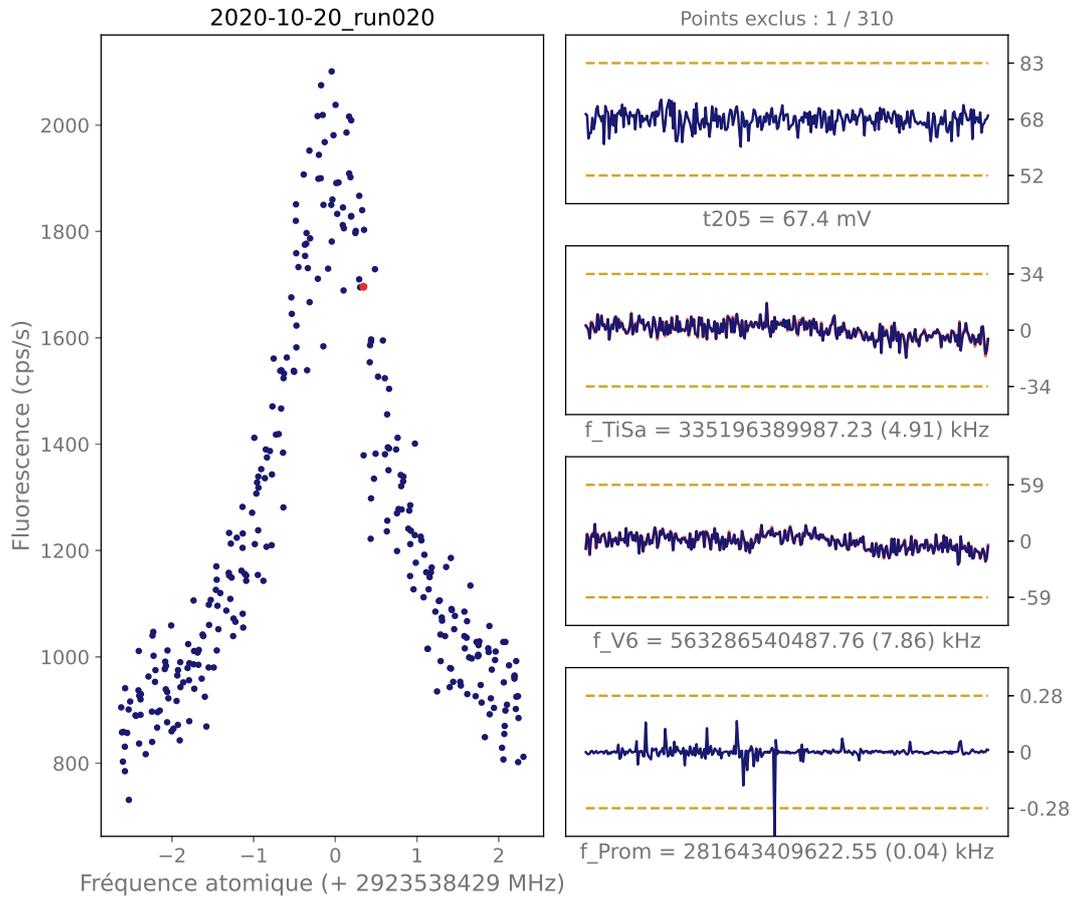


Fig. VII.5 Exemple de visualisation d'un enregistrement de dix spectres, en l'occurrence le 20^{ème} du 20 octobre 2020. À droite, de haut en bas : transmission de la cavité à 205 nm mesurée par la photodiode à fluorescéine ; fréquence du laser TiSa ; fréquence du laser Verdi ; fréquence du laser Prometheus. Les traits tiretés représentent les seuils de détection des désasservissements : on peut voir que le Prometheus s'est momentanément désasservi durant une seconde, au milieu de l'enregistrement. Cela correspond au point rouge, à gauche, qui n'est donc pas pris en compte dans le reste de l'analyse. Chacune des fréquences de battement est mesurée par deux compteurs différents : les fréquences laser correspondantes sont ici affichées en bleu et en rouge, l'une superposée à l'autre. La faible visibilité du trait rouge traduit l'accord entre ces différentes mesures. Notons que les couleurs de cette figure ne sont pas celles de l'interface graphique de visualisation des enregistrements utilisée durant la campagne : les mesures étant réalisées dans l'obscurité, l'affichage était adapté en conséquence.

servissement s'est produit. Si c'est le cas, les données obtenues ne sont pas sauvegardées, et une nouvelle mesure du même point de fréquence est réinitialisée. L'intensité transmise par la cavité à 205 nm est en outre échantillonnée tout au long du temps d'intégration, pour s'assurer que la cavité ne s'est pas désasservie, même temporairement ; et si la cavité n'est plus asservie à la fin du temps d'intégration, les mesures sont suspendues et l'algorithme de son réasservissement automatique, présenté section V.I.3, est exécuté.

Une interface graphique a été mise en place en 2019 sur le programme python de pilotage de l'expérience, permettant de visualiser au fur et à mesure la progression de l'enregistrement. Si un désasservissement survient, il est ainsi possible d'identifier immédiatement le système concerné, et d'aller en corriger le fonctionnement sans délai, afin que les mesures puissent reprendre. La figure VII.5 présente un exemple de visualisation d'un enregistrement. L'actualisation de cette interface dure environ 100 ms, ce qui porte à environ 500 ms (et 800 ms lorsque le laser *Verdi* est également balayé) le temps mort qui sépare deux portes de comptage successives.

Mentionnons enfin que les spectres sont enregistrés dix par dix, ce qui permet d'automatiser l'acquisition, tout en laissant la possibilité de réoptimiser fréquemment l'expérience. Chaque enregistrement balayé sur une plage de $\pm 2,5$ MHz dure donc un peu moins de huit minutes, en l'absence de désasservissements ; nous en avons réalisé près de 1100 durant la campagne.

VII.7 Traitement des données

Les valeurs mesurées par les différents instruments qui composent l'expérience sont rassemblées par le programme de pilotage dans un dictionnaire python, sauvegardé au format json. Chaque enregistrement correspond ainsi à un unique fichier, qui n'est plus modifié ensuite. Afin de traiter ces fichiers, nous avons développé depuis 2018 un module python spécifique, qui permet d'analyser en détail les données de la présente campagne de mesure aussi bien que celles des précédentes, de 2013 et de 2016, dans l'optique de leur réanalyse. Ce même module est également conçu pour faciliter la maintenance jour à jour de l'expérience, puisqu'il permet d'étudier rapidement et simplement des mesures partielles, réalisées par exemple pour identifier de potentielles pannes ou effets systématiques.

La plupart des désasservissements qui surviennent au cours d'un enregistrement sont détectés par le programme de pilotage de l'expérience, et ne sont donc pas inclus dans les données sauvegardées. Mais il peut toutefois arriver que ce ne soit pas le cas, comme l'illustre la figure VII.5. L'algorithme que nous avons mis en place pour filtrer ces données indésirables consiste, pour une grandeur donnée (une fréquence de battement, la transmission de la cavité à 205 nm, ou le signal d'erreur d'un asservissement, par exemple), à calculer la médiane de cette grandeur à l'échelle de l'enregistrement complet, et à exclure les points qui s'en éloignent de plus de N_{excl} fois l'écart médian à la médiane. On vérifie que la valeur choisie, $N_{excl} = 10$ typiquement, n'affecte pas le résultat final (voir figure VII.6). Les spectres incomplets à plus de 20% sont exclus de l'analyse.

La fréquence du faisceau laser à 205 nm est calculée à partir des fréquences des battements mesurées. Deux compteurs redondants étant employés pour chaque battement, on vérifie que sélectionner l'un, l'autre, ou prendre la moyenne des deux n'a aucune incidence. Enfin, les spectres issus d'un même enregistrement sont regroupés, pour former un ensemble de

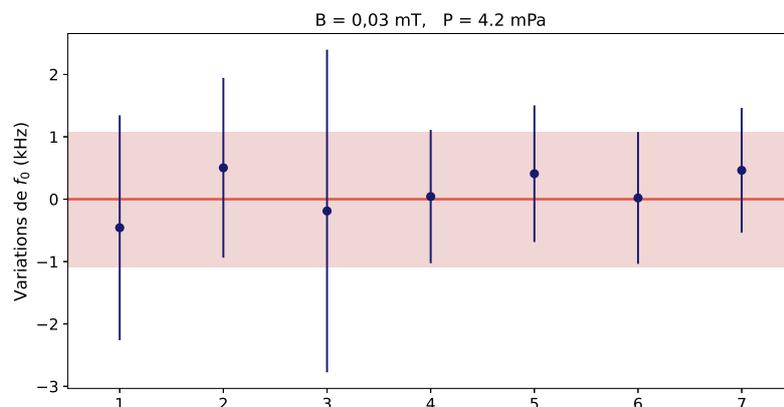


Fig. VII.6 Influence de différents modes de sélections des données sur la fréquence centrale f_0 de leur ajustement. Les spectres étudiés sont ceux du jeu de données (a); ils sont ajustés ici par une simple fonction lorentzienne. En rouge : moyenne (pondérée par l'inverse de leur variance) des valeurs de f_0 obtenues en ajustant chaque enregistrement (de dix spectres), pour un critère d'exclusion $N_{excl} = 10$. En 1 (et 2, respectivement) : en considérant seulement les 46 premiers (et les 83 derniers) enregistrements du jeu (a). En 3, 4 et 5 : en ajustant non plus des ensembles constitués de 10 spectres, mais de 50 spectres, 5 spectres et 1 spectre. En 6 et 7 : pour $N_{excl} = 5$ et 3.

couples (*fréquence*; *fluorescence*), qu'il va alors s'agir d'ajuster pour déterminer la position centrale de la raie qu'ils dessinent. On observe que cette position dépend peu des modalités de regroupement des spectres avant leur ajustement (voir figure VII.6).

Chapitre VIII

Ajustement des spectres expérimentaux

VIII.1 Incertitude statistique

Sous un champ magnétique inférieur ou égal à 2 mT, l'incertitude sur l'ajustement de la fréquence centrale d'un seul spectre est en moyenne de 40 kHz ; et sur l'ajustement d'un lot de dix spectres, de 14 kHz. À l'échelle d'un jeu de données, lorsqu'on calcule la moyenne¹ des fréquences centrales ajustées sur des lots de dix spectres, l'incertitude statistique correspondante est de l'ordre de 1 kHz : c'est cette valeur qui est renseignée dans la dernière colonne de la table VII.1.

Plusieurs facteurs influent sur ces incertitudes. L'intensité du faisceau laser d'excitation perçue par les atomes, notamment, détermine quadratiquement l'amplitude de la raie (voir section II.3.2) : elle modifie donc le rapport signal-sur-bruit des spectres. Cela se répercute sur l'ajustement de leur fréquence centrale (voir figure VIII.1, *i*) : lorsque l'intensité est multipliée par deux, l'incertitude $u(f_0)$ est divisée par deux. C'est la raison pour laquelle nous avons consacré tant d'efforts à l'optimisation de la puissance à 205 nm et au nettoyage régulier des miroirs de cavité (voir chapitre V).

On remarque ce faisant que la racine de l'amplitude des raies, \sqrt{H} , fournit un très bon indicateur de l'intensité du faisceau laser dans la cavité à 205 nm. Le coefficient de corrélation de Pearson entre \sqrt{H} et la puissance P_{205} à 205 nm, mesurée par un wattmètre en transmission de la cavité, est de 0,93 (figure VIII.1). Cette corrélation ne dépend que légèrement de l'alignement de la cavité.

Une seconde source d'incertitude sur la détermination de f_0 , observée en pratique, est la fluctuation de l'intensité du faisceau d'excitation au cours des mesures. On peut caractériser cette fluctuation (figure VIII.1, *ii* et *iv*) au travers de l'écart-type de la puissance P_{205} transmise par la cavité, ou au travers de l'incertitude sur l'ajustement de \sqrt{H} . On observe une dépendance linéaire : il suffit donc que l'amplitude de cette fluctuation soit réduite d'un facteur deux pour que l'incertitude correspondante soit deux fois moindre.

Sa principale cause est l'instabilité de l'asservissement de la cavité à 205 nm, due en large part aux vibrations qui perturbent l'enceinte à vide : c'est pourquoi, au chapitre IV,

1. Nous considérerons ici la moyenne pondérée par l'inverse de la variance. La moyenne d'un ensemble de mesures x_i d'incertitude-type σ_i , et l'incertitude associée, valent ainsi : $\bar{x} = \frac{\sum x_i/\sigma_i^2}{\sum 1/\sigma_i^2}$ et $u(\bar{x}) = 1/\sqrt{\sum 1/\sigma_i^2}$.

nous avons cherché à optimiser cet asservissement. Le découplage mécanique de l'enceinte et des miroirs de cavité, qui sera à l'avenir mis en place sur l'expérience, devrait donc encore améliorer la précision qui peut être attendue de notre dispositif.

Enfin, un troisième facteur de variabilité de l'incertitude sur la fréquence centrale d'une raie est la largeur de celle-ci. Plus la raie observée est étroite et plus, naturellement, l'ajustement de f_0 sera précis (figure VIII.1, *v*). En pratique, pour un réglage donné des paramètres de l'asservissement du laser *Verdi*, cette largeur dépend avant tout de la pression atomique (VIII.1, *vi*). Une régression affine de la largeur observée lors de notre campagne de mesure donne : $\Gamma/2\pi = 0,046(12) \times P_f + 1,19(4)$ MHz, avec P_f en mPa.

Nous avons vu à la section II.5 que l'élargissement dû à un temps d'interaction fini jouait un rôle négligeable, dans le cas de la contribution des atomes du jet effusif ; et, aux intensités lumineuses considérées, notre calcul de forme de raie ne révèle pas d'élargissement par saturation. La différence de 0,19 MHz, constatée entre la valeur de $\Gamma/2\pi$ extrapolée à pression nulle et la largeur naturelle de la transition, peut donc être vraisemblablement attribuée à la largeur spectrale du *Verdi*. En effet, il suffit que les réglages de son asservissement soient modifiés, même très faiblement, pour que la largeur de la raie observée varie jusqu'à 2,5 MHz, sous une pression de 4 mPa.

VIII.2 Contribution du gaz résiduel

Comme mentionné à la section VI.6.1, nous nous sommes rendus compte en 2019 qu'une proportion non négligeable d'atomes d'hydrogène ne faisant pas partie du jet effusif participaient tout de même au signal de fluorescence détecté. Il s'agit des atomes, issus du jet, qui demeurent un moment présents dans l'enceinte à vide avant d'être pompés.

La contribution de ce gaz résiduel aux spectres observés est bien visible, figures VIII.4 et VIII.5. On constate qu'elle a l'allure d'une fonction lorentzienne. Dans les conditions usuelles de fonctionnement de l'expérience, son amplitude est du même ordre que la contribution des atomes du jet, mais sa largeur lui est dix fois supérieure.

Nous avons vu à la section III.7 que nous pouvions fidèlement décrire cette allure lorentzienne au travers d'un modèle d'élargissement par temps de transit fini. Nous allons à présent chercher à en caractériser les paramètres.

VIII.2.1 Ajustement des paramètres de la contribution élargie

Nous avons étudié, entre 2019 et 2020, la dépendance de la largeur de la contribution élargie selon la pression P_f du gaz résiduel, et selon l'intensité du faisceau laser d'excitation, dans le cas du protium. Pour cela, 600 spectres ont été enregistrés en champ magnétique nul, et ajustés par la somme de deux lorentziennes, la première décrivant dans une très bonne approximation la contribution des atomes du jet :

$$F_{double\ lor.}(2f_L) = \frac{H}{1 + \left(\frac{2f_L - f_0}{\Gamma/4\pi}\right)^2} + \frac{H_r}{1 + \left(\frac{2f_L - f_{0r}}{\Gamma_r/4\pi}\right)^2} + K$$

Nous emploierons par la suite l'indice r pour dénoter ce qui relève de la contribution (élargie) du gaz résiduel. La figure VIII.4 présente la moyenne de ces spectres, sous une pression donnée, et la figure VIII.2, la variabilité de leur largeur. Il apparaît que cette largeur Γ_r ,

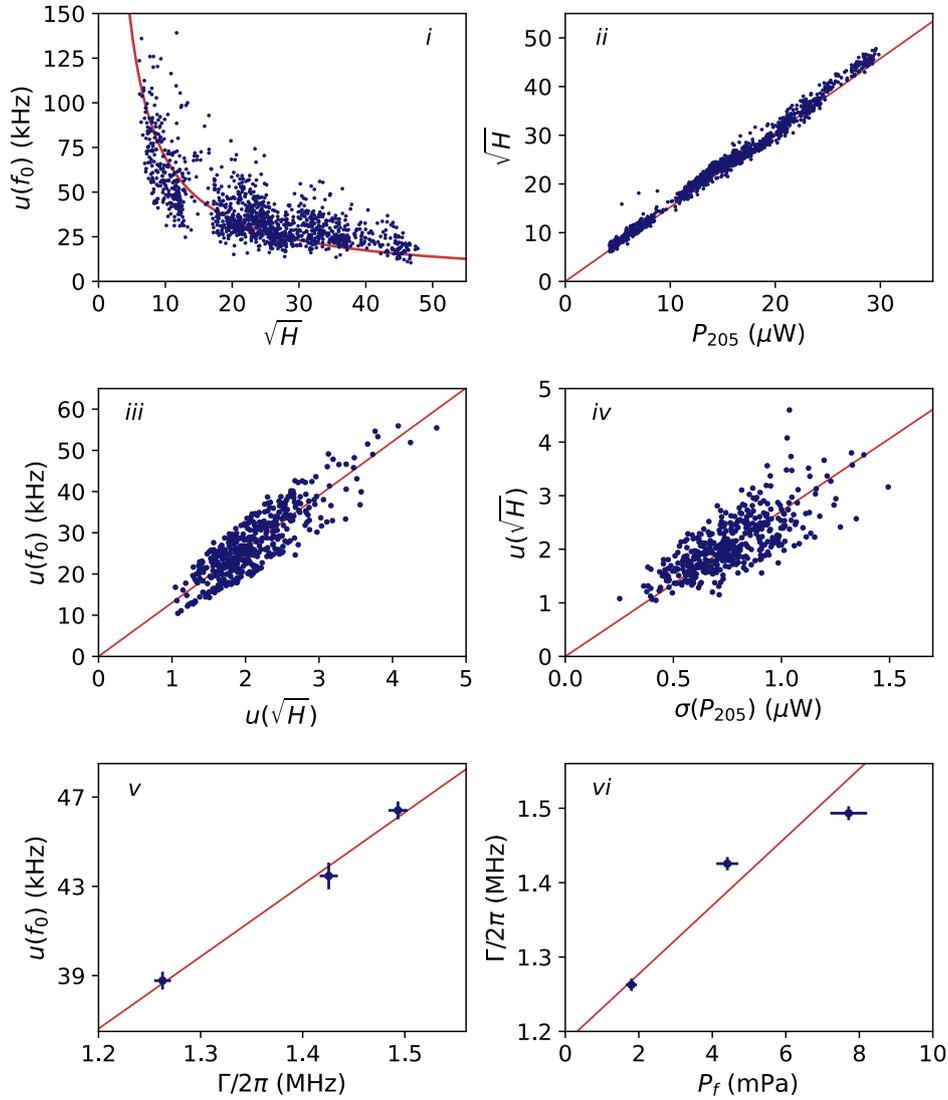


Fig. VIII.1 Variabilité de l'incertitude sur l'ajustement de la fréquence centrale f_0 d'un spectre (en unité de fréquence atomique). À gauche, dépendance de cette incertitude selon trois paramètres donnés par un ajustement lorentzien des spectres ; à droite, dépendance de ces paramètres selon certaines grandeurs mesurées lors des prises de données. En *i* et *ii* : spectres du jeu de données (a). En *iii* et *iv* : spectres de la première journée d'enregistrement du jeu de données (a), correspondant à un alignement approximativement constant de la cavité à 205 nm. En *v* et *vi* : valeurs moyennes issues de l'ajustement spectre par spectre des jeux (c), (i) et (j). En rouge : ajustement par une fonction de la forme $y = a/x$ (*i*), $y = ax$ (*ii*, *iii*, *iv*), et $y = ax + b$ (*v*, *vi*).

B (mT)	16,5	18,6	2,0
Spectres	220	70	220 + 70
$\Gamma_r/2\pi$ (MHz)	17,3 (6)	16,9 (1,4)	17,1 (1,5)
$f_{0r} - f_{offset}$ (kHz)	48,2 (59,1)	-33,9 (155,8)	7,2 (166,8)
$f_0 - f_{offset}$ (kHz)	-12,1 (6,9)	-104,3 (19,2)	-58,2 (20,4)
Δf_r (kHz)	-2,86 (3,44)	-2,42 (5,24)	-1,18 (2,54)

Table VIII.1 *Caractérisation du biais induit par la contribution du gaz résiduel. Les valeurs de Γ_r , f_{0r} et f_0 à $B = 16,5$ et $18,6$ mT sont ajustées, au moyen du profil $F_{double\ lor.}$, sur les spectres enregistrés avec un balayage large. Le nombre des spectres est indiqué. Les valeurs de Γ_r , f_{0r} et f_0 à $B = 2,0$ mT sont ici simplement estimées en calculant la mi-distance entre les valeurs correspondantes à $16,5$ et $18,6$ mT. Les valeurs de Δf_r sont obtenues en comparant les valeurs de f_0 et f'_0 qui ajustent, pour $B = 16,5$, $18,6$ ou $2,0$ mT, le jeu de données (d), (g) ou (b+c), respectivement. Dans ce chapitre, f'_0 désigne la fréquence centrale d'un profil simplement lorentzien $F_{lor.}$, dont l'expression est donnée section VIII.2.2. Pour simplifier les notations, on introduit $f_{offset} = 2\,923\,538\,429,3$ MHz.*

peut être considérée comme constante : nous pourrions donc nous contenter de la déterminer une seule fois au cours de notre campagne de mesure.

Dans le cas du deutérium, les jeux de données enregistrés selon un large balayage à $16,5$ et $18,6$ mT, présentés table VIII.1, ne révèlent par non plus de dépendance en champ magnétique de cette largeur. On obtient en moyenne pour cet isotope, qui est celui qui nous intéresse ici : $\Gamma_r/2\pi = 17,2$ (6) MHz.

La fréquence centrale f_{0r} dépend théoriquement, tout comme celle de la contribution du jet f_0 , de l'intensité laser et de la pression dans l'enceinte à vide, au travers des déplacements lumineux et collisionnel. Nous négligerons toutefois cette variabilité, inférieure à quelques kilohertz, au regard de l'incertitude avec laquelle on peut déterminer f_{0r} . La table VIII.1 présente les valeurs que nous avons obtenues de ces fréquences centrales.

Par manque de temps, nous n'avons pu lors de notre campagne de mesure enregistrer un nombre suffisamment grand de spectres à $B \approx 2$ mT sur une plage de ± 12 MHz. Par ailleurs, à cette valeur de champ magnétique, le voisinage des raies $1S - 3S_{|m_F|=1/2}$ (voir figure VII.3) complique l'ajustement. Nous sommes donc ici contraints d'estimer grossièrement, plutôt que d'ajuster précisément, la valeur de f_{0r} à 2 mT. Nous procéderons (table VIII.1) en prenant la moyenne des valeurs à $16,5$ et $18,5$ mT : celles-ci sont en effet, en première approximation, déplacées symétriquement par effet Stark motionnel vis-à-vis de leur position en champ faible (voir figure III.8).

VIII.2.2 Influence de la contribution élargie sur les spectres étroits

Nous disposons ainsi de tous les éléments nous permettant d'inclure la contribution du gaz résiduel au profil que nous utiliserons pour ajuster tous les spectres enregistrés, y compris selon un balayage étroit. Nous pouvons dès lors évaluer le biais qu'induit cette contribution sur la détermination de la fréquence de la transition $1S - 3S$.

Le profil en question ne peut qu'en première approximation prendre la forme, utilisée dans

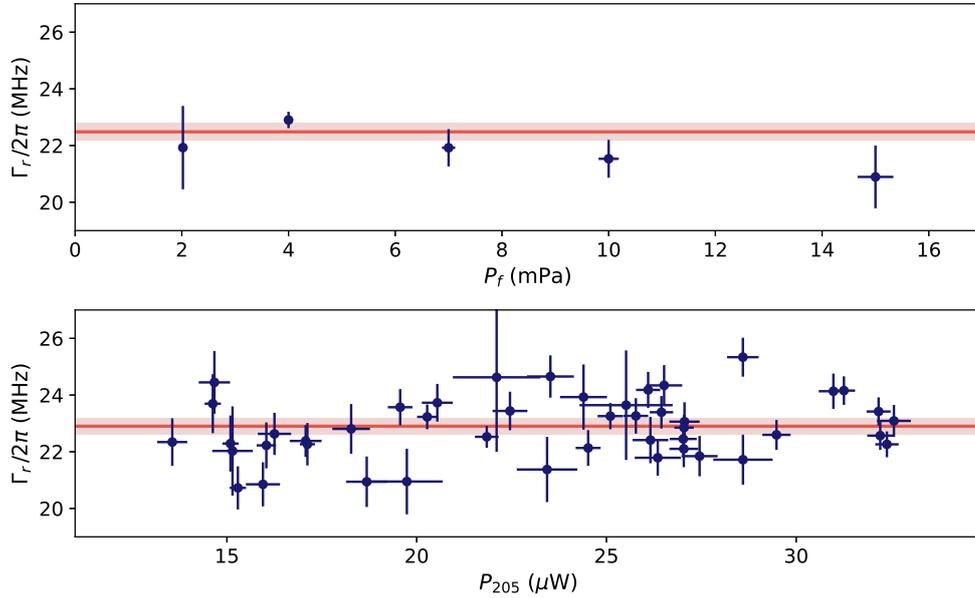


Fig. VIII.2 Dépendance en pression et en puissance lumineuse de la largeur lorentzienne de la contribution du gaz résiduel, ajustée par le profil $F_{double\ lor.}$, pour le protium. L'ajustement est obtenu par la méthode des moindres carrés. En rouge : moyenne pondérée des points bleus. En bas : sous une pression de 4 mPa. La valeur de P_{205} indiquée est celle enregistrée, lors de chaque point de mesurée, par un wattmètre percevant une fraction du faisceau transmis par la cavité à 205 nm.

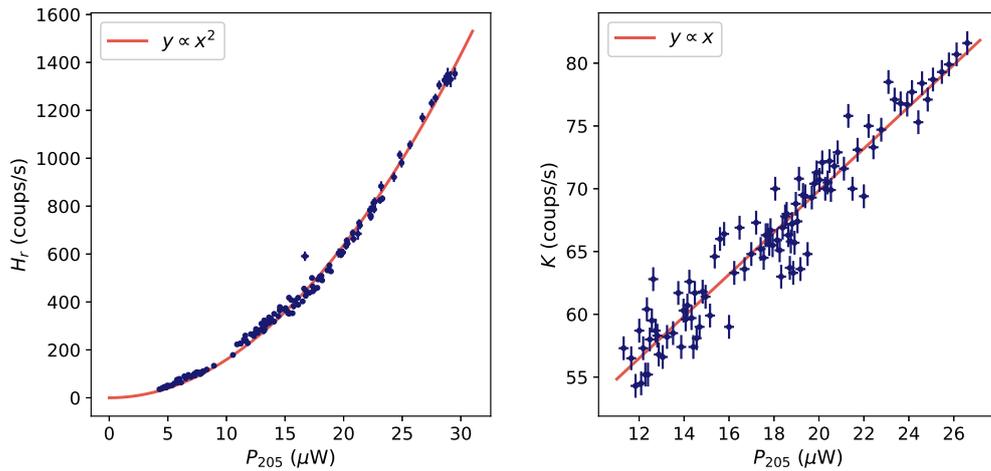


Fig. VIII.3 Dépendance en puissance lumineuse de l'amplitude lorentzienne et du bruit de fond de la contribution du gaz résiduel, ajustée par le profil $F_{double\ lor.}$, pour le deutérium et sous une pression de 4 mPa.

les paragraphes précédents, de $F_{double\ lor.}$. Cela revient en effet à négliger l'asymétrisation de la raie, due à l'effet Doppler du second ordre intégré sur les différentes classes de vitesse atomique, à l'effet Stark motionnel qui affecte différemment les sous-composantes hyperfines de la transition, et à l'effet d'interférence quantique. Il nous faut plutôt, pour modéliser ces phénomènes, employer la fonction F introduite dans la section III.3.

Plus précisément, comme mentionné à la section II.5, on peut convoluer F par une fonction lorentzienne pour rendre compte de l'élargissement dû aux collisions entre atomes et à la largeur spectrale du faisceau laser. On obtient alors :

$$F_{tot}(2f_L) = \int d\tilde{f} \frac{H}{1 + \left(\frac{2f_L - 2\tilde{f}}{\Gamma'/4\pi}\right)^2} F(f_{1S-3S}, \tilde{f}, B, v_p, v_0) + \frac{H_r}{1 + \left(\frac{2f_L - f_{0r}(B)}{\Gamma_r/4\pi}\right)^2} + K(P_{205})$$

Nous n'avons pas explicité ici, parmi les paramètres de F , le temps d'interaction t et l'intensité I_L du faisceau laser. En effet, pour les atomes du jet, ces paramètres n'ont pas d'incidence autre que sur l'amplitude de F , déjà décrite au travers de H . Nous pouvons donc en choisir n'importe quelle valeur typique, par exemple de $10\ \mu\text{s}$ et de $10^8\ \text{W/m}^2$. Les paramètres v_p et v_0 qui caractérisent la distribution des vitesses atomiques seront, eux, déterminés plus loin. Finalement, seuls les quatre paramètres f_{1S-3S} , H , Γ' et H_r de F_{tot} sont laissés libres à l'ajustement.

Si ce profil F_{tot} est celui que devra employer une analyse approfondie de notre campagne de mesure, il présente toutefois l'inconvénient d'être très demandeur en temps de calcul. Même en ne déterminant la valeur de F que pour un échantillon réduit de ses paramètres et en interpolant sa dépendance complète, ou même en utilisant la transformée de Fourier pour estimer plus rapidement le produit de convolution, l'ajustement de l'intégralité de notre campagne par le biais de F_{tot} dure plusieurs dizaines d'heures. Aussi, nous contenterons-nous ici de mener une analyse préliminaire, en continuant d'employer le profil $F_{double\ lor.}$.

En utilisant les valeurs de f_{0r} et Γ_r indiquées table VIII.1, et en laissant libres les quatre paramètres f_0 , H , Γ et H_r de $F_{double\ lor.}$, l'ajustement des jeux de données de la campagne permet de déterminer pour chacun d'eux une valeur de f_0 tenant compte de l'effet du gaz résiduel. Par contraste, en ajustant ces jeux de données par un simple profil lorentzien $F_{lor.}(2f_L) = H' / (1 + (2f_L - f'_0)^2 / (\Gamma'/4\pi)^2) + K'$, on ignore la contribution du gaz résiduel, et on obtient une valeur biaisée f'_0 du centre de la raie. La comparaison des deux nous permet de définir un terme correctif $\Delta f_r = f_0 - f'_0$, indiqué pour certains jeux table VIII.1.

On peut estimer l'incertitude qui caractérise la correction Δf_r , en évaluant les valeurs de f_0 que l'on obtiendrait si l'on employait, dans l'expression de $F_{double\ lor.}$, $f_{0r} \pm u(f_{0r})$ au lieu de f_{0r} , et $\Gamma_r \pm u(\Gamma_r)$ au lieu de Γ_r . On retient comme incertitude $u(\Delta f_r)$ la moitié de l'écart maximal obtenu par cette substitution.

Les valeurs résultantes de Δf_r ne sont pas négligeables, même pour une largeur $\Gamma_r/2\pi$ de 17 MHz, pourtant plus de dix fois supérieure à celle de la contribution du jet effusif. Il était donc bel et bien crucial d'adapter notre dispositif expérimental pour pouvoir caractériser et corriger cet effet systématique. On remarque que ce biais varie peu avec le champ magnétique : l'écart qui le suscite, entre les centres des contributions du gaz résiduel et du jet effusif, semble relativement constant, d'environ 60 à 70 kHz.

On peut également remarquer que l'influence de la contribution du gaz résiduel peut se voir à l'œil nu, sur l'ajustement des spectres étroits : les résidus de l'ajustement par une forme de raie ne tenant pas compte de cette contribution exhibent, en effet, une nette inflexion au niveau des ailes de la raie (figure VIII.6).

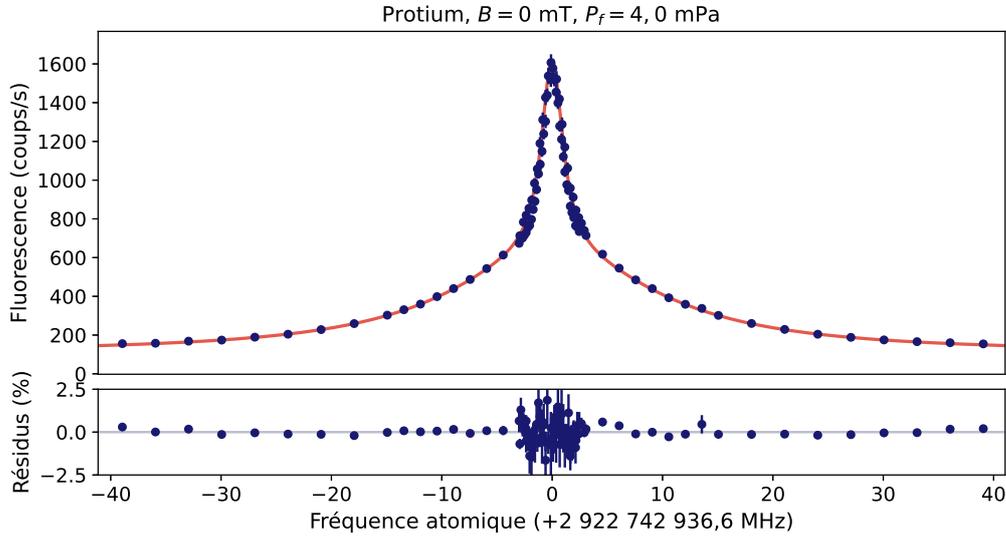


Fig. VIII.4 Balayage large de la transition $1S - 3S$ du protium, en champ nul. 285 spectres sont ici ajustés par lots de cinq, par la fonction $F_{double\ lor.}$. En haut : moyenne de ces spectres ; en rouge, moyenne des profils ajustés. En bas : moyenne des résidus de ces ajustements, normalisés à l'amplitude totale $H + H_r$ de la raie.

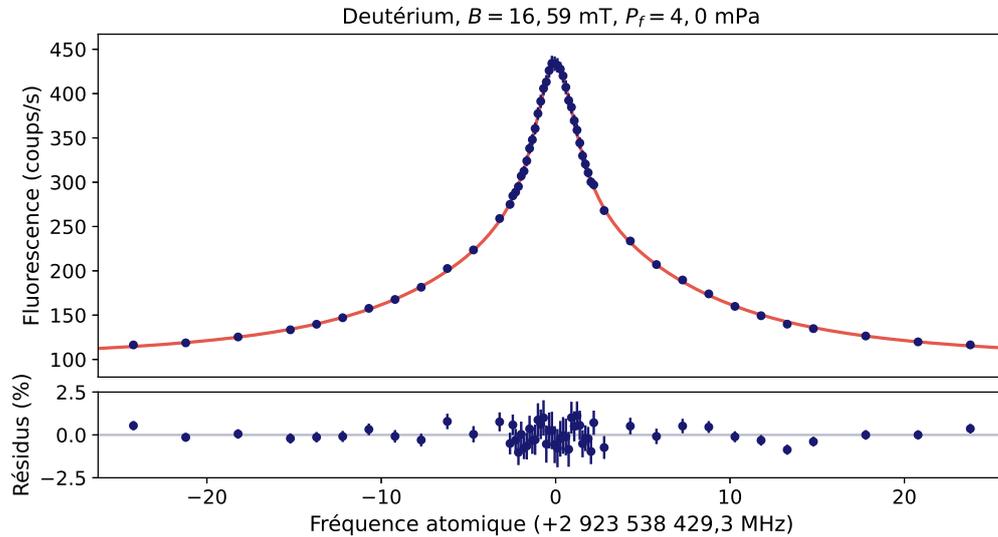


Fig. VIII.5 Balayage large de la transition $1S - 3S$ du deutérium, sous un champ de $16,59$ mT transverse au jet atomique. 220 spectres sont ici ajustés par lots de cinq, par la fonction $F_{double\ lor.}$, et représentés selon les mêmes modalités que figure VIII.4.

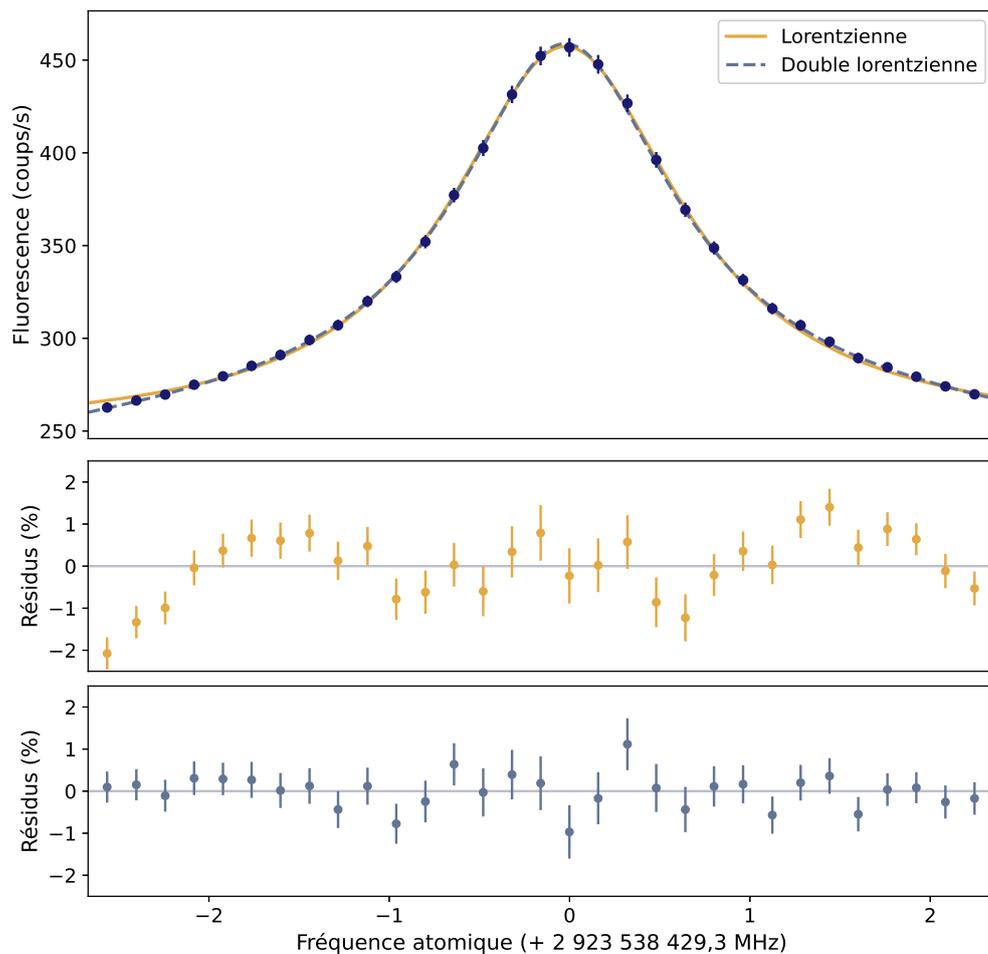


Fig. VIII.6 Ajustement des jeux de données (b) et (c), selon que l'on tient compte de la contribution du gaz résiduel ($F_{double\ lor.}$) ou non ($F_{lor.}$). Ici, 1940 spectres sont ajustés par lots de dix. En haut : moyenne de ces spectres. En bas : moyenne des résidus de leur ajustement, normalisés à l'amplitude totale de la raie.

VIII.3 Extrapolation en intensité et en pression

Nous l'avons vu à la section II.3.2, le déplacement lumineux dépend linéairement de l'intensité laser perçue par les atomes. Nous pouvons donc estimer sa valeur par extrapolation à intensité nulle. Seul le jeu de données (a), obtenu au début de notre campagne de mesure, nous a permis d'observer des variations d'intensité d'une ampleur suffisante pour que cette extrapolation soit significative. La figure VIII.7 en présente le résultat, en fonction de deux indicateurs de l'intensité : la puissance P_{205} transmise par la cavité à 205 nm, et la racine de l'amplitude H' du signal ajusté par le profil $F_{lor.}$.

Les paramètres de la régression sont concordants entre ces deux indicateurs : on obtient, dans le premier cas, $f'_0 - f_{offset} = 0,115(176) \times P_{205} - 65,57(3,51)$ kHz (pour P_{205} en μW), et dans le second, $f'_0 - f_{offset} = 0,088(112) \times \sqrt{H'} - 65,99(3,49)$ kHz (pour H en coups/s). On peut ensuite utiliser ces valeurs pour corriger, après ajustement par $F_{lor.}$, les fréquences centrales des autres jeux de données – l'effet de déplacement lumineux étant indépendant de la pression atomique ou du champ magnétique appliqué.

Par exemple, le cinquantième enregistrement du jeu (c) peut être ajusté par une lorentzienne d'amplitude $H' = 258(13)$ coups/s, et de centre $f'_0 = f_{offset} - 55,3(11,2)$ kHz : nous en déduisons une correction $\Delta f_{lum} = -1,4(1,8)$ kHz. Si l'on corrige ainsi tous les enregistrements des jeux de données (b) et (c), on déplace la valeur moyenne de la position des raies de $\Delta f_{lum} = -1,42(1,65)$ kHz. Notons que ces valeurs sont compatibles avec la modélisation théorique présentée section III.4.

Nous avons également vu, section III.5, que le déplacement collisionnel dépendait linéairement de la pression P_f , qui règne au niveau de la zone d'excitation des atomes avec le faisceau laser. Après avoir, comme nous venons de le voir, corrigé du déplacement lumineux les enregistrements des jeux de données (i), (c) et (j), nous pouvons donc procéder à une extrapolation en pression.

Le résultat, présenté figure VIII.8, est : $f'_0 - f_{offset} = -0,527(344) \times P_f - 56,1(1,97)$ kHz (pour P_f en mPa). Ainsi, par exemple, la fréquence centrale des spectres des jeux de données (b) et (c), obtenus sous une pression moyenne de $P_f = 4,35(10)$ mPa, peut être corrigée de l'effet de déplacement collisionnel en lui sommant un terme $\Delta f_{col} = 2,32(1,51)$ kHz.

Notons que ces régressions ont été faites en tenant compte aussi bien des incertitudes en abscisses qu'en ordonnées, en utilisant la méthode de minimisation de la distance orthogonale implémentée dans la librairie python *scipy.odr*.

VIII.4 Effet Doppler du second ordre

Au stade actuel de l'analyse de notre campagne de mesure, seul un ajustement préliminaire des paramètres de la distribution des vitesses atomiques a été réalisé. Il a été mené par François Biraben, en utilisant les mêmes programmes que pour l'analyse des campagnes de mesure de 2013 et 2016 réalisées sur le protium, et en suivant les mêmes procédures que celles exposées dans les références² [GALTIER 2014a] et [FLEURBAEY 2017a]. Une description sommaire de ces procédures est présentée dans l'annexe E, paragraphe 3.4.

Les formes de raie théoriques exploitées dans cet ajustement ont été calculées par Lucile

2. Suivant les notations de ces références, $v_p = 2\sigma$. Par ailleurs, un terme correctif $P_{repop.}$ est ajouté en facteur de $f_{corr.}$, mais joue un rôle négligeable dans l'analyse.

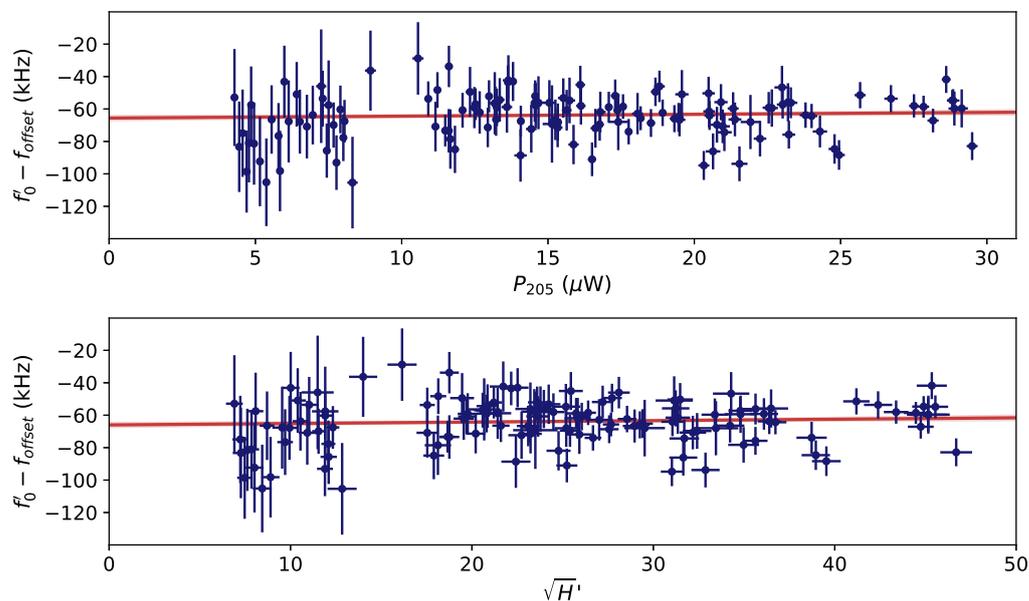


Fig. VIII.7 Extrapolation en intensité de l'ajustement, par le profil $F_{lor.}$, de la fréquence centrale f'_0 des spectres du jeu (a).

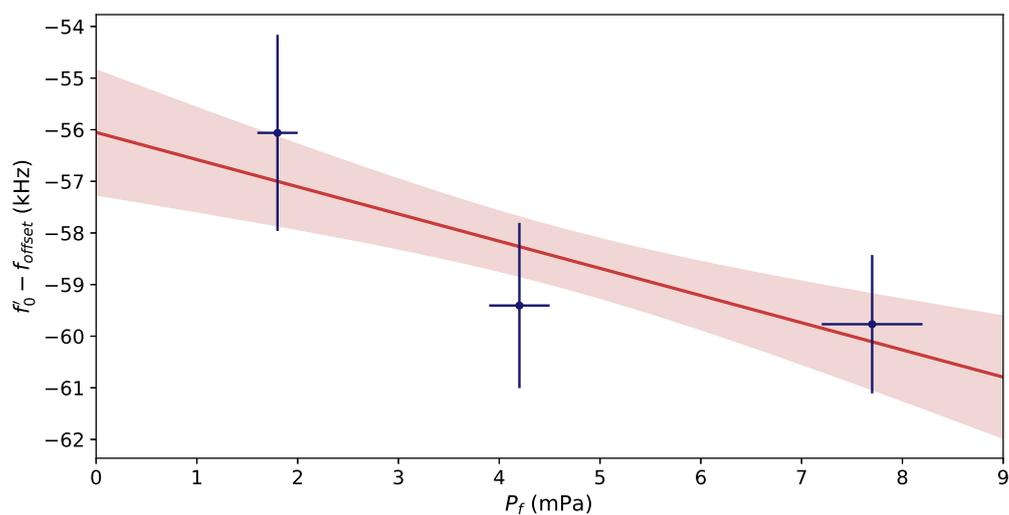


Fig. VIII.8 Extrapolation en pression de l'ajustement, par le profil $F_{lor.}$, de la fréquence centrale f'_0 des spectres des jeux (i), (c) et (j). La fréquence centrale de chaque enregistrement a préalablement été corrigée du déplacement lumineux.

Julien, en utilisant là encore des programmes dérivés de ceux des campagnes de 2013 et 2016. L'intérêt du réemploi de ces programmes est de permettre une comparaison avec l'analyse à venir, réalisée avec des programmes entièrement différents, développés au cours du présent travail de thèse. Si une erreur, ou un biais d'analyse, affecte l'un d'eux, cette comparaison pourra le mettre en évidence.

Nous ne détaillerons pas ici les résultats de l'ajustement, mais retiendrons seulement que la fréquence centrale moyenne des spectres enregistrés à $B \approx 2$ mT est décalée de 55,73 (6,25) kHz, selon que ces spectres sont ajustés par le profil $F_{lor.}$ ou par le profil F convolué par une fonction lorentzienne, pour des valeurs optimales des paramètres de la distribution des vitesses. On rappelle (voir section III.3) que ces valeurs optimales sont celles qui reproduisent le mieux la dépendance en B du déplacement Stark motionnel. Autrement dit, la prise en compte de l'effet Doppler du second ordre, intégré sur la distribution des vitesses, se traduit par une correction à la fréquence apparente de la transition de $\Delta f_{Doppler} = +55,73 (6,25)$ kHz.

VIII.5 Résultats

En attendant de mener une analyse approfondie de notre campagne de mesure, nous pouvons estimer une première valeur de la fréquence de transition $f_{1S-3S, F=3/2}$, en prenant pour point de départ les enregistrements réalisés à 2 mT environ (jeux de données (b) et (c)), qui sont les moins sensibles à de potentielles erreurs de calibration du champ magnétique. La première ligne de la table VIII.2 présente la moyenne des fréquences centrales apparentes f'_0 de ces spectres, déterminées en les ajustant par lots de dix via le profil $F_{lor.}$

La figure VIII.9 illustre la variabilité des mesures effectuées à 2 mT. Les enregistrements ne présentent pas de biais notable d'un jour à l'autre (six jours de campagne sont en tout représentés, et les enregistrements d'un jour donné sont contigus). À l'incertitude de mesure près, on n'observe pas de dépendance selon la valeur précise, ou la direction, du champ magnétique. Les variations d'intensité du faisceau laser d'excitation sont corrélées à l'incertitude sur la détermination de f'_0 , mais pas de façon perceptible à f'_0 elle-même. L'amélioration du système de stabilisation des lasers, s'il n'entraîne aucun gain sur l'incertitude de f'_0 susceptible de compenser les dégradations de la puissance lumineuse, ne paraît pas non plus entraîner de biais sur la mesure de la fréquence de la transition.

Autour de $B = 2$ mT, l'effet Stark motionnel n'induit pas d'asymétrie ou de décalage perceptible de la forme de raie, il n'y a donc pas lieu de corriger cet effet. La fréquence de la transition $f_{1S-3S, F=3/2, |m_F|=3/2}$ n'est pas non plus, à 2 mT, déplacée par effet Zeeman; cependant, la proximité des raies $f_{1S-3S, |m_F|=1/2}$, qui y sont sensibles, peut légèrement biaiser l'ajustement par une lorentzienne de $f_{1S-3S, |m_F|=3/2}$: c'est ce que montre la figure VII.2. Ce biais peut être estimé à environ 0,08 (4) kHz; le terme correctif Δf_B correspondant, qui s'applique à f'_0 , est de signe opposé.

Le phénomène d'interférence quantique introduit également un biais lorsqu'on cherche à ajuster la forme de raie par une lorentzienne, et ce biais n'a pas été pris en compte dans les formes de raie théoriques utilisées à la section précédente pour estimer l'effet Doppler. Nous avons vu (section II.7.2) qu'il pouvait être estimé dans notre cas à $-0,6 (2)$ kHz.

Les autres effets systématiques dont nous avons connaissance à ce stade – influence de la contribution du gaz résiduel, déplacements lumineux et collisionnel, effet Doppler du second

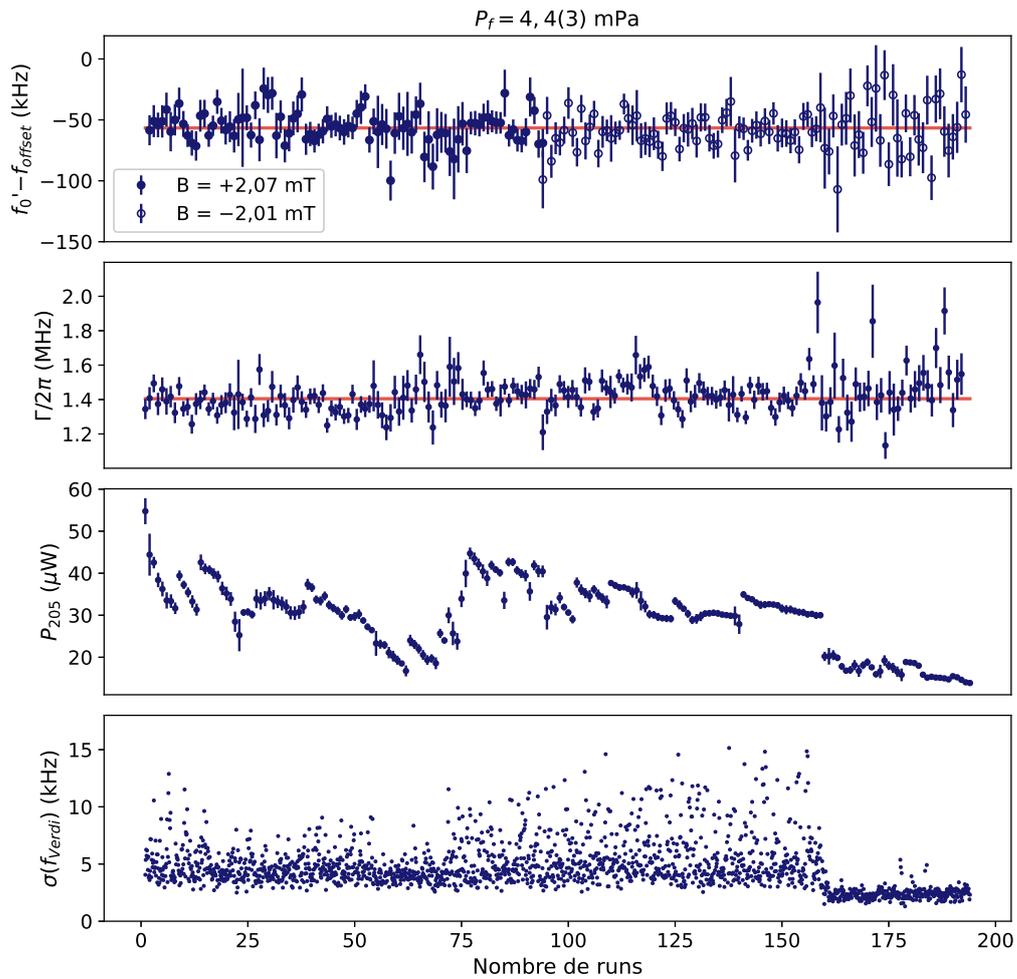


Fig. VIII.9 Étude de la variabilité des mesures sous un champ de 2 mT. Les jeux de données (b) et (c) sont ici représentés, chaque enregistrement de dix spectres étant ajusté par le profil $F_{lor.}$. En rouge : moyenne pondérée sur l'ensemble des mesures. En bas : écart-type de la détermination de la fréquence du laser Verdi à l'échelle de chaque spectre (on rappelle que les spectres présentés ici sont obtenus par un balayage étroit, pour lequel la fréquence du Verdi reste constante). On remarque, sur les 35 derniers enregistrements, l'impact du nouveau système de stabilisation des lasers.

En fréquence atomique :	Valeur (kHz)	Incertitude (kHz)
$f'_0 - f_{offset}$ (B=2 mT)	-56,66	0,90
$+\Delta f_B$	-0,08	0,04
$+\Delta f_{interf.}$	+0,60	0,20
$+\Delta f_{rés.}$	-1,18	2,54
$+\Delta f_{lum.}$	-1,42	1,65
$+\Delta f_{col.}$	+2,32	1,51
$+\Delta f_{Doppler}$	+55,73	6,25
$f_{1S-3S,F=3/2} - f_{offset}$	-0,69	7,17

Table VIII.2 Bilan des effets systématiques ($f_{offset} = 2\,923\,538\,429\,300$ kHz).

ordre – ont été caractérisés dans les sections précédentes, et sont reportés table VIII.2. Lorsque toutes ces corrections sont additionnées, en considérant ici que les incertitudes qui leur sont associées sont indépendantes les unes des autres et peuvent donc être sommées quadratiquement, on obtient :

$$f_{1S-3S,F=3/2}^{(d)} = 2\,923\,538\,429\,299,31 (7,17) \text{ kHz}$$

Enfin, si l'on en soustrait l'écart entre les valeurs théoriques de $E_{\mathcal{F}} + \Delta E_{\mathcal{F}}$ pour les niveaux $3S_{1/2,F=3/2}$ et $1S_{1/2,F=3/2}$ donné section I.7, on trouve :

$$f_{1S-3S}^{(d)} = 2\,923\,538\,534\,385,50 (7,17) \text{ kHz}$$

L'incertitude relative correspondante est de $2,4 \times 10^{-12}$. En dehors de celle de la transition $1S - 2S$, il s'agit donc de la première fois qu'une fréquence de transition de l'atome de deutérium est estimée avec une telle précision. Il nous faut toutefois rappeler que l'analyse présentée dans ce chapitre est très préliminaire, et que ces valeurs doivent être considérées avec une grande précaution.

Chapitre IX

Détermination des constantes fondamentales

IX.1 Calcul de la constante de Rydberg et du rayon du deutéron

Le calcul théorique des fréquences de transition entre niveaux de structure fine de l'atome d'hydrogène, calcul que nous avons introduit au chapitre I, dépend sensiblement des valeurs de la constante de Rydberg R_∞ et du rayon de charge du noyau r_N . Cela permet, à rebours, de déterminer la valeur de ces deux constantes fondamentales à partir d'autant de mesures de fréquences de transition de l'atome. L'annexe D détaille les étapes de cette détermination.

S'agissant du deutérium, nous l'avons déjà mentionné, la seule fréquence de transition connue avec une incertitude plus faible que celle déterminée ici est celle de la transition $1S - 2S$. Elle a été mesurée à la fin des années 1990 à l'Institut Max Planck d'optique quantique de Garching (Allemagne) [UDEM 1997 ; POHL 2017], avec une incertitude relative de $3,4 \times 10^{-13}$:

$$f_{1S-2S}^{(d)} = 2\,466\,732\,407\,521,98 (85) \text{ kHz}$$

Combinant ce résultat avec la valeur de $f_{1S-3S}^{(d)}$ que nous avons obtenue, on en déduit :

$$R_\infty = 10\,973\,731,568\,19 (38) \text{ m}^{-1}$$

$$cR_\infty = 3\,289\,841\,960,26 (11) \text{ MHz}$$

$$r_d = 2,123 (15) \text{ fm}$$

IX.2 Comparaison avec différentes déterminations

Quatre autres mesures de la fréquence de la transition $1S - 3S$ ont précédemment été publiées, mais dans le seul cas du protium. Elles ont été réalisées dans notre équipe [ARNOULT 2010 ; FLEURBAEY 2018] ainsi qu'à l'Institut Max Planck d'optique quantique de Garching [YOST 2016 ; GRININ 2020]. La figure IX.1 illustre leur progression.

Rappelons que toutes les incertitudes recensées ici correspondent à un écart-type de 1σ : la probabilité de couverture, associée à un intervalle centré sur la valeur mesurée et large de deux fois l'incertitude, est de 68 %, si l'on suppose une distribution normale de l'erreur de mesure.

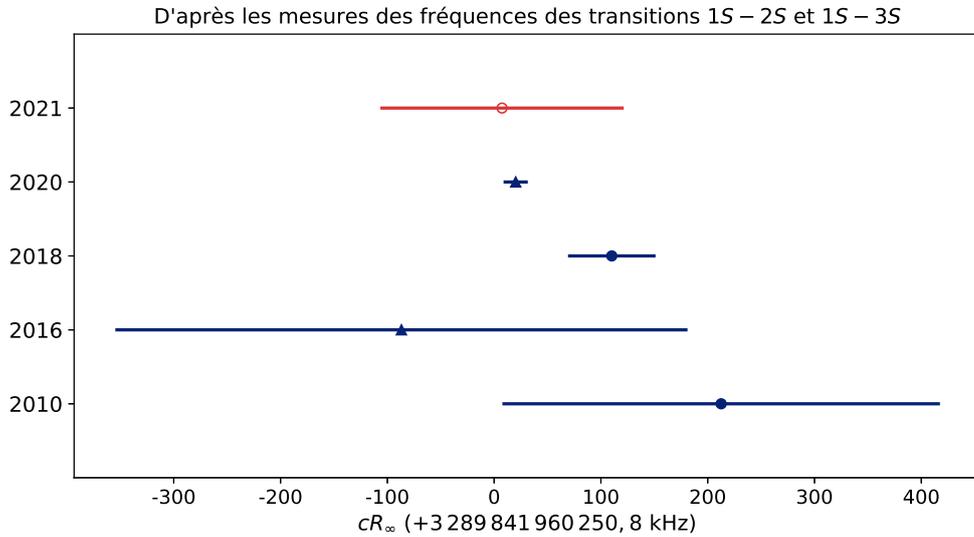


Fig. IX.1 Évaluation de la cohérence des différentes mesures réalisées à ce jour de la fréquence de la transition 1S – 3S. Les triangles désignent l'Institut Max Planck d'optique quantique, les cercles le LKB. Le protium est représenté en bleu, le deutérium en rouge. L'axe des abscisses est centré sur la valeur issue de l'ajustement 2018 du CODATA.

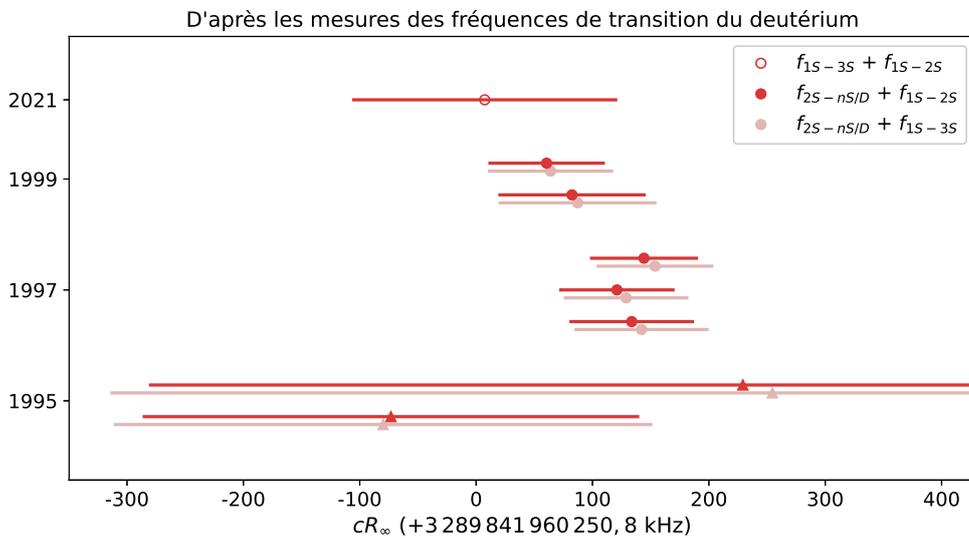


Fig. IX.2 Évaluation de la cohérence des différentes mesures réalisées à ce jour des fréquences de transition de l'atome de deutérium. Outre notre mesure (\circ), les transitions représentées sont de type $2S - nS$ ou $2S - nD$, avec $n = 4$ (1995), 8 (1997) et 12 (1999). Les triangles désignent l'Institut Max Planck d'optique quantique, les cercles le LKB. Pour les transitions $2S - nS/D$, deux déterminations de la constante de Rydberg sont chaque fois comparées : en utilisant comme seconde fréquence, dans le calcul présenté annexe D, celle de la transition $1S - 2S$ ou $1S - 3S$.

Cinq autres fréquences de transition de l'atome de deutérium ont précédemment été mesurées dans notre équipe, avec une incertitude relative allant de $7,7$ à 11×10^{-12} : il s'agit des transitions $2S - 8S$, $2S - 8D_{3/2}$ et $2S - 8D_{5/2}$ [DE BEAUVOIR 1997], et des transitions $2S - 12D_{3/2}$ et $2S - 12D_{5/2}$ [SCHWOB 1999]. Les fréquences des transitions $2S - 4S$ et $2S - 4D_{5/2}$ ont également été mesurées à l'Institut Max Planck d'optique quantique, avec une incertitude relative de $4,2$ et $6,3 \times 10^{-6}$ [WEITZ 1995]. On peut, à leur tour, combiner chacune de ces mesures, soit avec $f_{1S-2S}^{(d)}$, soit avec $f_{1S-3S}^{(d)}$, pour déterminer les valeurs correspondantes de R_∞ et r_d . La figure IX.2 montre l'accord que l'on peut observer entre ces déterminations.

À ce jour, une seule autre fréquence de transition a été mesurée avec précision sur un atome ayant le deutéron pour noyau : il s'agit de la transition $2S - 2P_{3/2}$ du deutérium muonique [POHL 2016]. Réalisée en 2009 par la collaboration CREMA, à l'Institut Paul Scherrer de Villigen (Suisse), cette mesure a été obtenue en remplaçant l'électron d'atomes d'un gaz de deutérium par un muon, produit par un accélérateur de particules.

Nous avons au vu chapitre I que l'effet de la taille du noyau sur les niveaux d'énergie d'un système hydrogénoïde était proportionnelle à la probabilité de présence du lepton au centre du noyau – probabilité qui est elle-même proportionnelle au cube de l'énergie propre du lepton. Or celle du muon est environ 207 fois supérieure à celle de l'électron : les fréquences de transition de l'hydrogène muonique sont donc beaucoup plus sensibles à la valeur de r_N .

Les mesures de la collaboration CREMA ont mis en évidence l'existence d'un désaccord avec la moyenne des valeurs de R_∞ (et de r_N) obtenues auparavant – comme le montre la figure IX.3. Surnommé « énigme du rayon du proton », ce désaccord a stimulé de nombreux efforts, tant théoriques qu'expérimentaux, afin de l'expliquer (voir annexe E, § 1.2). On peut en trouver une présentation dans les articles de revue [KARR 2020] et [GAO 2021].

Il semble, au vu des résultats les plus récents présentés figure IX.3, que cette énigme est susceptible de traduire l'existence d'un ou de plusieurs effets systématiques encore inconnus, ayant affecté les mesures de spectroscopie de l'hydrogène réalisées par le passé. Cette hypothèse n'est pas contredite par le présent travail de thèse. En tout état de cause, le plus grand désaccord que l'on peut observer actuellement, parmi l'ensemble des mesures de spectroscopie de l'hydrogène publiées à ce jour, électronique comme muonique, est de seulement $3,4\sigma$.

IX.3 Perspectives

Il ressort des différentes comparaisons présentées dans les figures IX.1, IX.2 et IX.3 que la valeur préliminaire de $f_{1S-3S}^{(d)}$ déterminée au chapitre VIII ne se trouve pas en désaccord avec les mesures réalisées auparavant, quel que soit l'isotope, et quelle que soit la transition considérée. Cette conclusion n'est cependant pas très significative, étant donnée l'importante incertitude qui caractérise notre résultat.

Elle nous incite toutefois à poursuivre l'étude de la transition $1S - 3S$. Concernant le protium, certains des effets systématiques prospectés dans le présent travail, tels que l'effet de la contribution du gaz résiduel, ou encore la sensibilité de la position de la raie sous un champ magnétique faible, peuvent notamment justifier une réanalyse des résultats obtenus précédemment sur notre expérience.

Concernant le deutérium, cette campagne de mesure, la première à lui avoir été consacrée

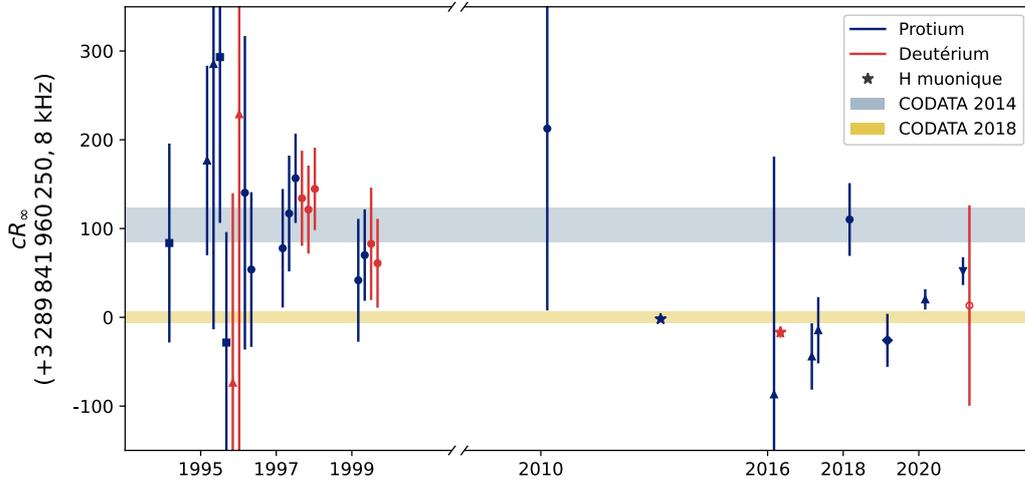


Fig. IX.3 Déterminations de la constante de Rydberg obtenues en combinant la fréquence de la transition $1S - 2S$ avec la fréquence de différentes transitions de l'atome d'hydrogène et d'hydrogène muonique, en fonction de l'année de la publication de celles-ci. L'ensemble des mesures de spectroscopie à haute résolution de l'atome d'hydrogène réalisées depuis 1981 sont représentées ici. Notre résultat est le plus récent. Les références des mesures antérieures à 2020 peuvent être trouvées dans [TIESINGA 2021, table X]. La mesure de la fréquence de la transition $1S - 3S$ publiée en 2020 est décrite dans [GRININ 2020]; celle de la transition $2S - 8D_{5/2}$ pré-publiée en 2021, dans [BRANDT 2021]. Les cercles correspondent aux mesures réalisées dans notre équipe; les triangles, à celles réalisées à l'Institut Max Planck d'optique quantique. Les carrés ont été obtenus à Harvard et Yale; le diamant, à l'université de York (Toronto); le triangle inversé, à l'université du Colorado; les étoiles, à l'Institut Paul Scherrer. Les mesures relatives au protium sont en bleu; au deutérium, en rouge.

dans notre équipe, nous encourage fortement à en réaliser une autre, à présent que l'on sait comment accroître la précision de notre expérience. Comme nous l'avons évoqué partie II, cette future campagne de mesure pourra en effet bénéficier, entre autres, d'un système de pompage sans huile du jet atomique, d'un découplage mécanique de la cavité à 205 nm et de l'enceinte à vide, et d'une source laser étroite à 532 nm.

On peut en attendre une diminution de l'incertitude sur la mesure de la fréquence de la transition $1S - 3S$, permettant à celle-ci de contribuer toujours davantage à tester la cohérence de l'électrodynamique quantique.

Conclusion

Le travail de thèse que j'ai réalisé, et dont ces pages visent à rendre compte, a été avant tout un travail de maintenance. La réparation et l'optimisation constantes du dispositif expérimental, indispensables pour entamer une campagne de mesure, en constituent de loin le principal accomplissement.

Améliorant le rapport signal-sur-bruit de notre montage, j'ai par ailleurs fait la découverte d'un nouvel effet systématique, se traduisant par une contribution élargie aux spectres mesurés. J'ai conçu et mis en œuvre un nouveau système de balayage des fréquences laser, pouvant couvrir une plage large de plusieurs dizaines de mégahertz, afin de caractériser cette contribution.

J'ai également élaboré un modèle théorique permettant de la modéliser. J'ai pris l'initiative de développer, pour ce faire, le calcul numérique des formes de raies au-delà de l'approximation stationnaire. Ce calcul nous permettra en outre, pour la première fois, de déterminer la distribution des vitesses de notre jet atomique en intégrant l'effet des interférences quantiques qui se manifestent lors de l'excitation de la transition.

J'ai montré que la contribution élargie que j'avais mise en évidence était provoquée par la fluorescence des atomes d'hydrogène formant un gaz résiduel dans notre enceinte à vide, et qu'elle entraînait un déplacement de la fréquence de résonance apparente de la contribution du jet atomique. J'ai pu évaluer ce déplacement, et ainsi le corriger des mesures effectuées.

J'ai également fait le choix d'employer le système de balayage nouvellement mis au point pour asservir à long terme les fréquences de l'ensemble des sources laser de l'expérience, et améliorer d'un facteur trois leur stabilité. Enfin, j'ai mis en place un dispositif de refroidissement du jet atomique à la température de l'azote liquide, et en ai étudié les avantages avant de privilégier les mesurages opérés à température ambiante.

Tout cela m'a permis de conduire une campagne de prise de données complète, à l'automne 2020 : la première réalisée dans notre équipe sur la transition $1S - 3S$ du deutérium. Menant une analyse préliminaire de ses résultats, j'ai pu déterminer une valeur de la fréquence de cette transition. Caractérisée par une incertitude relative de $2,4 \times 10^{-12}$, il s'agit de la plus précise obtenue à ce jour ; cela en fait également la deuxième mieux connue de toutes les fréquences de transition de l'atome de deutérium.

Grâce au nouveau jet atomique en cours de montage dans notre laboratoire, les apports de ce travail permettront prochainement de déterminer la fréquence de la transition $1S - 3S$ avec une incertitude relative de quelques 10^{-13} .

Annexes

Annexe A

Exemple de base employée pour le calcul des formes de raie

Base $\{|nLJFm_F\rangle\}$ pour le protium, $n = 1$ et 3 (40 niveaux) :

n=1	L=0	J=1/2	F=0	mF=0	I=1/2	S=1/2	>
n=1	L=0	J=1/2	F=1	mF=-1	I=1/2	S=1/2	>
n=1	L=0	J=1/2	F=1	mF=0	I=1/2	S=1/2	>
n=1	L=0	J=1/2	F=1	mF=1	I=1/2	S=1/2	>
n=3	L=0	J=1/2	F=0	mF=0	I=1/2	S=1/2	>
n=3	L=0	J=1/2	F=1	mF=-1	I=1/2	S=1/2	>
n=3	L=0	J=1/2	F=1	mF=0	I=1/2	S=1/2	>
n=3	L=0	J=1/2	F=1	mF=1	I=1/2	S=1/2	>
n=3	L=1	J=1/2	F=0	mF=0	I=1/2	S=1/2	>
n=3	L=1	J=1/2	F=1	mF=-1	I=1/2	S=1/2	>
n=3	L=1	J=1/2	F=1	mF=0	I=1/2	S=1/2	>
n=3	L=1	J=1/2	F=1	mF=1	I=1/2	S=1/2	>
n=3	L=1	J=3/2	F=1	mF=-1	I=1/2	S=1/2	>
n=3	L=1	J=3/2	F=1	mF=0	I=1/2	S=1/2	>
n=3	L=1	J=3/2	F=1	mF=1	I=1/2	S=1/2	>
n=3	L=1	J=3/2	F=2	mF=-2	I=1/2	S=1/2	>
n=3	L=1	J=3/2	F=2	mF=-1	I=1/2	S=1/2	>
n=3	L=1	J=3/2	F=2	mF=0	I=1/2	S=1/2	>
n=3	L=1	J=3/2	F=2	mF=1	I=1/2	S=1/2	>
n=3	L=1	J=3/2	F=2	mF=2	I=1/2	S=1/2	>
n=3	L=2	J=3/2	F=1	mF=-1	I=1/2	S=1/2	>
n=3	L=2	J=3/2	F=1	mF=0	I=1/2	S=1/2	>
n=3	L=2	J=3/2	F=1	mF=1	I=1/2	S=1/2	>
n=3	L=2	J=3/2	F=2	mF=-2	I=1/2	S=1/2	>
n=3	L=2	J=3/2	F=2	mF=-1	I=1/2	S=1/2	>

	n=3	L=2	J=3/2	F=2	mF=0	I=1/2	S=1/2	>
	n=3	L=2	J=3/2	F=2	mF=1	I=1/2	S=1/2	>
	n=3	L=2	J=3/2	F=2	mF=2	I=1/2	S=1/2	>
	n=3	L=2	J=5/2	F=2	mF=-2	I=1/2	S=1/2	>
	n=3	L=2	J=5/2	F=2	mF=-1	I=1/2	S=1/2	>
	n=3	L=2	J=5/2	F=2	mF=0	I=1/2	S=1/2	>
	n=3	L=2	J=5/2	F=2	mF=1	I=1/2	S=1/2	>
	n=3	L=2	J=5/2	F=2	mF=2	I=1/2	S=1/2	>
	n=3	L=2	J=5/2	F=3	mF=-3	I=1/2	S=1/2	>
	n=3	L=2	J=5/2	F=3	mF=-2	I=1/2	S=1/2	>
	n=3	L=2	J=5/2	F=3	mF=-1	I=1/2	S=1/2	>
	n=3	L=2	J=5/2	F=3	mF=0	I=1/2	S=1/2	>
	n=3	L=2	J=5/2	F=3	mF=1	I=1/2	S=1/2	>
	n=3	L=2	J=5/2	F=3	mF=2	I=1/2	S=1/2	>
	n=3	L=2	J=5/2	F=3	mF=3	I=1/2	S=1/2	>

Base $\{|nLJFm_F\rangle\}$ pour le deutérium, $n = 1$ et 3 (60 niveaux) :

n=1	L=0	J=1/2	F=1/2	mF=-1/2	I=1	S=1/2	>
n=1	L=0	J=1/2	F=1/2	mF=1/2	I=1	S=1/2	>
n=1	L=0	J=1/2	F=3/2	mF=-3/2	I=1	S=1/2	>
n=1	L=0	J=1/2	F=3/2	mF=-1/2	I=1	S=1/2	>
n=1	L=0	J=1/2	F=3/2	mF=1/2	I=1	S=1/2	>
n=1	L=0	J=1/2	F=3/2	mF=3/2	I=1	S=1/2	>
n=3	L=0	J=1/2	F=1/2	mF=-1/2	I=1	S=1/2	>
n=3	L=0	J=1/2	F=1/2	mF=1/2	I=1	S=1/2	>
n=3	L=0	J=1/2	F=3/2	mF=-3/2	I=1	S=1/2	>
n=3	L=0	J=1/2	F=3/2	mF=-1/2	I=1	S=1/2	>
n=3	L=0	J=1/2	F=3/2	mF=1/2	I=1	S=1/2	>
n=3	L=0	J=1/2	F=3/2	mF=3/2	I=1	S=1/2	>
n=3	L=1	J=1/2	F=1/2	mF=-1/2	I=1	S=1/2	>
n=3	L=1	J=1/2	F=1/2	mF=1/2	I=1	S=1/2	>
n=3	L=1	J=1/2	F=3/2	mF=-3/2	I=1	S=1/2	>
n=3	L=1	J=1/2	F=3/2	mF=-1/2	I=1	S=1/2	>
n=3	L=1	J=1/2	F=3/2	mF=1/2	I=1	S=1/2	>
n=3	L=1	J=1/2	F=3/2	mF=3/2	I=1	S=1/2	>
n=3	L=1	J=3/2	F=1/2	mF=-1/2	I=1	S=1/2	>
n=3	L=1	J=3/2	F=1/2	mF=1/2	I=1	S=1/2	>
n=3	L=1	J=3/2	F=3/2	mF=-3/2	I=1	S=1/2	>
n=3	L=1	J=3/2	F=3/2	mF=-1/2	I=1	S=1/2	>
n=3	L=1	J=3/2	F=3/2	mF=1/2	I=1	S=1/2	>
n=3	L=1	J=3/2	F=3/2	mF=3/2	I=1	S=1/2	>
n=3	L=1	J=3/2	F=5/2	mF=-5/2	I=1	S=1/2	>
n=3	L=1	J=3/2	F=5/2	mF=-3/2	I=1	S=1/2	>
n=3	L=1	J=3/2	F=5/2	mF=-1/2	I=1	S=1/2	>
n=3	L=1	J=3/2	F=5/2	mF=1/2	I=1	S=1/2	>
n=3	L=1	J=3/2	F=5/2	mF=3/2	I=1	S=1/2	>
n=3	L=1	J=3/2	F=5/2	mF=5/2	I=1	S=1/2	>
n=3	L=2	J=3/2	F=1/2	mF=-1/2	I=1	S=1/2	>
n=3	L=2	J=3/2	F=1/2	mF=1/2	I=1	S=1/2	>
n=3	L=2	J=3/2	F=3/2	mF=-3/2	I=1	S=1/2	>
n=3	L=2	J=3/2	F=3/2	mF=-1/2	I=1	S=1/2	>
n=3	L=2	J=3/2	F=3/2	mF=1/2	I=1	S=1/2	>
n=3	L=2	J=3/2	F=3/2	mF=3/2	I=1	S=1/2	>
n=3	L=2	J=3/2	F=5/2	mF=-5/2	I=1	S=1/2	>
n=3	L=2	J=3/2	F=5/2	mF=-3/2	I=1	S=1/2	>
n=3	L=2	J=3/2	F=5/2	mF=-1/2	I=1	S=1/2	>
n=3	L=2	J=3/2	F=5/2	mF=1/2	I=1	S=1/2	>

	n=3	L=2	J=3/2	F=5/2	mF=3/2	I=1	S=1/2	>
	n=3	L=2	J=3/2	F=5/2	mF=5/2	I=1	S=1/2	>
	n=3	L=2	J=5/2	F=3/2	mF=-3/2	I=1	S=1/2	>
	n=3	L=2	J=5/2	F=3/2	mF=-1/2	I=1	S=1/2	>
	n=3	L=2	J=5/2	F=3/2	mF=1/2	I=1	S=1/2	>
	n=3	L=2	J=5/2	F=3/2	mF=3/2	I=1	S=1/2	>
	n=3	L=2	J=5/2	F=5/2	mF=-5/2	I=1	S=1/2	>
	n=3	L=2	J=5/2	F=5/2	mF=-3/2	I=1	S=1/2	>
	n=3	L=2	J=5/2	F=5/2	mF=-1/2	I=1	S=1/2	>
	n=3	L=2	J=5/2	F=5/2	mF=1/2	I=1	S=1/2	>
	n=3	L=2	J=5/2	F=5/2	mF=3/2	I=1	S=1/2	>
	n=3	L=2	J=5/2	F=5/2	mF=5/2	I=1	S=1/2	>
	n=3	L=2	J=5/2	F=7/2	mF=-7/2	I=1	S=1/2	>
	n=3	L=2	J=5/2	F=7/2	mF=-5/2	I=1	S=1/2	>
	n=3	L=2	J=5/2	F=7/2	mF=-3/2	I=1	S=1/2	>
	n=3	L=2	J=5/2	F=7/2	mF=-1/2	I=1	S=1/2	>
	n=3	L=2	J=5/2	F=7/2	mF=1/2	I=1	S=1/2	>
	n=3	L=2	J=5/2	F=7/2	mF=3/2	I=1	S=1/2	>
	n=3	L=2	J=5/2	F=7/2	mF=5/2	I=1	S=1/2	>
	n=3	L=2	J=5/2	F=7/2	mF=7/2	I=1	S=1/2	>

Annexe B

Éléments de matrice de l'hamiltonien de structure hyperfine

L'hamiltonien de structure hyperfine, déduit de l'hamiltonien de Pauli dans le cas d'un potentiel dipolaire magnétique, est d'après la section I.5 :

$$H_{\mathcal{P},DM} = -\frac{c^2}{2E_0}(\mathbf{p} \cdot \mathbf{U}_{DM} + \mathbf{U}_{DM} \cdot \mathbf{p}) - i\frac{c^2}{E_0}\mathbf{S} \cdot (\mathbf{p} \times \mathbf{U}_{DM})$$

Nous pouvons détailler cette expression au travers des relations suivantes [COHEN-TANNOUJJI 1973b, § A_{XII}], en notant $\mathbf{e}_r = \mathbf{r}/r$:

$$\begin{aligned} \mathbf{p} \cdot \left(\frac{\mathbf{e}_r \times \mathbf{I}}{r^2} \right) &= \left(\frac{\mathbf{e}_r \times \mathbf{I}}{r^2} \right) \cdot \mathbf{p} = -\frac{\mathbf{I} \cdot \mathbf{L}}{r^3} \\ -i\mathbf{p} \times \left(\frac{\mathbf{e}_r \times \mathbf{I}}{r^2} \right) &= \frac{2}{3} \frac{\delta(r)}{r^2} \mathbf{I} + \frac{3(\mathbf{e}_r \cdot \mathbf{I})\mathbf{e}_r - \mathbf{I}}{r^3} \end{aligned}$$

On obtient alors, en notant $\mathbf{X} = 3(\mathbf{e}_r \cdot \mathbf{S})\mathbf{e}_r - \mathbf{S}$:

$$H_{\mathcal{P},DM} = (1 + a_N) \frac{\alpha \hbar c^3}{E_0 E_N} \left(\frac{2}{3} \frac{\delta(r)}{r^2} \mathbf{I} \cdot \mathbf{S} + \frac{\mathbf{I} \cdot \mathbf{L} + \mathbf{I} \cdot \mathbf{X}}{r^3} \right)$$

Partie angulaire

Les éléments de matrice du produit scalaire $\mathbf{I} \cdot \mathbf{T}$ entre \mathbf{I} et un quelconque tenseur \mathbf{T} d'ordre 1 valent, dans la base couplée $\{|(LJ)Fm_F\rangle\}$ [EDMONDS 1957, § 7.1] :

$$\langle (L'J')F'm'_F | \mathbf{I} \cdot \mathbf{T} | (LJ)Fm_F \rangle = (-1)^{I+J'+F} \delta_{F'F} \delta_{m'_F m_F} \begin{Bmatrix} F & J' & I \\ 1 & I & J \end{Bmatrix} \langle I || \mathbf{I} || I \rangle \langle L'J' || \mathbf{T} || LJ \rangle$$

Pour $\mathbf{T} = \mathbf{L}$ ou \mathbf{S} , l'élément de matrice réduit requis vaut :

$$\langle L'J' || \mathbf{L} || LJ \rangle = (-1)^{S+L+J'+1} \sqrt{(2J'+1)(2J+1)} \begin{Bmatrix} L' & J' & S \\ J & L & 1 \end{Bmatrix} \langle L || \mathbf{L} || L \rangle / \hbar \delta_{L'L}$$

$$\langle L'J' \| \mathbf{S} \| LJ \rangle = (-1)^{S+L+J'+1} \sqrt{(2J'+1)(2J+1)} \begin{Bmatrix} S & J' & L \\ J & S & 1 \end{Bmatrix} \langle S \| \mathbf{S} \| S \rangle / \hbar \delta_{L'L}$$

L'opérateur \mathbf{X} est d'ordre $k = 1$, et peut s'écrire comme le produit tensoriel de \mathbf{S} et d'un tenseur d'ordre 2 : $\mathbf{X} = -\sqrt{10}[\mathbf{S} \times \mathbf{C}^{(2)}]^{(k)}$ [TREES 1953]. L'élément de matrice réduit qui nous intéresse, pour $\mathbf{T} = \mathbf{X}$, vaut alors :

$$\langle L'J' \| \mathbf{X} \| LJ \rangle = -\sqrt{10} \sqrt{(2k+1)(2J'+1)(2J+1)} \begin{Bmatrix} S & 1 & S \\ L' & 2 & L \\ J' & k & J \end{Bmatrix} \langle S \| \mathbf{S} \| S \rangle \langle L' \| \mathbf{C}^{(2)} \| L \rangle$$

$$\text{avec } \langle L' \| \mathbf{C}^{(2)} \| L \rangle = (-1)^{L'} \sqrt{(2L'+1)(2L+1)} \begin{pmatrix} L' & 2 & L \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$$

Enfin, pour $\mathbf{T} = \mathbf{L}$, \mathbf{S} ou \mathbf{I} : $\langle T \| \mathbf{T} \| T \rangle / \hbar = \sqrt{T(T+1)(2T+1)}$.

Partie radiale

Les éléments de matrice de $\delta(r)/r^2$ (ou, de façon équivalente, de $4\pi\delta(\mathbf{r})$) peuvent être calculés simplement dans une base d'états stationnaires de Schrödinger telle que $\{|nLm_Lm_{SM_I}\rangle\}$. Ils sont diagonaux, et nuls pour $L \neq 0$:

$$\left\langle \frac{\delta(r)}{r^2} \right\rangle = \int \frac{\delta(r)}{r^2} R_{nL}^2(r) r^2 dr = |R_{nL}(0)|^2 = \frac{4}{a_r^3 n^3} \delta_{0,L} \quad (\text{B.1})$$

Ceux de $1/r^3$, diagonaux également, sont nuls si $L = 0$, et valent sinon :

$$\langle r^{-3} \rangle = \int dr r^{-1} R_{nL}^2(r) = \frac{1}{a_r^3 n^3 L(L+1)(L+1/2)}$$

Les états stationnaires de Schrödinger présentent une séparation des variables radiales et angulaires : dans chacun des termes de $H_{\mathcal{P},DM}$, la partie ne dépendant que de r est donc factorisable.

Reformulation de l'hamiltonien

On peut remarquer que, dans la base $\{|nLJFm_F\rangle\}$, les éléments de matrice diagonaux de $\mathbf{I} \cdot \mathbf{L}/r^3$ sont liés à ceux de $\mathbf{I} \cdot \mathbf{X}/r^3$, et de même pour les éléments non diagonaux :

$$\left(\frac{\mathbf{I} \cdot \mathbf{L}}{r^3} \right)_{i=j} = (2\kappa - 1) \left(\frac{\mathbf{I} \cdot \mathbf{X}}{r^3} \right)_{i=j} \quad \text{et} \quad \left(\frac{\mathbf{I} \cdot \mathbf{L}}{r^3} \right)_{i \neq j} = 2 \left(\frac{\mathbf{I} \cdot \mathbf{X}}{r^3} \right)_{i \neq j} \quad (\text{B.2})$$

Ici, $\kappa = (-1)^{J-L+1/2}(J+1/2)$. L'hamiltonien $H_{\mathcal{P},DM}$ peut ainsi s'écrire, dans la base $\{|nLJFm_F\rangle\}$, comme la somme d'un terme diagonal et d'un terme strictement non diagonal, dont les expressions sont relativement simples. On définira, pour les exprimer :

$$A_N = (1 + a_N) \alpha^4 \frac{E_r^3}{E_0 E_N} \quad \text{et} \quad \Theta_{nLJ} = \frac{1}{n^3 J(J+1)(L+1/2)}$$

Les éléments de matrice du terme diagonal peuvent s'écrire d'une même façon pour toutes les valeurs de L . Sachant que $2 \langle \mathbf{I} \cdot \mathbf{J} \rangle = \langle \mathbf{F}^2 - \mathbf{I}^2 - \mathbf{J}^2 \rangle = \hbar^2 [F(F+1) - I(I+1) - J(J+1)]$, ils valent :

$$E_{\mathcal{F}} = A_N \Theta_{nLJ} \langle \mathbf{I} \cdot \mathbf{J} \rangle / \hbar^2$$

Les éléments de matrice du terme non diagonal valent quant à eux :

$$\langle nLJ'F'm'_F | H_{\mathcal{P},DM}^{non\,diag.} | nLJFm_F \rangle = \frac{3}{2} A_N \frac{\langle \mathbf{I} \cdot \mathbf{L} \rangle / \hbar^2}{n^3 L(L+1)(L+1/2)} (1 - \delta_{J'J})$$

Annexe C

Algorithme d'asservissement en phase et en fréquence

Cette annexe présente succinctement l'algorithme décrit section VI.7.3, rédigé en pseudo-code python et utilisant les bibliothèques *myhdl* et *odeon*. Cet algorithme, très simple, peut donc être utilisé par la carte *RedPitaya* pour générer un signal d'erreur permettant d'asservir en phase ou en fréquence un signal d'entrée RF. La configuration ci-dessous correspond au cas élémentaire d'une stabilisation vis-à-vis de l'horloge interne de la carte.

Dans notre expérience, le signal d'entrée est issu du battement de deux lasers ; il est ici décrit par la variable `input`, actualisée à chaque cycle d'horloge. Le signal d'erreur résultant est décrit par la variable `output` ; dans notre expérience, il est encore filtré et amplifié avant d'être converti en un signal analogique en sortie de la *RedPitaya*.

Les variables `N`, `setpoint`, `saturation`, `phase_lock` et `frequency_lock` sont des registres, pilotables depuis le processeur de la *RedPitaya*, définissant respectivement le facteur de la division de fréquence effectuée par l'algorithme, la valeur de consigne de l'asservissement, sa valeur de saturation, et le type d'asservissement choisi. Les autres variables sont des signaux internes au circuit logique : en particulier, `n` compte le nombre modulo `N` de fronts montants du signal d'entrée, et `phi` la phase accumulée durant `N` oscillations.

```
@always(clk.posedge)
def input_posedge_logic():
    previous_input_value.next = input
    if input>=0 and previous_input_value<0:
        input_posedge.next = 1
    else:
        input_posedge.next = 0
```

```
@always(clk.posedge)
def phi_counter_logic():
    if input_posedge==1 and n==N:
        phi.next = 1
    else:
```

```
phi.next = phi + 1
```

```
@always(input_posedge)
```

```
def n_counter_logic():
```

```
    if n==N:
```

```
        n.next = 1
```

```
    else:
```

```
        n.next = n + 1
```

```
@always(input_posedge)
```

```
def error_signal_logic():
```

```
    if n==N:
```

```
        if phase_lock:
```

```
            error.next = output + phi - setpoint
```

```
        elif frequency_lock:
```

```
            error.next = phi - setpoint
```

```
@always(clk_posedge)
```

```
def saturation_logic():
```

```
    if error>saturation:
```

```
        output.next = saturation
```

```
    elif error<-saturation:
```

```
        output.next = -saturation
```

```
    else:
```

```
        output.next = error
```

Annexe D

Calcul de la constante de Rydberg à partir de deux fréquences de transition

Comme présenté partie I, l'électrodynamique quantique permet de calculer les niveaux d'énergie de la structure fine de l'atome d'hydrogène en fonction des quatre constantes fondamentales que sont R_∞ , r_N , α et μ_{eN} .

Plus précisément, l'énergie d'un état stationnaire de structure fine $|i\rangle$, caractérisé par les nombres quantiques n_i , l_i et j_i , peut être exprimée sous la forme suivante, où les fonctions a et b dépendent de α et de μ_{eN} , mais pas de R_∞ ni de r_N :

$$E_i = hcR_\infty \left(a(n_i, l_i, j_i) R_\infty^2 r_N^2 \frac{\delta_{l_i 0}}{n_i^3} + b(n_i, l_i, j_i) \right)$$

À l'ordre principal en puissances de α , a peut en fait être considérée comme constante, et vaut $\frac{4}{3}(4\pi)^2 \alpha^{-2} (1 + \mu_{eN})^{-3}$. Les valeurs qui nous intéressent de b sont listées table D.1.

La fréquence d'une transition entre deux états stationnaire $|i\rangle$ et $|j\rangle$ vaut alors, en définissant $\Delta b_{ij} = b(n_j, l_j, j_j) - b(n_i, l_i, j_i)$, et considérant pour la suite que $E_i < E_j$:

$$f_{ij} = cR_\infty \left(a R_\infty^2 r_N^2 \left(\frac{\delta_{l_j 0}}{n_j^3} - \frac{\delta_{l_i 0}}{n_i^3} \right) + \Delta b_{ij} \right).$$

En posant $1/c_{ij} = \delta_{l_j 0}/n_j^3 - \delta_{l_i 0}/n_i^3$, et en considérant deux fréquences de transition différentes f_{12} et f_{34} , on peut ainsi former une quantité indépendante de R_∞ et de r_p :

$$\frac{c_{12}f_{12} - c_{34}f_{34}}{cR_\infty} = c_{12}\Delta b_{12} - c_{34}\Delta b_{34}.$$

On peut donc déterminer la valeur de la constante de Rydberg, et l'incertitude associée, en mesurant f_{12} et f_{34} (d'incertitudes respectives $u(f_{12})$ et $u(f_{34})$), et en considérant comme exacte la théorie de l'électrodynamique quantique :

$$cR_\infty = \frac{c_{12}f_{12} - c_{34}f_{34}}{c_{12}\Delta b_{12} - c_{34}\Delta b_{34}} \quad \text{et} \quad u(cR_\infty)^2 = \frac{c_{12}^2 f_{12}^2 + c_{34}^2 f_{34}^2}{(c_{12}\Delta b_{12} - c_{34}\Delta b_{34})^2}.$$

Niveau	b (protium)	b (deutérium)
$1S_{1/2}$	-0.9994665087101	-0.9997384582091
$2S_{1/2}$	-0.2498677608212	-0.2499357492973
$3S_{1/2}$	-0.1110520149304	-0.1110822320153

Table D.1 Valeurs du coefficient b , pour les niveaux $1S$, $2S$ et $3S$ du protium et du deutérium. Les valeurs de α et μ_{eN} utilisées sont celles de l'ajustement 2018 du CODATA.

Connaissant R_∞ , on peut alors déterminer r_N :

$$r_N^2 = \frac{c_{ij}}{aR_\infty^2} \left(\frac{f_{ij}}{cR_\infty} - \Delta b_{ij} \right)$$

$$\text{et } u(r_N)^2 = u(f_{ij})^2 \left(\frac{\partial r_N}{\partial f_{ij}} \right)^2 + u(R_\infty)^2 \left(\frac{\partial r_N}{\partial R_\infty} \right)^2$$

$$\text{avec } \frac{\partial r_N}{\partial f_{ij}} = \frac{c_{ij}}{2r_N a c R_\infty^3}, \quad \frac{\partial r_N}{\partial R_\infty} = -\frac{c_{ij}}{2r_N a R_\infty^3} \left(\frac{3f_{ij}}{cR_\infty} - 2\Delta b_{ij} \right)$$

Annexe E

High-Resolution Hydrogen Spectroscopy and The Proton Radius Puzzle

L'article reproduit ci-après, paru dans *Annalen der Physik* en 2019, est une introduction à l'analyse des campagnes de mesure réalisées par Sandrine Galtier et Hélène Fleurbaey en 2013 et 2016, et consacrées à la transition $1S - 3S$ du protium. Il vise en particulier à décrire cette analyse de manière plus exhaustive que dans la publication initiale dans *Physical Review Letters* du résultat associé [FLEURBAEY 2018].

High-Resolution Hydrogen Spectroscopy and The Proton Radius Puzzle

Simon Thomas,* H el ene Fleurbaey, Sandrine Galtier, Lucile Julien, Fran ois Biraben, and Fran ois Nez

High resolution spectroscopy of the hydrogen atom takes on particular importance in the new SI, as it allows to accurately determine fundamental constants, such as the Rydberg constant and the proton charge radius. Recently, the second most precisely measured transition frequency in hydrogen, $1S - 3S$, is obtained by our group. In the context of the Proton Radius Puzzle, this result calls for further investigation.

accuracy, only the determination of R_∞ and r_p is actually critically dependent from such a comparison. In practice, two transition frequencies are thus needed to jointly extract values of these two constants.

Reversely, assessing the consistency of the different values of R_∞ and r_p obtained from the spectroscopy of different transitions therefore provides a test of QED.

1. Introduction

1.1. Determining R_∞ and r_p

As the simplest atomic system, the hydrogen atom can be described with great accuracy by the theory of Quantum Electrodynamics (QED). More precisely, the fine structure of its energy levels can be calculated as a function of a reduced number of fundamental constants as:

$$E_{njl} = -\frac{hc R_\infty}{1 + \frac{m_e}{m_p}} \left[\frac{1}{n^2} + F_{njl} \left(\alpha, \frac{m_e}{m_p}, \frac{m_e}{m_\mu} \right) - \delta_{10} \frac{C_{NS}}{n^3} r_p^2 \right] \quad (1)$$

where R_∞ is the Rydberg constant, α the fine structure constant, m_e/m_p and m_e/m_μ the electron-to-proton and electron-to-muon mass ratios and r_p^2 the second moment of the charge distribution of the proton. At first order, the nuclear size contribution is, for S states, $C_{NS} = \frac{4}{3} (4\pi)^2 R_\infty^2 (1 + \frac{m_e}{m_p})^{-2} \alpha^{-2}$.

Assuming QED to be correct, values of those fundamental constants can be deduced from the comparison between the theory and high resolution spectroscopy measurements. As α and the mass ratios can be measured by other means with sufficient

1.2. The Proton Radius Puzzle

A disagreement among determinations of the proton radius r_p was first noticed in 2010.^[1,2] The CREMA collaboration, then achieving the laser spectroscopy of muonic hydrogen, measured a value of r_p that was ten times more precise, but also 4% smaller than the previously accepted value (**Figure 1**). The corresponding discrepancy is 5.6σ , as compared to the CODATA-2014 recommended value, which aggregates all precise former measurements in hydrogen spectroscopy and electron-to-proton scattering.^[3]

This disagreement, also known as the *Proton Radius Puzzle*, has since then stimulated an intense research activity.^[4] Recently, two hydrogen spectroscopy results have notably been published: the $2S - 4P$ transition frequency, measured at MPQ,^[5] and the $1S - 3S$ transition frequency that we measured at LKB.^[6] When combined with the precisely measured $1S - 2S$ transition frequency,^[7] the first one yields a value of the proton radius in agreement with the muonic hydrogen value, whereas the second one is consistent with the CODATA-2014 value. As the disagreement persists, the hypothesis of an unsuspected systematic effect having affected hydrogen spectroscopy measurements cannot be discarded.

1.3. Spectroscopy of The $1S - 3S$ Transition

The $1S - 3S$ transition frequency of the hydrogen atom has been measured in our group since the late nineties.^[8,9] It is now the second most precisely studied transition in hydrogen, after the $1S - 2S$ transition. Forbidden as a dipolar electric transition, it can be excited by two counter-propagating photons, therefore without Doppler broadening. This allows us to almost access the natural linewidth of the transition, $\Gamma \approx 1$ MHz, and to determine its frequency with an uncertainty of a few kHz (below 10^{-12} in relative uncertainty).

S. Thomas, H. Fleurbaey^[+], S. Galtier^[++], L. Julien, F. Biraben, F. Nez
Kastler Brossel Laboratory
Sorbonne Universit e
CNRS
ENS - Universit e PSL
Coll ege de France
4 place Jussieu, case 74, 75252, Paris cedex 05, France
E-mail: simon.thomas@lkb.upmc.fr

^[+]Present address: National Institute of Standards and Technology, 100 Bureau Drive, Gaithersburg, MD 20899, USA

^[++]Present address: Institut Lumi ere Mati ere, UMR 5306 Universit e Lyon 1-CNRS, Universit e de Lyon, 69622 Villeurbanne, cedex, France

 The ORCID identification number(s) for the author(s) of this article can be found under <https://doi.org/10.1002/andp.201800363>

DOI: 10.1002/andp.201800363

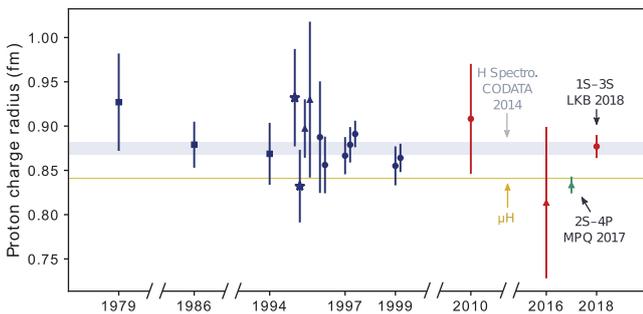


Figure 1. Proton charge radius values from H spectroscopy, with 1σ error-bars. Squares are RF measurements of the $2S - 2P$ transition, achieved in Harvard and University of Sussex. Combinations of the $1S - 2S$ transition with other optical transitions obtained at Yale, MPQ and LKB are represented with stars, triangles, and circles, respectively. The hydrogen spectroscopy measurements included in the CODATA-2014 adjustment are in blue; their average corresponds to the light blue bar. The $1S - 3S$ transition appears in red. The thin golden bar is the result from muonic hydrogen spectroscopy.

Should the Proton Radius Puzzle be reformulated as the search for a potential systematic effect, the spectroscopy of the $1S - 3S$ transition is to play a crucial role in this search, as the only ongoing experiment in agreement with the formerly obtained values of R_∞ and r_p . In this regard, after a brief review of the principle of our experiment, we will present in what follows the current status of our work.

2. Experimental Section

2.1. Experimental Setup

Figure 2 displays a schematic overview of the experiment conducted in Paris. An effusive beam of atomic hydrogen was produced at room temperature by a radiofrequency (RF) discharge and directed, through a nozzle, colinearly with a laser beam at 205 nm. Propagating in a Fabry–Perot cavity under vacuum, this laser beam undergoes a frequency scan, performed by an acousto-optic modulator (AOM), in order to excite the $1S_{1/2}^{F=1} - 3S_{1/2}^{F=1}$ transition of the atoms. The resonance was then observed by collecting, in a photomultiplier (PM), the photons at 656 nm

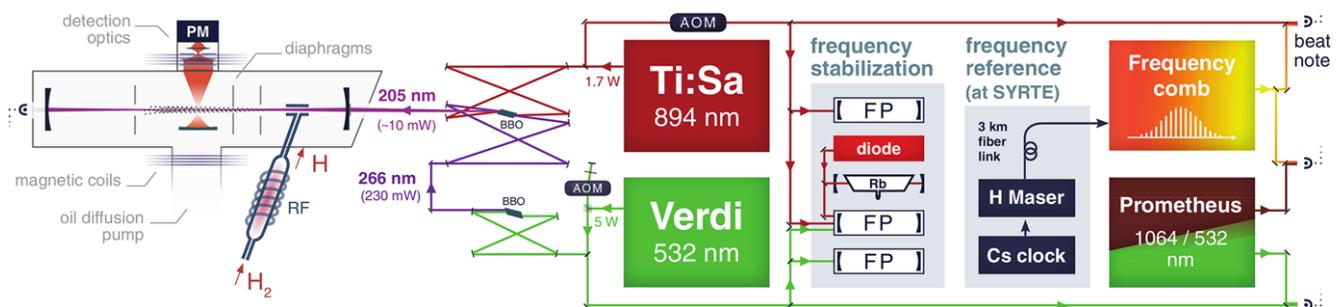


Figure 2. Simplified view of the experimental setup.

emitted by the fluorescence from the $3S$ level to the $2P$ level. Figure 4 shows an example of the recorded signal.

The laser beam at 205 nm was obtained by sum frequency generation in a BBO crystal, between a TiSa laser at 894 nm and a frequency-doubled Verdi laser at 532 nm. This unique scheme provides between 10 and 15 mW of cw light at 205 nm.^[10] The frequency stability of those lasers was ensured by successive locks to stable Fabry–Perot cavities (FP) and to a two-photon transition of Rubidium.^[11] This locking scheme feeds a double-pass AOM which provides an additional phase stabilization to the 532-nm laser beam.

An optical frequency comb is used to measure the frequencies of the two laser sources at 532 and 894 nm. It was referenced to a hydrogen maser, whose frequency is continuously monitored relatively to the Cs clock at the LNE-SYRTE, Observatoire de Paris.^[12] A frequency-doubled Nd:YAG laser emitting both at 1064 and 532 nm (Prometheus) was used as a transfer laser between our 532-nm laser source and the frequency comb, optimized in the infrared range.

2.2. Systematic Effects

Although cancelled at first order, thanks to the counter-propagating configuration, the Doppler shift on the measured transition frequency is at second order not negligible:

$$\Delta_{SOD} = -\frac{v^2}{2c^2} \nu_L \quad (2)$$

with v the atomic velocity and ν_L the laser frequency. It is our main systematic effect: for hydrogen atoms with an average velocity of 3 km/s, the second-order Doppler shift (SOD) amounts to about -135 kHz, that is eighty times larger than the currently-achieved uncertainty. It was corrected from our experimental spectra by fitting them with a theoretical lineshape, which was integrated over the velocity distribution of our atomic beam. Section (3) describes this process.

Two other smaller effects, a light shift and a pressure shift, were corrected by experimental extrapolation to respectively zero laser power and zero hydrogen pressure. They typically amount to less than 10 kHz. Eventually, the measured transition frequency was corrected so as to relate to the French *mise en pratique* of the second.

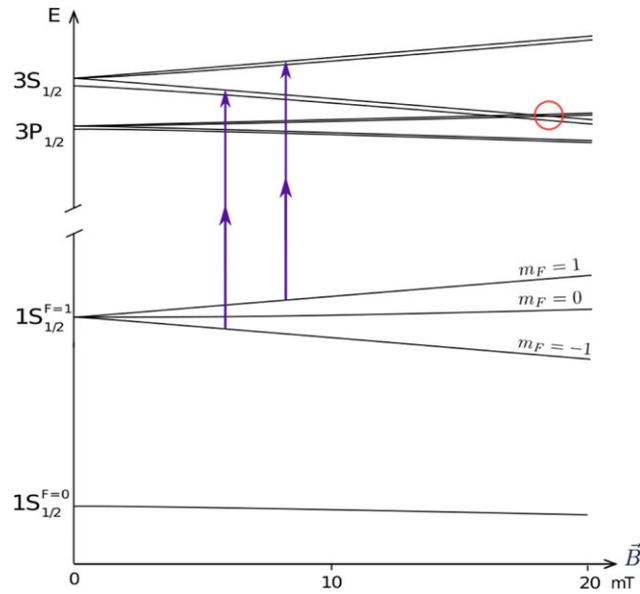


Figure 3. Zeeman diagram of the energy levels of interest of the hydrogen atom. Encircled is the anti-crossing of which the motional Stark method takes advantage. Conservation of angular momentum implies that the transitions driven by two counter-propagating photons couple states of same (F, m_F) . The $(F = 1, m_F = 0)$ subtransition is sensitive to the Zeeman effect: the measurement of its frequency allows to calibrate the value of the applied \vec{B} field.^[15] The $(F = 1, m_F = \pm 1)$ subtransitions (double arrows) are at first order not Zeeman-shifted. Because of their natural linewidth, they cannot be resolved. They are the ones we measure to determine the atomic velocity distribution.

3. Second-Order Doppler Shift

3.1. Motional Stark Shift Method

The correction of the SOD requires the determination of the atomic velocity distribution within our hydrogen beam. To this end, we apply a magnetic field \vec{B} perpendicular to the direction of the beam.^[13,14] The motional electric field perceived by the atoms induces a quadratic Stark effect, that shifts their energy levels depending on their velocity \vec{v} :

$$\Delta_{Stark} \propto |\vec{v} \times \vec{B}|^2 \quad (3)$$

This shift is magnified at the vicinity of an anticrossing between energy levels coupled by the Stark effect. The Zeeman effect leads to such an anticrossing, between the $3S_{1/2}^{F=1, m_F=-1}$ and the $3P_{1/2}^{F=1, m_F=0}$ levels, at $B = 18$ mT (**Figure 3**).

The variation of this motional Stark shift with the applied magnetic field carries information on the velocity of the atoms. It is thus possible to adjust the parameters of a theoretical velocity distribution, by fitting experimental spectra obtained at different B values.

3.2. Theoretical Lineshape

The theoretical lineshape, with which the experimental spectra are fitted, is classically obtained by calculating the fluorescence

probability of the hydrogen atom as a function of the laser frequency $\nu_L = \omega_L/2\pi$.^[18] The hydrogen atom is here considered as having a velocity \vec{v} in the laboratory frame, experiencing an homogeneous magnetic field \vec{B} perpendicular to \vec{v} . It can be described by its density matrix, that verifies the Optical Bloch Equation:

$$\frac{d\rho}{dt} = \frac{i}{\hbar} [\rho, \hat{H}_0 + \hat{H}_S + \hat{H}_Z + \hat{H}_{2\gamma}] + \left\{ \frac{d\rho}{dt} \right\}_{rel} \quad (4)$$

The considered hamiltonian can be decomposed as a sum of four terms. First, \hat{H}_0 describes the fine and hyperfine structure of the unperturbed atom, as a function of the unknown $1S - 3S$ centroid transition frequency ν_{1S-3S} . Second, the motional Stark effect is accounted for by $\hat{H}_S = -q\vec{r} \cdot (\vec{v} \times \vec{B})$ where \vec{r} is the position operator and q the charge of the electron. Third, Zeeman and diamagnetic effects are described by:

$$\hat{H}_Z = -\frac{q\vec{B}}{2} \cdot \left(\frac{\vec{L}}{\mu} + \frac{g_s\vec{S}}{m_e} - \frac{g_N\vec{I}}{m_p} \right) + \frac{(q\vec{r} \times \vec{B})^2}{8\mu} \quad (5)$$

where μ is the reduced mass of the atomic system, and g_s and g_N are the Landé g-factor of the bound electron and of the proton. With respect to the free electron g-factor g_e , a relativistic correction is applied, depending on the principal quantum number n of the involved state: $g_s = g_e(1 - \alpha^2/3n^2)$.^[16] And fourth, the two-photon transition hamiltonian is, in the rotating wave approximation and taking into account the SOD:

$$\hat{H}_{2\gamma} = \frac{\hbar\Omega_{eg}}{2} e^{-i\omega_L(2+\frac{v^2}{c^2})t} |e\rangle\langle g| + \frac{\hbar\Omega_{eg}}{2} e^{i\omega_L(2+\frac{v^2}{c^2})t} |g\rangle\langle e| \quad (6)$$

where $|g\rangle$ and $|e\rangle$ are the ground and excited states of the atom between which the two-photon selection rule is verified ($\Delta F = 0$, $\Delta m_F = 0$). The two-photon Rabi frequency can be expressed in the dipole approximation as:^[17]

$$\Omega_{eg} = \frac{q^2 E^2}{\hbar^2} \sum_k \frac{\langle e|\vec{r} \cdot \vec{\epsilon}|k\rangle \langle k|\vec{r} \cdot \vec{\epsilon}|g\rangle}{\omega_L - \omega_{kg}} \quad (7)$$

where E and ϵ are the amplitude and polarization of the laser field. In our case, ϵ is colinear to the direction of the applied magnetic field, taken as our quantization axis. ω_{kg} denotes the angular transition frequency between the levels $|g\rangle$ and $|k\rangle$. We will consider Ω to be independent of ω_L , in the absence of energy levels at resonance with the laser frequency.

In our case, we are only interested in calculating the density matrix coefficients corresponding to energy levels of principal quantum number $n = 3$. With this restriction, the relaxation due to spontaneous emission, as described by the Lindblad operator, becomes:

$$\left\{ \frac{d\rho_{ij}}{dt} \right\}_{rel} = -\frac{\Gamma_i + \Gamma_j}{2} \rho_{ij} \quad (8)$$

with Γ_i the decay rate of the level $|i\rangle$.

In the rotating wave approximation, equation (4) yields a system of equations with time-independent coefficients, that can be directly solved in the stationary regime.

Once the stationary state of the atom is known, and neglecting in first approximation quantum interference effects, the fluorescence probability per steradian and per unit of time can be calculated as:

$$F_{f_{luo}} = \frac{\alpha}{2\pi c^2} \sum_{f, \vec{\epsilon}} \sum_i \omega_{if}^3 |\langle f | \vec{r} \cdot \vec{\epsilon} | i \rangle|^2 \rho_{ii} \quad (9)$$

Here, i and f denote the initial and final states between which radiative decay can occur and which lead to the emission of a photon with a wavelength and a polarization $\vec{\epsilon}$ detectable by our apparatus. Again in first approximation, we will only consider here the photons emitted along the axis of our photomultiplier. These approximations are further discussed below.

Eventually, this fluorescence is convoluted with a function describing an additional broadening, and integrated over the velocity distribution. A $1/v$ factor accounts for the lower excitation probability of the atoms experiencing a smaller interaction time with the laser beam:

$$F_{B, \sigma, v_0} = \int \frac{dv}{v} f_{\sigma, v_0}(v) F_{f_{luo}}(v_L; \nu_{1S-3S}, v, B) * F_{\Gamma}(v_L) \quad (10)$$

A global treatment of the line broadening is performed by employing an ad-hoc expression for the broadening function F_{Γ} . Following ref. [19], finite transit time induces a double-exponential shaped broadening, while collisional processes are essentially described by a lorentzian shape. As the latter accurately fits the broadening we experimentally observe, it is the one we used in our analysis. A more general function, such as a Voigt or pseudo-Voigt function, can as well be chosen, so as to treat in a less model-dependent manner potential sources of broadening. It was verified that such a choice does not change the final result by more than 100 Hz, and that the gaussian component of the best fitting pseudo-Voigt function (sum of a gaussian and a lorentzian profile) is at most 10%.

3.3. Quantum Interference Effect

A more complete calculation of the fluorescence probability involves interference terms, that induce an asymmetry of the lineshape, depending on the angle of emission of the fluorescence photon.^[20,21] In the case of the $1S - 3S$ transition, this effect is weak: integrated over our detection geometry, at zero magnetic field, it amounts to 0.6 kHz.^[22] It is thus simply included in our theoretical lineshape by shifting the considered value of ν_{1S-3S} by $+0.6(2)$ kHz.

3.4. Fit of A Theoretical Velocity Distribution

The atomic velocity distribution of the hydrogen beam can be modeled as a thermal effusive beam, with correction factors accounting for collisional processes.^[23] A function P , parameterized with the adequate Knudsen number, detailed in ref. [24], describes the effect of interactions occurring within the nozzle,

while an exponential decay is used to model an additional depletion of slow atoms:^[25]

$$f_{\sigma, v_0}(v) \propto v^3 e^{-\frac{v^2}{2\sigma^2}} P(v/\sigma) e^{-\frac{v_0}{v}} \quad (11)$$

Such correction factors improve the characterization of the velocity distribution, reducing by 3 to 6% the χ^2 of the fit to all experimental data. Nevertheless, the parameter values of these correction factors have a limited influence on the final result. For instance, in order to see a variation of 1 kHz of ν_{1S-3S} fitted using f_{σ, v_0} , a variation of the value of v_0 by 8% would be required, and of the Knudsen number by more than an order of magnitude, while σ would need to vary by 0.5%.

To determine the values of σ and v_0 , all experimental spectra are fitted with a function $c_1 F_{B, \sigma, v_0}(\nu_L; \nu_{1S-3S}, \Gamma) + c_2$, where ν_{1S-3S} , Γ , c_1 and c_2 are left floating, and (σ, v_0) are taken from a grid of N pairs of values. For a given set of spectra, and given values of σ and v_0 , the χ^2 of the values of ν_{1S-3S} obtained for the different spectra is calculated. The resulting surface of $\chi^2(\sigma, v_0)$ can then be fitted with a polynomial. Optimal values (σ^{opt} , v_0^{opt}) are obtained at the minimum χ_{min}^2 of this fitted surface. Their uncertainties are defined so that values of σ and v_0 lying within the uncertainty range verify $\chi^2(\sigma, v_0) \leq \chi_{min}^2 + \text{Max}(1, R_B^2)$, with the Birge ratio defined as $R_B^2 = \chi_{min}^2 / (N - 2)$.^[26]

Once the velocity distribution is known, each experimental spectrum can be again fitted with the theoretical lineshape to yield its corresponding value of ν_{1S-3S} . The uncertainty on ν_{1S-3S} is evaluated in the same manner as for σ or v_0 .

4. Data Analysis

4.1. Data Sets

Two measurement campaigns have been conducted, in 2013 and 2016–2017. More than 2700 experimental spectra of the $1S - 3S$, $F = 1$ transition have been acquired, each one corresponding to a typical integration time of 10 s per frequency point. Details on these recordings can be found in refs. [6,26]. They were performed for various values of hydrogen pressure, laser power, and applied magnetic field, in order to evaluate the aforementioned systematic effects.

The motional Stark shift method was carried out for four different subsets of spectra. Those subsets, thereafter denoted by a, b, c, and d, were respectively recorded in 2013 at $P = 7.5 \times 10^{-5}$ mbar (a); in 2016 and 2017 at $P = 2.7 \times 10^{-5}$ mbar (b and c) and at $P = 2.0 \times 10^{-4}$ mbar (d).

The velocity distribution parameters determined for each subset were used to fit the corresponding spectra with the theoretical lineshape. A fifth subset of spectra was recorded in 2013 at higher pressure values: they were fitted using the velocity distribution parameters of the subset (a), while including in quadrature an additional uncertainty, corresponding to the variability between the four velocity distribution determinations. This added uncertainty entails a correlation between the 2013 and the 2016–2017 data sets, which corresponds to a covariance of 2.6 kHz².

All our frequency measurements are performed with reference to a hydrogen maser, at LNE-SYRTE, which shows a relative daily drift of the order of 10^{-16} as compared to the Cs clock realizing

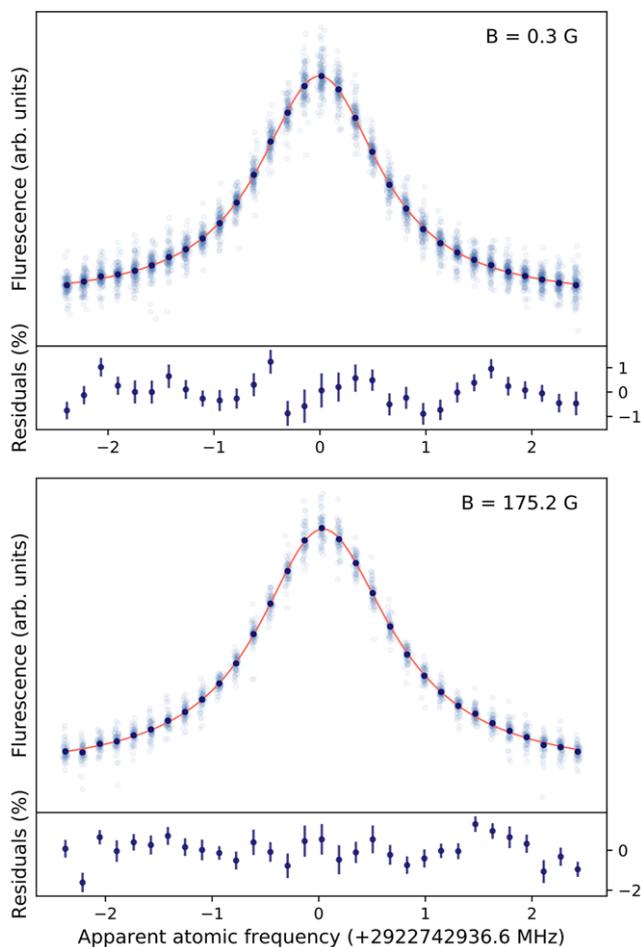


Figure 4. Average of the experimental spectra of the subset (c), obtained at $B = 0.3$ G (124 spectra) and $B = 175.2$ G (61 spectra). For each magnetic field, the average spectrum is fitted with the theoretical lineshape described section 3.2 (red line); the residuals are shown below. Errorbars correspond to the standard deviation of the experimental points that are averaged at each frequency point. These experimental points, integrated each over 10 s, are shown in transparency.

the SI second.^[27] This drift was modeled and corrected for each subset of spectra.

Figure 4 shows the average of the spectra from subset (c) at two different magnetic fields, fitted by our theoretical lineshape. No variability of the experimental lineshape, and notably of its broadening, appears when comparing spectra to their average. Besides, examination of the residuals reveals no identifiable pattern, over all magnetic fields and subsets of spectra. This supports the use of our theoretical lineshape, first to fit the parameters of the theoretical velocity distribution onto the velocity-dependent B -induced frequency shift shown on **Figure 5**; and second to fit all recorded spectra and extract values of ν_{1S-3S} , as illustrated **Figure 6**.

Performing a separate analysis for the aforementioned subsets of spectra allows us to assess, within our uncertainties, the consistency of our outcome and the absence of noticeable drift of our measurements. That these subsets of spectra were recorded at different hydrogen pressure values moreover substantiates the

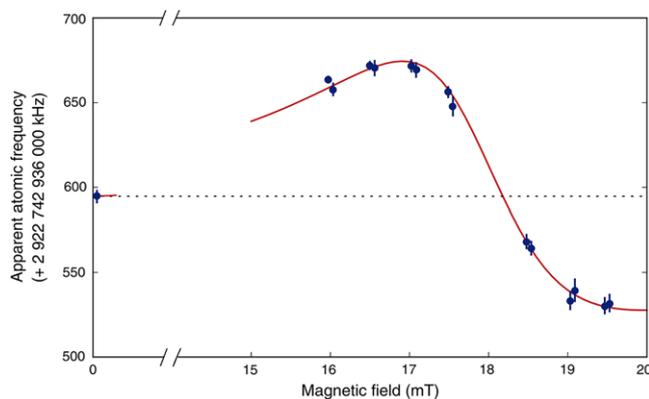


Figure 5. Experimental (dots) and calculated (line) apparent frequency of the $1S - 3S$ ($F = 1, m_F = \pm 1$) transition, as a function of the applied magnetic field \vec{B} . The experimental points correspond to the subset of spectra (c) (see below) fitted by a simple Lorentzian lineshape. The velocity distribution parameters used in the calculation were deduced from the subset (c) with the fitting procedure presented in section 3.4.

choice of a pressure-independent theoretical velocity distribution (**Figure 7**).

4.2. Light and Pressure Shifts

The light shift (LS) and pressure shift (PS) corrections were evaluated independently for the 2013 and the 2016–2017 campaigns. As an illustration, **Table 1** summarizes the average corrections applied for each of the four subsets of spectra previously mentioned. **Figure 8** presents the extrapolation achieved for the 2016–2017 campaign.

First, considering a set of spectra obtained at a given pressure, a linear regression was performed on the values ν_{1S-3S} as a function of an indicator of the light intensity inside the build-up cavity. Two such indicators could be used: the potential difference of the photodiode monitoring the UV power transmitted by the build-up cavity, and the square root of the fluorescence signal height at resonance.

The former has the drawback of being more sensitive to the realignment of the optical cavity. Besides, the photodiode tends to be damaged by the UV light, and it can be required to interface it by a fluorescent medium (in our case, a fluorescein solution). The latter needs to be corrected at non-zero magnetic field, since certain sub-transitions can contribute less to the signal, being Zeeman shifted or Stark broadened. It must also be reevaluated for data sets corresponding to different hydrogen pressure.

As both indicators yielded congruent results, the most precise one was retained for each data set. For the 2013 campaign for instance, the average light shift correction was determined to be $\delta_{LS} = -5.9(1.2)$ kHz using the transmitted power, and $-5.9(1.6)$ kHz using the square root of the signal height.

Once corrected from the light shift, all spectra corresponding to a given hydrogen pressure were then averaged, and a linear regression was performed with respect to the pressure. The hydrogen pressure was monitored by an ionization gauge placed aside the interaction region, only providing a relative measurement. As the gauge was replaced in 2014, no precise comparison

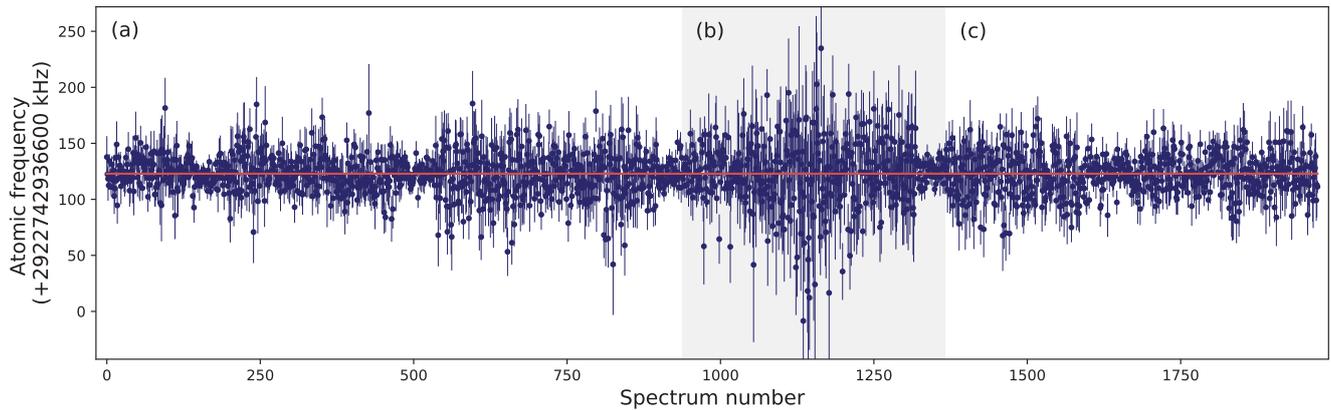


Figure 6. Fitted frequencies ν_{1S-3S} from all spectra of subsets (a), (b) and (c) (see text), after systematic effects correction, in chronological order of acquisition. Each value results from the fit of 31 frequency points, integrated each over 10 s. Among those spectra, 452 were recorded at $B = 0.3$ G, and 1522 between 160 and 195 G: no B -dependent systematic shift could be uncovered. The weighted average of all 1974 values is represented by the red line; the corresponding standard deviation is 0.29 kHz, the χ^2 is 2223.4 and the Birge ratio is 1.06. For the sake of readability, spectra recorded at a higher hydrogen pressure are not shown here, as the associated uncertainties are much larger.

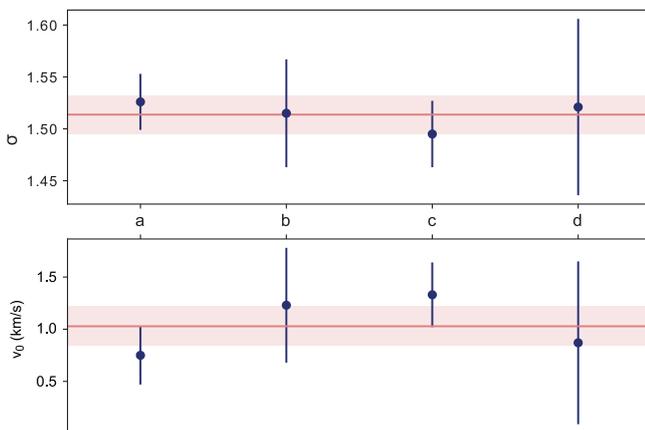


Figure 7. Values of the velocity distribution parameters σ and v_0 determined at different hydrogen pressure values. The χ^2 of the fit yielding such values is 974 for subset (a) (with 936 degrees of freedom); 422 for subset (b) (426 d.o.f.); 821 for subset (c) (606 d.o.f.) and 445 for subset (d) (404 d.o.f.).

could be done between the pressure measurements performed in 2013 and those performed in 2016–2017. Without hydrogen, the background pressure in the vacuum chamber was 2×10^{-6} mbar.

4.3. Investigation on Systematic Effects

Several other systematic effects have been investigated, that appeared to be negligible. Stray electromagnetic fields, in particular, were considered. Compensation coils were placed around the atom-laser interaction chamber. Moreover, the absence of a noticeable residual Zeeman effect was evaluated by frequently reversing the current direction in the coils producing the transverse B field, and by verifying that no shift was thus induced.

A possible residual Stark effect was also studied. The amplitude of the stray electric field that would be required to shift by at most 400 Hz the apparent transition frequency is 10 mV/cm.^[28]

Table 1. Average frequency corrections for each subset of spectra, in kHz. The apparent frequency ν_{app} , as obtained from the simple Lorentzian fit of the experimental spectra, and the final frequency $\nu_{1S-3S}^{F=1}$, are given subtracted from 2 922 742 936 000 kHz.

Data set	a	b	c	d
ν_{app}	592.2(0.7)	596.8(0.9)	594.4(1.1)	581.6(2.2)
$+\delta_{SOD}$	133.2(1.3)	138.0(3.8)	136.5(2.1)	132.2(6.8)
$+\delta_{LS}$	-5.9(1.2)	-10.4(3.0)	-12.1(3.6)	-6.3(10.2)
$+\delta_{pS}$	3.6(2.0)	Pressure extrapolation		
$+\delta_{Maser}$	-0.599(6)	-1.043(6)		
$= \nu_{1S-3S}^{F=1}$	722.5(2.8)	721.9(4.9)		

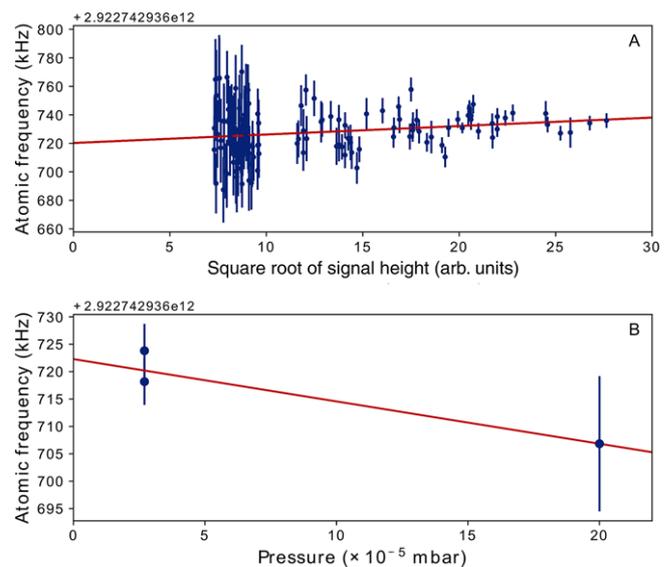


Figure 8. Experimental extrapolations performed on the 2016–2017 data to determine the light shift A) and pressure shift B) corrections.

Particular care has been taken to avoid such an electric field in the atom-laser interaction chamber, covered with aquadag paint. Furthermore, for the considered energy levels of hydrogen, black-body radiation shifts are negligible.^[29]

Other effects were examined, that could have affected the velocity distribution determination. Notably, the gaussian geometry of the laser beam in the Fabry–Perot cavity causes the probability of detection of a fluorescence photon to depend on the velocity of the atom that emitted it. Indeed, faster atoms can de-excite in the detection region while having been excited further away from it, where the laser intensity is weaker. This effect has been simulated and included in our theoretical lineshape; it amounts to less than 1 Hz.^[30]

Eventually, a background noise is detected by the photomultiplier: mostly due to UV-induced fluorescence within the detection chamber and optics, it shows no dependency with respect to the UV frequency. Scanned over a large frequency range of 11 MHz, the transition exhibits a flat tail; when fitted with the theoretical lineshape, it yields the very same result than scanned over a smaller range.

It is also worth noting that, despite the changes in the experimental setup operated in between, the 2013 and the 2016–2017 measurement campaigns are in very good agreement. This seems to suggest that the frequency measurement scheme, in particular, does not conceal under-estimated systematic effects. Indeed, the frequency comb was back then replaced, the purportedly redundant frequency counting setup was rearranged, the transfer laser between 1064 and 532 nm was installed, and the double-pass AOM for phase stabilization was implemented.

4.4. Results

The results of the 2013 and the 2016–2017 campaigns agree to within 1 kHz. We calculate their weighted average, characterizing their correlation with the covariance mentioned above. In order to obtain the centroid frequency of the 1S – 3S transition, a hyperfine correction of +341 949.077(3) kHz is applied, derived from measurements of the 1S and 2S hyperfine splittings.^[31] The resulting value is:

$$\nu_{1S-3S} = 2\,922\,743\,278\,671.5(2.6) \text{ kHz} \quad (12)$$

The values of the Rydberg constant and the proton radius that can be derived by combining this result with the 1S – 2S transition frequency^[7] are:

$$\begin{aligned} R_\infty &= 10\,973\,731.568\,53(14) \text{ m}^{-1} \\ r_p &= 0.877(13) \text{ fm} \end{aligned} \quad (13)$$

As already mentioned, they are in very good agreement with the CODATA-2014 values, and disagree by 2.8σ with those deduced from muonic hydrogen spectroscopy. Although not statistically significant, this disagreement impels us to continue investigating possible systematic effects.

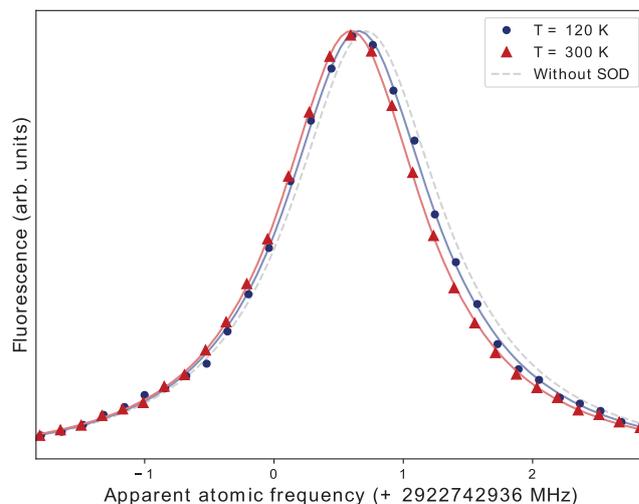


Figure 9. Spectra of the 1S – 3S transition in hydrogen, uncorrected from systematic effects, obtained with a nozzle at room temperature and at 120 K. The experimental datapoints, each corresponding to about 8 min of integration time, are fitted by a Lorentzian lineshape. The dashed line is a simulation of the line position at 0 K.

5. Ongoing Work

Our current efforts aim at remeasuring the 1S – 3S transition frequency once more, under different experimental conditions. More precisely, in order to both reduce our main systematic effect and cross-check the SOD correction method with a different velocity distribution, we are currently proceeding to the cooling of our atomic beam. By passing through an Aluminum-made nozzle cooled down by liquid nitrogen, the hydrogen atoms experience a SOD shift reduced by 50 to 60%. Preliminary results are shown on **Figure 9**.

Furthermore, our experimental setup allows for the spectroscopy of the 1S – 3S transition in deuterium. As a heavier atom, deuterium has the advantage of being less sensitive to the SOD effect than hydrogen. The frequency metrology of this transition, which has never been done, is all the more interesting as the spectroscopy of muonic deuterium also revealed a discrepancy among the determinations of the deuteron charge radius.^[32] We first observed this transition in 2016; further measurements are underway.

Thereafter, in order to investigate possible systematic effects related to the configuration of our hydrogen beam, an entirely new effusive beam is to be build, pumped by an oil-free vacuum system.

6. Conclusion

The 1S – 3S transition frequency of the hydrogen atom has been measured in our group with a relative uncertainty of 9×10^{-13} . This result, combined with the 1S – 2S transition frequency, yields values of the Rydberg constant and the proton charge radius that are in good agreement with the current CODATA-recommended values. These latter, however, disagree with other recent results, from both hydrogen and muonic

hydrogen spectroscopy. Investigations are therefore ongoing to understand possible sources of this disagreement.

Acknowledgements

The authors thank O. Acef for the transfer laser. This work was supported by the French National Research Agency (ANR) through the cluster of excellence FIRST-TF (ANR-10-LABX-48), the PROCADIS project (ANR-2010-BLANC:04510) and the Equipex REFIMEVE+ (ANR-11-EQPX-0039), and by the CNRS. This article is part of the Special Issue on *The Revised SI: Fundamental Constants, Basic Physics and Units*, highlighting the revision and redefinition of the International System of Units (SI) to come into effect in May 2019.

Conflict of Interest

The authors declare no conflict of interest.

Keywords

hydrogen spectroscopy, proton charge radius, rydberg constant

Received: September 14, 2018

Revised: December 18, 2018

Published online:

- [1] R. Pohl, A. Antognini, F. Nez, F. D. Amaro, F. Biraben, J. M. Cardoso, D. S. Covita, A. Dax, S. Dhawan, L. M. Fernandes, A. Giesen, T. Graf, T. W. Hänsch, P. Indelicato, L. Julien, C. Y. Kao, P. Knowles, E.-O. Le Bigot, Y.-W. Liu, J. A. Lopes, L. Ludhova, C. M. Monteiro, F. Mulhauser, T. Nebel, P. Rabinowitz, J. M. Dos Santos, L. A. Schaller, K. Schuhmann, C. Schwob, D. Taqqi *et al.*, *Nature* **2010**, 466, 213.
- [2] A. Antognini, F. Nez, K. Schuhmann, F. D. Amaro, F. Biraben, J. M. Cardoso, D. S. Covita, A. Dax, S. Dhawan, M. Diepold, L. M. Fernandes, A. Giesen, A. L. Gouvea, T. Graf, T. W. Hänsch, P. Indelicato, L. Julien, C. Y. Kao, P. Knowles, F. Kottmann, E.-O. Le Bigot, Y.-W. Liu, J. A. Lopes, L. Ludhova, C. M. Monteiro, F. Mulhauser, T. Nebel, P. Rabinowitz, J. M. Dos Santos, L. A. Schaller *et al.*, *Science* **2013**, 339, 6118.
- [3] P. J. Mohr, D. B. Newell, B. N. Taylor, *Rev. Mod. Phys. J. D* **2016**, 88, 035009.
- [4] C. E. Carlson, *Prog. Part. Nucl. Phys.* **2015**, 82, 59.
- [5] A. Beyer, L. Maisenbacher, A. Matveev, R. Pohl, K. Khabarova, A. Grinin, T. Lamour, D. C. Yost, T. W. Hänsch, N. Kolachevsky, T. Udem, *Science* **2017**, 358, 79.
- [6] H. Fleurbaey, S. Galtier, S. Thomas, M. Bonnaud, L. Julien, F. Biraben, F. Nez, M. Abgrall, J. Guéna, *Phys. Rev. Lett.* **2018**, 120, 183001.
- [7] C. G. Parthey, A. Matveev, J. Alnis, B. Bernhardt, A. Beyer, R. Holzwarth, A. Maistrou, R. Pohl, K. Predehl, T. Udem, T. Wilken, N. Kolachevsky, M. Abgrall, D. Rovera, C. Salomon, P. Laurent, T. W. Hänsch, *Phys. Rev. Lett.* **2011**, 107, 203001.
- [8] S. Bourzeix, B. de Beauvoir, F. Nez, M. D. Plimmer, F. de Tomasi, L. Julien F. Biraben, D. N. Stacey, *Phys. Rev. Lett.* **1996**, 76, 384.
- [9] G. Hagel, F. Nez, F. Biraben, *Appl. Opt.* **2002**, 41, 7702.
- [10] S. Galtier, F. Nez, L. Julien, F. Biraben, *Optics Comm.* **2014**, 324, 34.
- [11] L. Hilico, R. Felder, D. Touahri, O. Acef, A. Clairon, F. Biraben, *Eur. Phys. J. AP* **1998**, 4, 219.
- [12] B. de Beauvoir, F. Nez, L. Hilico, L. Julien, F. Birabena, B. Cagnac, J. J. Zondy, D. Touahri, O. Acef, A. Clairon, *Eur. Phys. J. D* **1998**, 1, 227.
- [13] G. Hagel, R. Battesti, F. Nez, L. Julien, F. Biraben, *Phys. Rev. Lett.* **2002**, 89, 203001.
- [14] F. Biraben, L. Julien, J. Plon, F. Nez, *Europhys. Lett.* **1991**, 15, 831.
- [15] G. Hagel, Ph.D. thesis, <https://hal.archives-ouvertes.fr/tel-00000848>.
- [16] H. A. Bethe, E. E. Salpeter, *Quantum Mechanics of One- and Two-Electron Atoms*, Springer-Verlag, Berlin **1957**, sect. 47.
- [17] B. Cagnac, G. Grynberg, F. Biraben, *J. Phys. France* **1973**, 34, 845.
- [18] O. Arnoult, F. Nez, L. Julien, F. Biraben, *Eur. Phys. J. D* **2010**, 60, 243.
- [19] F. Biraben, M. Bassini, B. Cagnac, *J. Phys. France* **1979**, 40, 445.
- [20] M. Horbatsch, E. A. Hessels, *Phys. Rev. A* **2010**, 82, 052519.
- [21] M. Horbatsch, E. A. Hessels, *Phys. Rev. A* **2011**, 84, 032508.
- [22] H. Fleurbaey, F. Biraben, L. Julien, J.-P. Karr, F. Nez, *Phys. Rev. A* **2017**, 95, 052503.
- [23] S. Galtier, H. Fleurbaey, S. Thomas, L. Julien, F. Biraben, F. Nez, *J. Phys. Chem. Ref. Data* **2015**, 44, 031201.
- [24] D. R. Olander, R. H. Jones, W. J. Siekhaus, *J. App. Phys.* **1970**, 41, 4388.
- [25] C. Champenois, M. Jacquey, S. Lepoutre, M. Büchner, G. Tréneç, J. Vigué, *Phys. Rev. A* **2008**, 77, 013621.
- [26] H. Fleurbaey, Ph.D. thesis, <https://hal.archives-ouvertes.fr/tel-01633631>.
- [27] G. D. Rovera, S. Bize, B. Chupin, J. Guéna, P. Laurent, P. Rosenbusch, *Metrologia* **2016**, 53, S81.
- [28] S. Galtier, Ph.D. thesis, <https://hal.archives-ouvertes.fr/tel-01080669>.
- [29] J. W. Farley, W. H. Wing, *Phys. Rev. A* **1981**, 23, 2397.
- [30] O. Arnoult, Ph.D. thesis, <https://hal.archives-ouvertes.fr/tel-00441568>.
- [31] S. G. Karshenboim, V. G. Ivanov, *Eur. Phys. J. D* **2002**, 19, 13.
- [32] R. Pohl, F. Nez, L. M. P. Fernandes, F. D. Amaro, F. Biraben, J. M. R. Cardoso, D. S. Covita, A. Dax, S. Dhawan, M. Diepold, A. Giesen, A. L. Gouvea, T. Graf, T. W. Hänsch, P. Indelicato, L. Julien, P. Knowles, F. Kottmann, E.-O. Le Bigot, Y.-W. Liu, J. A. M. Lopes, L. Ludhova, C. M. B. Monteiro, F. Mulhauser, T. Nebel, P. Rabinowitz, J. M. F. dos Santos, L. A. Schaller, K. Schuhmann, C. Schwob *et al.*, *Science* **2016**, 353, 669.

Bibliographie

- G. S. Agarwal. Quantum statistical theories of spontaneous emission and their relation to other approaches. In *Quantum Optics*. Springer, 1974. <https://doi.org/10.1007/BFb0042382>. 26
- I. Amdur. Recombination of Hydrogen Atoms. 60(10), 1938. <https://doi.org/10.1021/ja01277a021>. 39
- J. M. Anthony and K. J. Sebastian. Relativistic corrections to the Zeeman effect in hydrogenlike atoms and positronium. *Physical Review A*, 49, 1994. <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.49.192>. 19
- E. Arimondo, M. Inguscio, and P. Violino. Experimental determinations of the hyperfine structure in the alkali atoms. *Reviews of Modern Physics*, 49, 1977. <https://doi.org/10.1103/RevModPhys.49.31>. 14
- L. Armstrong. *Theory of the hyperfine structure of free atoms*. Wiley, 1971. 14
- O. Arnoult. Utilisation d'un peigne de fréquences optiques pour la spectroscopie de l'atome d'hydrogène, 2006. <https://tel.archives-ouvertes.fr/tel-00441568>. 44, 55
- O. Arnoult, F. Nez, L. Julien, and F. Biraben. Optical frequency measurement of the 1S–3S two-photon transition in hydrogen. 60(2), 2010. <https://doi.org/10.1140/epjd/e2010-00249-6>. 133
- P. Avan and C. Cohen-Tannoudji. Two-level atom saturated by a fluctuating resonant laser beam. Calculation of the fluorescence spectrum. *Journal of Physics B : Atomic and Molecular Physics*, 10(2), 1977. <https://doi.org/10.1088/0022-3700/10/2/006>. 27
- X. Baillard, A. Gauguier, S. Bize, P. Lemonde, P. Laurent, A. Clairon, and P. Rosenbusch. Interference-filter-stabilized external-cavity diode lasers. *Optics Communications*, 266(2), 2006. <https://doi.org/10.1016/j.optcom.2006.05.011>. 87
- W. A. Barker and F. N. Glover. Reduction of Relativistic Two-Particle Wave Equations to Approximate Forms. III. *Physical Review*, 99, 1955. <https://doi.org/10.1103/PhysRev.99.317>. 8, 13
- J. A. Barnes. Variances based on data with dead time between the measurements. *NIST Reports*, 1990. <https://doi.org/10.6028/NIST.TN.1318>. 102

- F. Bassani, J. J. Forney, and A. Quattropiani. Choice of Gauge in Two-Photon Transitions : 1S–2S Transition in Atomic Hydrogen. *Physical Review Letters*, 39(17), 1977. <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.39.1070>. 22
- BCMT. Bureau central du magnétisme terrestre, 2020. www.bcmt.fr/data_plot.php. 62
- H. A. Bethe and E. E. Salpeter. *Quantum Mechanics of One- and Two-Electron Atoms*. Springer Berlin Heidelberg, 1957. <https://doi.org/10.1007/978-3-662-12869-5>. 8, 17, 25
- F. Biraben. Efficacité des systèmes unidirectionnels utilisables dans les lasers en anneau. *Optics Communications*, 29(3), 1979a. [https://doi.org/10.1016/0030-4018\(79\)90116-0](https://doi.org/10.1016/0030-4018(79)90116-0). 77
- F. Biraben. The first decades of Doppler-free two-photon spectroscopy. *Comptes Rendus Physique*, 20(7-8), 2019. <https://doi.org/10.1016/j.crhy.2019.04.003>. 55
- F. Biraben and P. Labastie. Balayage d'un laser à colorant continu monomode sur 150 GHz. *Optics Communications*, 41, 1982. [https://doi.org/10.1016/0030-4018\(82\)90210-3](https://doi.org/10.1016/0030-4018(82)90210-3). 55, 77
- F. Biraben, M. Bassini, and B. Cagnac. Line-shapes in Doppler-free two-photon spectroscopy : The effect of finite transit time. *J. Phys. France*, 40(5), 1979b. <https://doi.org/10.1051/jphys:01979004005044500>. 31, 49, 50
- F. Biraben, L. Julien, J. Plon, and F. Nez. Compensation of the Second-Order Doppler Effect in Two-Photon Spectroscopy of Atomic Hydrogen. *Europhysics Letters (EPL)*, 15(8), 1991. <https://doi.org/10.1209/0295-5075/15/8/005>. 43
- E. Bloch. *Théorie cinétique des gaz*. Armand Colin, 1921. 36
- N. Bohr. On the constitution of atoms and molecules. *The London, Edinburgh, and Dublin Philosophical Magazine and Journal of Science*, 26(153), 1913. <https://doi.org/10.1080/14786441308634993>. 5
- J. Bokor, R. R. Freeman, J. C. White, and R. H. Storz. Two-photon excitation of the $n = 3$ level in H and D atoms. *Physical Review A*, 24, 1981. <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.24.612>. 55
- S. Bourzeix. Laser continu à 205 nm : application à la mesure du déplacement de Lamb dans l'hydrogène, 1995. <https://tel.archives-ouvertes.fr/tel-00011899>. 55, 57, 74
- A. D. Brandt, S. F. Cooper, C. Razor, Z. Burkley, D. C. Yost, and A. Matveev. Measurement of the 2S(1/2)–8D(5/2) transition in hydrogen, 2021. <https://arxiv.org/abs/2111.08554>. 136
- G. Breit. The Magnetic Moment of the Electron. 122(3078), 1928. <https://doi.org/10.1038/122649a0>. 18
- G. Breit. Derivation of Hyperfine Structure Formulas for One Electron Spectra. *Physical Review*, 37, 1931. <https://doi.org/10.1103/PhysRev.37.51>. 12

- S. J. Brodsky and R. G. Parsons. Precise Theory of the Zeeman Spectrum for Atomic Hydrogen and Deuterium and the Lamb Shift. *Physical Review*, 163, 1967. <https://doi.org/10.1103/PhysRev.163.134>. 12, 13, 19
- A. I. Burshtein, A. A. Zharikov, and S. I. Temkin. Response of a two-level system to a random modulation of the resonance with an arbitrary strong external field. *Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics*, 21(10), 1988. <https://doi.org/10.1088/0953-4075/21/10/022>. 27
- B. Cagnac, G. Grynberg, and F. Biraben. Spectroscopie d'absorption multiphotonique sans effet doppler. *Journal de Physique*, 34(10), 1973. <https://doi.org/10.1051/jphys:019730034010084500>. 21
- CGPM. Résolution 1 de la 26e Conférence Générale des Poids et Mesures, 2018. <https://www.bipm.org/fr/committees/cg/cgpm/26-2018/resolution-1>. 3
- P. Clausing. The flow of highly rarefied gases through tubes of arbitrary length. *Journal of Vacuum Science and Technology*, 8(5), 1931. <https://doi.org/10.1116/1.1316379>. 35
- C. Cohen-Tannoudji, B. Diu, and F. Laloë. *Mécanique Quantique - Tome 1*. Hermann, 1973a. 7
- C. Cohen-Tannoudji, B. Diu, and F. Laloë. *Mécanique Quantique - Tome 2*. Hermann, 1973b. 18, 145
- C. Cohen-Tannoudji, J. Dupont-Roc, and G. Grynberg. *Photons et atomes. Introduction à l'électrodynamique quantique*. InterEditions / Éditions du CNRS, 1987. 22
- C. Cohen-Tannoudji, J. Dupont-Roc, and G. Grynberg. *Processus d'interaction entre photons et atomes*. InterEditions / Éditions du CNRS, 1988. 26
- C. Cohen-Tannoudji, B. Diu, and F. Laloë. *Mécanique Quantique - Tome 3*. EDP Sciences / Éditions du CNRS, 2017. 24
- R. J. Cook. Photon number statistics in resonance fluorescence. *Physical Review A*, 23(3), 1981. <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.23.1243>. 63
- J. D. Cresser, A. Z. Tang, G. J. Salamo, and F. T. Chan. Lifetime of excited atomic states. *Physical Review A*, 33(3), 1986. <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.33.1677>. 26
- Décret du 6 mars 2017. Décret n°2017-292 relatif au temps légal français. www.legifrance.gouv.fr/eli/decret/2017/3/6/2017-292/jo/texte. 81
- B. de Beauvoir. Réalisation d'un étalon de fréquence à 778 nm : mesure absolue des fréquences 2S–8S/D des atomes d'hydrogène et de deutérium et détermination de la constante de Rydberg, 1996. <https://tel.archives-ouvertes.fr/tel-00011903>. 55, 87
- B. de Beauvoir, F. Nez, L. Julien, B. Cagnac, F. Biraben, D. Touahri, L. Hilico, O. Acef, A. Clairon, and J. J. Zondy. Absolute frequency measurement of the 2S–8S/D transitions in hydrogen and deuterium : New determination of the Rydberg constant. *Phys. Rev. Lett.*, 78, 1997. <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.78.440>. 135

- B. de Beauvoir, F. Nez, L. Hilico, L. Julien, F. Biraben, B. Cagnac, J. Zondy, D. Touahri, O. Acef, and A. Clairon. Transmission of an optical frequency through a 3 km long optical fiber. *The European Physical Journal D - Atomic, Molecular and Optical Physics*, 1(2), 1998. <https://doi.org/10.1007/s100530050085>. 81
- B. de Beauvoir, C. Schwob, O. Acef, L. Jozefowski, L. Hilico, F. Nez, L. Julien, A. Clairon, and F. Biraben. Metrology of the hydrogen and deuterium atoms : Determination of the Rydberg constant and Lamb shifts. *The European Physical Journal D*, 12, 2000. <https://doi.org/10.1007/s100530070043>. 55, 59
- D. Delande. Atomes de Rydberg en champs statiques intenses, 1988. <https://tel.archives-ouvertes.fr/tel-00011864>. 18, 21
- W. Demtroder. *Laser Spectroscopy : Basic Concepts and Instrumentation*. Springer Series in Chemical Physics. Springer-Verlag, 1981. <https://doi.org/10.1007/978-3-662-08257-7>. 27, 31
- P. A. M. Dirac. The quantum theory of the electron. *Proceedings of the Royal Society of London. Series A, Containing Papers of a Mathematical and Physical Character*, 117(778), 1928. <https://doi.org/10.1098/rspa.1928.0023>. 7
- R. W. P. Drever, J. L. Hall, F. V. Kowalski, J. Hough, G. M. Ford, A. J. Munley, and H. Ward. Laser phase and frequency stabilization using an optical resonator. *Applied Physics B Photophysics and Laser Chemistry*, 31(2), 1983. <https://doi.org/10.1007/BF00702605>. 78
- A. R. Edmonds. *Angular Momentum in Quantum Mechanics*. Princeton University Press, 1957. <https://doi.org/10.1515/9781400884186>. 21, 145
- M. Eides, H. Grotch, and V. A. Shelyuto. Theory of light hydrogenlike atoms. *Physics Reports*, 342(2-3), 2001. [https://doi.org/10.1016/S0370-1573\(00\)00077-6](https://doi.org/10.1016/S0370-1573(00)00077-6). 11
- ENTSO-E. Report on deterministic frequency deviations. *ENTSO-E Reports*, 2020. https://eepublicdownloads.entsoe.eu/clean-documents/Publications/SOC/Report_Deterministic_Frequency_Deviations_final_version.pdf. 92
- G. W. Erickson. Energy levels of one-electron atoms. *Journal of Physical and Chemical Reference Data*, 6(3), 1977. <https://doi.org/10.1063/1.555557>. 11
- E. Fermi. Über die magnetischen Momente der Atomkerne. *Zeitschrift für Physik*, 60(5), 1930. <https://doi.org/10.1007/BF01339933>. 12
- Z. Ficek and S. Swain. *Quantum Interference and Coherence : Theory and Experiments*. Springer Series in Optical Sciences. Springer-Verlag, 2005. <https://doi.org/10.1007/b100106>. 26
- H. Fleurbaey. Frequency metrology of the 1S–3S transition of hydrogen : Contribution to the proton charge radius puzzle, 2017a. <https://tel.archives-ouvertes.fr/tel-01633631>. 28, 55, 84, 109, 111, 127

- H. Fleurbaey, F. Biraben, L. Julien, J.-P. Karr, and F. Nez. Cross-damping effects in 1S–3S spectroscopy of hydrogen and deuterium. *Phys. Rev. A*, 95, 2017b. <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.95.052503>. 30, 75
- H. Fleurbaey, S. Galtier, S. Thomas, M. Bonnaud, L. Julien, F. Biraben, F. Nez, M. Abgrall, and J. Guéna. New measurement of the 1S–3S transition frequency of hydrogen : Contribution to the proton charge radius puzzle. *Phys. Rev. Lett.*, 120, 2018. <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.120.183001>. 30, 107, 133, 153
- M. A. D. Fluendy, R. M. Martin, E. E. Muschlitz, and D. R. Herschbach. Hydrogen atom scattering : Velocity dependence of total cross section for scattering from rare gases, hydrogen, and hydrocarbons. *The Journal of Chemical Physics*, 46(6), 1967. <https://doi.org/10.1063/1.1841021>. 36
- S. Galtier. Spectroscopie haute précision de la transition 1S–3S de l'atome d'hydrogène en vue d'une détermination du rayon du proton, 2014a. <https://tel.archives-ouvertes.fr/tel-01080669>. 55, 79, 80, 109, 127
- S. Galtier, F. Nez, L. Julien, and F. Biraben. Ultraviolet continuous-wave laser source at 205nm for hydrogen spectroscopy. *Optics Communications*, 324, 2014b. <https://doi.org/10.1016/j.optcom.2014.03.018>. 73, 75
- H. Gao and M. Vanderhaeghen. The proton charge radius, 2021. <https://arxiv.org/abs/2105.00571>. 135
- J.-C. Garreau. Mesure de la constante de Rydberg par spectroscopie à deux photons des états de Rydberg de l'hydrogène, 1989. <https://tel.archives-ouvertes.fr/tel-00011865>. 55, 59
- R. B. Gillette and B. A. Kenyon. Proton-Induced Contaminant Film Effects on Ultraviolet Reflecting Mirrors. *Applied Optics*, 10(3), 1971. <https://doi.org/10.1364/AO.10.000545>. 70
- J. A. Giordmaine and T. C. Wang. Molecular beam formation by long parallel tubes. *Journal of Applied Physics*, 31(3), 1960. <https://doi.org/10.1063/1.1735609>. 38
- M. Göppert-Mayer. Über Elementarakte mit zwei Quantensprüngen. *Annalen der Physik*, 401(3), 1931. ISSN 1521-3889. <https://doi.org/10.1002/andp.19314010303>. 22
- E. K. Grimmelmann, J. C. Tully, and M. J. Cardillo. Hard-cube model analysis of gas-surface energy accommodation. *The Journal of Chemical Physics*, 72(2), 1980. <https://doi.org/10.1063/1.439271>. 41, 42
- A. Grinin, A. Matveev, D. C. Yost, L. Maisenbacher, V. Wirthl, R. Pohl, T. W. Hänsch, and T. Udem. Two-photon frequency comb spectroscopy of atomic hydrogen. *Science*, 370 (6520), 2020. <https://doi.org/10.1126/science.abc7776>. 133, 136
- H. Grotch and R. Kashuba. Magnetic Interactions of One-Electron Atoms and of Positronium. *Physical Review A*, 7, 1973. <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.7.78>. 19

- G. Grynberg. *Spectroscopie d'absorption à deux photons sans élargissement Doppler. Application à l'étude du sodium et du néon*. phdthesis, 1976. <https://tel.archives-ouvertes.fr/tel-00011825>. 23, 24
- G. Grynberg, A. Aspect, and C. Fabre. *Introduction to Quantum Optics : From the Semi-Classical Approach to Quantized Light*. Cambridge University Press, 2010. <https://doi.org/10.1017/CB09780511778261>. 23, 43
- M. Haas, U. D. Jentschura, C. H. Keitel, N. Kolachevsky, M. Herrmann, P. Fendel, M. Fischer, T. Udem, R. Holzwarth, T. W. Hänsch, M. O. Scully, and G. S. Agarwal. Two-photon excitation dynamics in bound two-body Coulomb systems including ac Stark shift and ionization. *Physical Review A*, 73(5), 2006. <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.73.052501>. 23, 24, 31
- G. Hagel. Spectroscopie de l'atome d'hydrogène. vers une mesure absolue de la fréquence de la transition 1S-3S, 2001. <https://tel.archives-ouvertes.fr/tel-00000848>. 31, 55, 62, 63, 74
- G. Hagel, R. Battesti, F. Nez, L. Julien, and F. Biraben. Observation of a Motional Stark Effect to Determine the Second-Order Doppler Effect. *Physical Review Letters*, 89(20), 2002. <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.89.203001>. 43
- T. Hansch and B. Couillaud. Laser frequency stabilization by polarization spectroscopy of a reflecting reference cavity. *Optics Communications*, 35(3), 1980. [https://doi.org/10.1016/0030-4018\(80\)90069-3](https://doi.org/10.1016/0030-4018(80)90069-3). 75
- R. W. C. Hansen, M. Bissen, D. Wallace, J. Wolske, and T. Miller. Ultraviolet/ozone cleaning of carbon-contaminated optics. *Applied Optics*, 32(22), 1993. <https://doi.org/10.1364/AO.32.004114>. 70
- H. Hellwig, R. F. C. Vessot, M. W. Levine, P. W. Zitzewitz, D. W. Allan, and D. J. Glaze. Measurement of the Unperturbed Hydrogen Hyperfine Transition Frequency. *IEEE Transactions on Instrumentation and Measurement*, 19(4), 1970. <https://doi.org/10.1109/TIM.1970.4313902>. 14
- J. Helmcke, S. A. Lee, and J. L. Hall. Dye laser spectrometer for ultrahigh spectral resolution : Design and performance. *Applied Optics*, 21(9), 1982. <https://doi.org/10.1364/AO.21.001686>. 78
- R. Holzwarth, T. Udem, T. W. Hänsch, J. C. Knight, W. J. Wadsworth, and P. S. J. Russell. Optical Frequency Synthesizer for Precision Spectroscopy. *Physical Review Letters*, 85(11), 2000. <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.85.2264>. 82
- M. Horbatsch and E. A. Hessels. Shifts from a distant neighboring resonance. *Physical Review A*, 82(5), 2010. <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.82.052519>. 30
- M. Horbatsch and E. A. Hessels. Tabulation of the bound-state energies of atomic hydrogen. *Physical Review A*, 93(2), 2016. <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.93.022513>. 12, 13

- IUPAC. International Union of Pure and Applied Chemistry : Nomenclature of Inorganic Chemistry, 1971. 3
- U. D. Jentschura and A. Surzhykov. Relativistic calculation of the two-photon decay rate of highly excited ionic states. *Physical Review A*, 77(4), 2008. <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.77.042507>. 26
- U. D. Jentschura and V. A. Yerokhin. Quantum electrodynamic corrections to the hyperfine structure of excited S states. *Physical Review A*, 73(6), 2006. <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.73.062503>. 14
- U. D. Jentschura and V. A. Yerokhin. QED corrections of order $\alpha^*(Z\alpha)^{**2*EF}$ to the hyperfine splitting of P1/2 and P3/2 states in hydrogenlike ions. *Physical Review A*, 81, 2010. <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.81.012503>. 15, 19
- U. D. Jentschura, C. M. Adhikari, R. Dawes, A. Matveev, and N. Kolachevsky. Pressure shifts in high-precision hydrogen spectroscopy : Long-range atom – atom and atom – molecule interactions. 52(7), 2019. <https://doi.org/10.1088/1361-6455/ab08cc-1>. 45, 47
- W. Jitschin and G. Reich. Molecular velocity distribution at large Knudsen numbers. *Journal of Vacuum Science & Technology A*, 9(5), 1991. <https://doi.org/10.1116/1.577194>. 34
- D. J. Jones. Carrier-Envelope Phase Control of Femtosecond Mode-Locked Lasers and Direct Optical Frequency Synthesis. *Science*, 288(5466), 2000. <https://doi.org/10.1126/science.288.5466.635>. 82
- J.-P. Karr, D. Marchand, and E. Voutier. The Proton Size. 2(11), 2020. <https://doi.org/10.1038/s42254-020-0229-x>. 135
- S. G. Karshenboim and V. G. Ivanov. Hyperfine structure in hydrogen and helium ion. *Physics Letters B*, 524(3), 2002. [https://doi.org/10.1016/S0370-2693\(01\)01394-6](https://doi.org/10.1016/S0370-2693(01)01394-6). 14
- E. H. Kennard. *Kinetic Theory of Gases*. McGraw-Hill, 1938. 37
- D. Kleppner, H. M. Goldenberg, and N. F. Ramsey. Theory of the hydrogen maser. *Phys. Rev.*, 126, 1962. <https://doi.org/10.1103/PhysRev.126.603>. 41
- M. Knudsen. Die Gesetze der Molekularstroemung und der inneren Reibungsstroemung der Gase durch Roehren. *Annalen der Physik*, 333, 1909. <https://doi.org/https://doi.org/10.1002/andp.19093330106>. 34
- T. Koide, M. Yanagihara, Y. Aiura, S. Sato, T. Shidara, A. Fujimori, H. Fukutani, M. Niwano, and H. Kato. Resuscitation of carbon-contaminated mirrors and gratings by oxygen-discharge cleaning : Efficiency recovery in the 4–40-eV range. *Applied Optics*, 26(18), 1987. <https://doi.org/10.1364/AO.26.003884>. 70
- N. Kolachevsky, P. Fendel, S. G. Karshenboim, and T. W. Hänsch. 2S hyperfine structure of atomic deuterium. *Physical Review A*, 70(6), 2004. <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.70.062503>. 15

- N. Kolachevsky, M. Haas, U. D. Jentschura, M. Herrmann, P. Fendel, M. Fischer, R. Holzwarth, T. Udem, C. H. Keitel, and T. W. Hänsch. Photoionization broadening of the 1S–2S transition in a beam of atomic hydrogen. *Physical Review A*, 74(5), 2006. <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.74.052504>. 27
- E. Kuipers, M. Tenner, M. Spruit, and A. Kleyn. Differential trapping probabilities and desorption of physisorbed molecules : application to no/ag (111). *Surface Science*, 205 (1-2), 1988. [https://doi.org/10.1016/0039-6028\(88\)90175-6](https://doi.org/10.1016/0039-6028(88)90175-6). 41
- V. Kumar and E. Krishnakumar. Measurement of concentration and study of recombination of atomic hydrogen by Wrede–Harteck method. *Review of Scientific Instruments*, 50(6), 1979. <https://doi.org/10.1063/1.1135925>. 41, 57
- M. Kumm, H. Klingbeil, and P. Zipf. An FPGA-Based Linear All-Digital Phase-Locked Loop. *IEEE Transactions on Circuits and Systems I : Regular Papers*, 57(9), 2010. <https://doi.org/10.1109/TCSI.2010.2046237>. 95
- L. Landau and E. Lifchitz. *Quantum Mechanics*. Pergamon Press, 1958. 36
- L. Landau and E. Lifchitz. *Électrodynamique Quantique*. MIR, 1973. 24
- B. Lepetit, D. Lemoine, Z. Medina, and B. Jackson. Sticking and desorption of hydrogen on graphite : A comparative study of different models. *The Journal of Chemical Physics*, 134 (11), 2011. <https://doi.org/10.1063/1.3565446>. 41
- R. P. Lucht, J. T. Salmon, G. B. King, D. W. Sweeney, and N. M. Laurendeau. Two-photon-excited fluorescence measurement of hydrogen atoms in flames. *Optics Letters*, 8(7), 1983. <https://doi.org/10.1364/OL.8.000365>. 55
- M. A. Luda, M. Drechsler, C. T. Schmiegelow, and J. Codnia. Compact embedded device for lock-in measurements and experiment active control. *Review of Scientific Instruments*, 90(2), 2019. <https://doi.org/10.1063/1.5080345>. 93
- W. Macalpine and R. Schildknecht. Coaxial Resonators with Helical Inner Conductor. *Proceedings of the IRE*, 47(12), 1959. <https://doi.org/10.1109/JRPROC.1959.287128>. 57
- A. Matveev, N. Kolachevsky, C. M. Adhikari, and U. D. Jentschura. Pressure shifts in high-precision hydrogen spectroscopy : Impact approximation and monte-carlo simulations. 52 (7), 2019. <https://doi.org/10.1088/1361-6455/ab08e1-1>. 46
- A. Messiah. *Mécanique Quantique – Tome 1*. Dunod, 1959. 8
- G. A. Miller. Defining the proton radius : A unified treatment. *Physical Review C*, 99(3), 2019. <https://doi.org/10.1103/PhysRevC.99.035202>. 10
- L. Neuhaus. Cooling a macroscopic mechanical oscillator close to its quantum ground state, 2016. <https://tel.archives-ouvertes.fr/tel-01467924>. 93, 94
- F. Nez. Chaîne de fréquence optique pour mesurer les transitions 2S–8S/8D dans l’atome d’hydrogène , mesure de la constante de rydberg en unité de fréquence, 1993. <https://tel.archives-ouvertes.fr/tel-00011890>. 55, 89

- D. R. Olander, R. H. Jones, and W. J. Siekhaus. Molecular beam sources fabricated from multichannel arrays : Speed distribution in the centerline beam. *Journal of Applied Physics*, 41(11), 1970. <https://doi.org/10.1063/1.1658472>. 38
- A. C. Olaya, C. E. Calosso, J.-M. Friedt, S. Micalizio, and E. Rubiola. Phase Noise and Frequency Stability of the Red-Pitaya Internal PLL. *IEEE Transactions on Ultrasonics, Ferroelectrics, and Frequency Control*, 66(2), 2019. <https://doi.org/10.1109/TUFFC.2018.2883830>. 93
- K. Pachucki and M. Puchalski. One-loop binding corrections to the electron g Factor. *Physical Review A*, 96(3), 2017. <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.96.032503>. 19
- K. Pachucki, V. Patkóš, and V. A. Yerokhin. Three-photon-exchange nuclear structure correction in hydrogenic systems. *Physical Review A*, 97, 2018. <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.97.062511>. 10
- W. Pauli. Zur Quantenmechanik des magnetischen Elektrons. *Zeitschrift für Physik*, 43, 1927. <https://doi.org/10.1007/BF01397326>. 11
- F. B. Pidduck. Laguerre's Polynomials in Quantum Mechanics. *Journal of the London Mathematical Society*, s1-4(3), 1929. <https://doi.org/10.1112/jlms/s1-4.3.163>. 8
- R. Pohl, F. Nez, L. M. P. Fernandes, F. D. Amaro, F. Biraben, J. M. R. Cardoso, D. S. Covita, A. Dax, S. Dhawan, M. Diepold, A. Giesen, A. L. Gouvea, T. Graf, T. W. Hänsch, P. Indelicato, L. Julien, P. Knowles, F. Kottmann, E.-O. L. Bigot, Y.-W. Liu, J. A. M. Lopes, L. Ludhova, C. M. B. Monteiro, F. Mulhauser, T. Nebel, P. Rabinowitz, J. M. F. dos Santos, L. A. Schaller, K. Schuhmann, C. Schwob, D. Taqqu, J. F. C. A. Veloso, and A. Antognini. Laser spectroscopy of muonic deuterium. *Science*, 353(6300), 2016. <https://doi.org/10.1126/science.aaf2468>. 135
- R. Pohl, F. Nez, T. Udem, A. Antognini, A. Beyer, H. Fleurbaey, A. Grinin, T. W. Hänsch, L. Julien, F. Kottmann, J. J. Krauth, L. Maisenbacher, A. Matveev, and F. Biraben. Deuteron charge radius and rydberg constant from spectroscopy data in atomic deuterium. *Metrologia*, 54(2), 2017. <https://doi.org/10.1088/1681-7575/aa4e59>. 133
- P. Pyykkö, E. Pajanne, and M. Inokuti. Hydrogen-like relativistic corrections for electric and magnetic hyperfine integrals. *International Journal of Quantum Chemistry*, 7(4), 1973. <https://doi.org/10.1002/qua.560070415>. 13
- N. F. Ramsey. *Molecular beams*. Oxford University Press, 1956. 34, 36
- R. V. Reid and M. L. Vaida. Quadrupole Moment of the Deuteron. *Physical Review Letters*, 34, 1975. <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.34.1064>. 14
- G. D. Rovera, S. Bize, B. Chupin, J. Guéna, P. Laurent, P. Rosenbusch, P. Urich, and M. Abgrall. UTC(OP) based on LNE-SYRTE atomic fountain primary frequency standards. *Metrologia*, 53(3), 2016. <https://doi.org/10.1088/0026-1394/53/3/S81>. 81
- E. Rubiola. On the measurement of frequency and of its sample variance with high-resolution counters. *Review of Scientific Instruments*, 76(5), 2005. <https://doi.org/10.1063/1.1898203>. 85

- J. R. Rydberg. Recherches sur la constitution des spectres d'émission des éléments chimiques. *Kungliga vetenskapsakademiens handlingar*, 23, 1889. 5
- E. Schrödinger. Quantisierung als Eigenwertproblem. *Annalen der Physik*, 385(13), 1926. <https://doi.org/10.1002/andp.19263851302>. 7
- C. Schwob, L. Jozefowski, B. de Beauvoir, L. Hilico, F. Nez, L. Julien, F. Biraben, O. Acef, J.-J. Zondy, and A. Clairon. Optical frequency measurement of the 2S–12D transitions in hydrogen and deuterium : Rydberg constant and Lamb shift determinations. *Phys. Rev. Lett.*, 82, 1999. <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.82.4960>. 135
- V. M. Shabaev. Hyperfine structure of hydrogen-like ions. *Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics*, 27(24), 1994. <https://doi.org/10.1088/0953-4075/27/24/006>. 15
- V. M. Shabaev, D. A. Glazov, G. Plunien, and A. V. Volotka. Theory of Bound-Electron g Factor in Highly Charged Ions. *Journal of Physical and Chemical Reference Data*, 44(3), 2015. <https://doi.org/10.1063/1.4921299>. 18
- I. F. Silvera. Ultimate fate of a gas of atomic hydrogen in a liquid-helium chamber : Recombination and burial. *Phys. Rev. B*, 29, 1984. <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.29.3899>. 39
- L. C. Sinclair, J.-D. Deschênes, L. Sonderhouse, W. C. Swann, I. H. Khader, E. Baumann, N. R. Newbury, and I. Coddington. Invited Article : A compact optically coherent fiber frequency comb. *Review of Scientific Instruments*, 86(8), 2015. <https://doi.org/10.1063/1.4928163>. 95
- J. Slevin and W. Stirling. Radio frequency atomic hydrogen beam source. *Review of Scientific Instruments*, 52(11), 1981. <https://doi.org/10.1063/1.1136497>. 57
- A. Smith. SNLO : Crystal nonlinear optics, 2021. www.as-photonics.com/snlo. 73
- F. Sthal and E. Rubiola. Instrumentation temps-fréquence – améliorations des techniques de comptage. *Techniques de l'ingénieur*, 2010. <https://doi.org/10.51257/a-v1-r687>. 85
- E. Tiesinga, P. J. Mohr, D. B. Newell, and B. N. Taylor. CODATA recommended values of the fundamental physical constants : 2018. *Reviews of Modern Physics*, 93(2), 2021. <https://doi.org/10.1103/RevModPhys.93.025010>. 8, 9, 11, 15, 16, 136
- D. Touahri, O. Acef, A. Clairon, J.-J. Zondy, R. Felder, L. Hilico, B. de Beauvoir, F. Biraben, and F. Nez. Frequency measurement of the 5S(1/2)–5D(5/2) two-photon transition in rubidium. *Optics Communications*, 133(1-6), 1997. [https://doi.org/10.1016/S0030-4018\(96\)00471-3](https://doi.org/10.1016/S0030-4018(96)00471-3). 87
- A. Tourigny-Plante, V. Michaud-Belleau, N. Bourbeau Hébert, H. Bergeron, J. Genest, and J.-D. Deschênes. An open and flexible digital phase-locked loop for optical metrology. *Review of Scientific Instruments*, 89(9), 2018. <https://doi.org/10.1063/1.5039344>. 93
- L. Tran-Tien. Différences de phase. *Techniques de l'ingénieur*, 1979. 95

- R. E. Trees. Hyperfine Structure Formulas for LS Coupling. *Physical Review*, 92(2), 1953. <https://doi.org/10.1103/PhysRev.92.308>. 146
- T. Udem. Phasenkohärente optische Frequenzmessungen am Wasserstoffatom. Bestimmung der Rydberg-Konstanten und der 1S Lamb-Verschiebung, 1997. www2.mpg.mpg.de/~thu/home/udem_doktor.pdf. 133
- T. Udem, L. Maisenbacher, A. Matveev, V. Andreev, A. Grinin, A. Beyer, N. Kolachevsky, R. Pohl, D. C. Yost, and T. W. Hänsch. Quantum Interference Line Shifts of Broad Dipole-Allowed Transitions. *Annalen der Physik*, 531(5), 2019. <https://doi.org/10.1002/andp.201900044>. 30
- P. Verkerk, M. Pinard, F. Biraben, and G. Grynberg. 1S–3S and 1S–3D doppler-free two-photon transition in hydrogen and deuterium. *Optics Communications*, 72(3-4), 1989. [https://doi.org/10.1016/0030-4018\(89\)90395-7](https://doi.org/10.1016/0030-4018(89)90395-7). 55
- J. T. M. Walraven and I. F. Silvera. Helium-temperature beam source of atomic hydrogen. *Review of Scientific Instruments*, 53(8), 1982. <https://doi.org/10.1063/1.1137152>. 41, 61
- M. Weitz, A. Huber, F. Schmidt-Kaler, D. Leibfried, W. Vassen, C. Zimmermann, K. Pachucki, T. W. Hänsch, L. Julien, and F. Biraben. Precision measurement of the 1S ground-state Lamb shift in atomic hydrogen and deuterium by frequency comparison. *Phys. Rev. A*, 52, 1995. <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.52.2664>. 135
- D. J. Wineland and N. F. Ramsey. Atomic Deuterium Maser. *Physical Review A*, 5(2), 1972. <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.5.821>. 14
- B. J. Wood and H. Wise. The kinetics of hydrogen atom recombination on pyrex glass and fused quartz. *The Journal of Physical Chemistry*, 66(6), 1962. <https://doi.org/10.1021/j100812a019>. 41
- B. J. Wundt and U. D. Jentschura. Self-energy correction to the hyperfine splitting for excited states. *Physical Review A*, 83(5), 2011. <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.83.052501>. 13, 15
- D. Xu, E. Cantin, F. Frank, N. Quintin, F. Meynadier, P. Tuckey, A. Amy-Klein, O. Lopez, and P.-E. Pottie. Two-Branch Fiber Link for International Clock Networks. *IEEE Transactions on Instrumentation and Measurement*, 68(6), 2019. <https://doi.org/10.1109/TIM.2018.2886865>. 81
- V. A. Yerokhin, K. Pachucki, and V. Patkóš. Theory of the Lamb Shift in Hydrogen and Light Hydrogen-Like Ions. *Annalen der Physik*, 531(5), 2019. <https://doi.org/10.1002/andp.201800324>. 10, 11
- D. C. Yost, A. Matveev, A. Grinin, E. Peters, L. Maisenbacher, A. Beyer, R. Pohl, N. Kolachevsky, K. Khabarova, T. W. Hänsch, and T. Udem. Spectroscopy of the hydrogen 1S–3S transition with chirped laser pulses. *Phys. Rev. A*, 93, 2016. <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.93.042509>. 133