



**HAL**  
open science

# Effet Stark des états de Rydberg des alcalins : application à la préparation et à l'étude des atomes de Rydberg circulaires

Jun Liang

► **To cite this version:**

Jun Liang. Effet Stark des états de Rydberg des alcalins : application à la préparation et à l'étude des atomes de Rydberg circulaires. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 1986. Français. NNT : . tel-00011857

**HAL Id: tel-00011857**

**<https://theses.hal.science/tel-00011857>**

Submitted on 9 Mar 2006

**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.

THESE DE DOCTORAT

de

l'Université Paris 6

Spécialité : Physique Atomique

présentée par

Jun LIANG

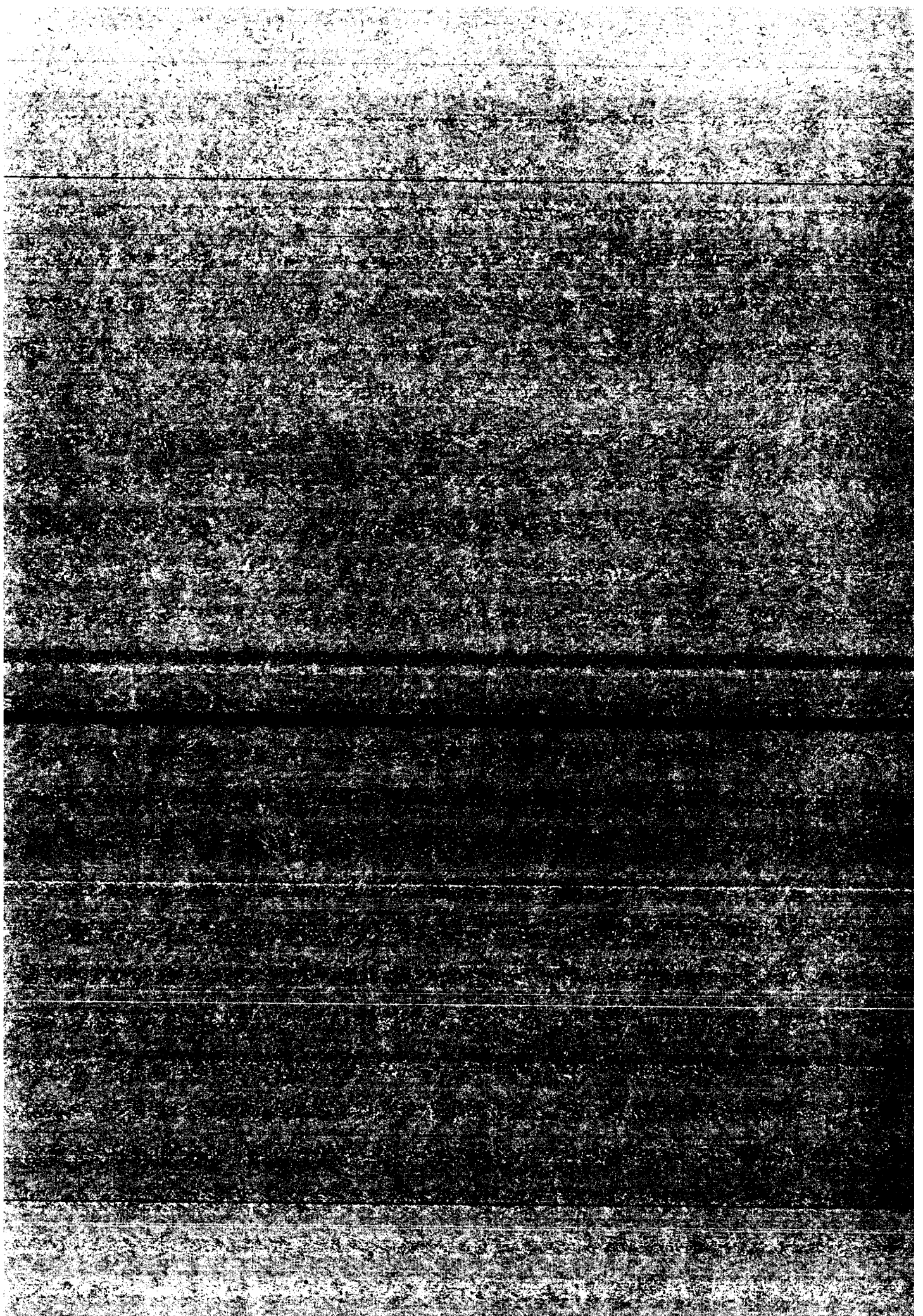
pour obtenir le titre de DOCTEUR DE L'UNIVERSITE PARIS 6

Sujet de la thèse :

"EFFET STARK DES ETATS DE RYDBERG DES ALCALINS ;  
APPLICATION A LA PREPARATION ET A L'ETUDE  
DES ATOMES DE RYDBERG CIRCULAIRES".

Soutenue le 17 Juin 1986 devant le jury composé de :

MM. S. HAROCHE	)	Président du Jury
M. BROYER	)	
C. FABRE	)	
J.C. GAY	)	Examineurs
M. GROSS	)	
S. LIBERMAN	)	



THESE DE DOCTORAT

de

l'Université Paris 6

Spécialité : Physique Atomique

présentée par

Jun LIANG

pour obtenir le titre de DOCTEUR DE L'UNIVERSITE PARIS 6

Sujet de la thèse :

"EFFET STARK DES ETATS DE RYDBERG DES ALCALINS ;  
APPLICATION A LA PREPARATION ET A L'ETUDE  
DES ATOMES DE RYDBERG CIRCULAIRES".

Soutenue le 17 Juin 1986 devant le jury composé de :

MM. S. HAROCHE	)	Président du Jury
M. BROYER	}	Examineurs
C. FABRE		
J.C. GAY		
M. GROSS		
S. LIBERMAN		

## RESUME

Nous avons étudié l'effet Stark linéaire des états de Rydberg de faible  $|m_l|$  et observé une quasi-dégénérescence des séries  $|m_l| = 0, 1$  et 2 du sodium et  $|m_l| = 0, 1$  du lithium. Nous avons expliqué théoriquement ce comportement non-hydrogénoïde assez inattendu.

A partir d'atomes de lithium dans un état de Rydberg de faible  $|m_l|$ , nous avons préparé des atomes circulaires ( $|m_l| = \ell = n-1$ ) et nous avons observé pour la première fois une transition induite par une onde submillimétrique entre deux états de Rydberg circulaires. Cette expérience est un premier pas vers la mesure de la constante de Rydberg en unité de fréquence.

Nous avons mis en évidence un comportement dynamique spécifique des atomes circulaires dans un champ électrique faible ( $\sim 1\text{V/cm}$ ) de direction variable.

### MOTS-CLES :

Effet Stark

Etat de Rydberg

Atome circulaire

Hydrogène

Alcalin

Spectroscopie de haute résolution

## REMERCIEMENTS

*Ce travail a été effectué au Laboratoire de Spectroscopie Hertzienne de l'École Normale Supérieure pendant les années 1983-1986. Je tiens à remercier les Professeurs J. BROSEL et C. COHEN-TANNOUJDI de m'y avoir accueillie dans un environnement scientifique et matériel exceptionnel.*

*Je remercie vivement Monsieur le Professeur S. HAROCHE qui m'a proposé ce travail. Je tiens à lui exprimer toute ma reconnaissance pour m'avoir donné la chance de m'initier à la recherche dans son groupe.*

*Je voudrais ici témoigner toute ma reconnaissance à C. FABRE et M. GROSS qui ont dirigé mon premier travail de recherche. Ils m'ont fait profiter de leur grande compétence scientifique et je les remercie sincèrement d'avoir eu assez de patience et de ténacité.*

*P. GOY et J.-M. RAIMOND ont pris une part importante dans la réalisation de ce travail et m'ont apporté, tant sur le plan des idées que de la réalisation technique, une aide souvent décisive. Je leur en suis très reconnaissante.*

*Je tiens à exprimer mes vifs remerciements à MM. M. BROYER, J.C. GAY et S. LIBERMAN pour l'intérêt qu'ils ont manifesté pour ce travail en acceptant de participer au Jury de cette thèse.*

*Je remercie sincèrement tous les membres du laboratoire: chercheurs, techniciens et personnel administratif. Ils m'ont tous aidée à un moment ou un autre quand c'était nécessaire. Je remercie en particulier Irène BRODSCHI, Pierre CASSOU, André CLOUQUEUR, Michèle AUDOIN.*

## TABLE DES MATIERES

Notations et constantes

INTRODUCTION ..... p. 1

### Partie Théorique

**CHAPITRE I. PROPRIETES GENERALES D'UN ATOME DE RYDBERG CIRCULAIRE (HYDROGENE OU ALCALIN)..... p. 7**

1.1. Atome isolé .....	p. 7
1.1.1. Atome d'hydrogène isolé (modèle classique) .....	p. 7
1.1.2. Atome d'hydrogène isolé (modèle quantique) .....	p.11
Fonction d'onde en coordonnée sphérique .....	p.13
Fonction d'onde en coordonnée parabolique .....	p.15
Fonction d'onde en représentation $\vec{p}$ .....	p.17
1.1.3. Ecart à la loi $1/n^2$ : polarisation, pénétration et effet relativiste .....	p.18
1.2. Propriétés radiatives .....	p.21
1.2.1. Eléments de matrice du dipôle électrique .....	p.22
(1) $n' < n$ .....	p.23
(2) $n' > n$ .....	p.24
1.2.2. Durée de vie .....	p.26
1.2.3. Transitions dipolaires à un photon .....	p.26
(1) Cas de la polarisation circulaire gauche $\sigma^-$ .....	p.27
(2) Cas de la polarisation circulaire droite $\sigma^+$ .....	p.29
(3) Cas de la polarisation linéaire $\pi$ .....	p.29
1.2.4. Transitions dipolaires à deux photons .....	p.31
1.2.5. Transfert de population induit par le rayonnement thermique .....	p.32
1.2.6. Photoionisation d'un atome circulaire .....	p.34
1.2.7. Déplacement des niveaux par une onde quasi-résonnante	
Transition à un photon $ n+1, n, n\rangle \rightarrow  n, n-1, n-1\rangle$ .....	p.41
Transition à deux photons $ n+2, n+1, n+1\rangle \rightarrow  n, n-1, n-1\rangle$	p.43
1.3. Propriétés en présence d'un champ électrostatique .....	p.44
1.3.1. Effet Stark quadratique .....	p.45
1.3.2. Ionisation par champ électrostatique .....	p.47
1.4. Propriétés en présence d'un champ magnétique .....	p.49
1.4.1. Hamiltonien d'un atome d'hydrogène en présence d'un champ magnétique .....	p.49
1.4.2. L'effet paramagnétique .....	p.51
1.4.3. L'effet diamagnétique dans la zone inter- $\ell$ -mixing .....	p.52
1.4.4. L'effet diamagnétique dans la zone inter- $n$ -mixing.....	p.55

1.5. Comportement dynamique d'un atome initialement circulaire dans un champ électrique ou/et magnétique statique faible ....	p.57
1.5.1. Le problème de Coulomb en présence d'un champ électrique uniforme .....	p.60
- champ électrique colinéaire à L .....	p.60
- champ électrique non colinéaire à L .....	p.60
- champ électrique de direction variable dans le temps .	p.61
1.5.2. Le problème de Coulomb en présence d'un champ magnétique uniforme .....	p.62
1.5.3. Le problème de Coulomb en présence des champs électrique et magnétique croisés .....	p.64
1.6. Collision des atomes circulaires avec des atomes de gaz rare ..	p.69

**CHAPITRE II. EFFET STARK DES ATOMES DE RYDBERG DES ALCALINS DE FAIBLE MOMENT MAGNETIQUE  $|m_l|$  .....** p.71

II.1. Résolution numérique .....	p.73
II.2. Modèle approché simple .....	p.73

Partie Expérimentale

**CHAPITRE III. PREPARATION D'UN ETAT DE RYDBERG DE FAIBLE MOMENT ANGULAIRE .....** p.80

III.1. Préparation des atomes de Rydberg du sodium par laser continu .....	p.80
III.1.1. Excitation .....	p.80
III.1.2. Diode laser .....	p.82
- Description générale .....	p.82
- Dispositif expérimental .....	p.84
III.1.3. Mise à résonance des lasers .....	p.86
III.1.4. Détection .....	p.87
III.1.5. Signal d'ionisation des atomes de Rydberg .....	p.89
III.2. Préparation des atomes de Rydberg du lithium par laser pulsé	p.91
III.2.1. Excitation .....	p.91
III.2.2. Détection .....	p.93
III.2.3. Signal d'ionisation des atomes de Rydberg .....	p.93

**CHAPITRE IV. ETUDE EXPERIMENTALE DE L'EFFET STARK DES ATOMES DE RYDBERG .....** p.98

IV.1. Montage expérimental .....	p.98
IV.2. Résultats sur le sodium avec 3 lasers continus .....	p.100
IV.2.1. Spectres Stark optique .....	p.100
IV.2.2. Spectres Stark microonde .....	p.103
IV.3. Résultats sur le lithium avec 3 lasers pulsés .....	p.107



<b>CHAPITRE V. SPECTROSCOPIE DES ETATS DE RYDBERG CIRCULAIRES</b> .....	p. 110
Introduction .....	p. 110
V.1. Principe de la préparation des états circulaires dans le cas de l'hydrogène .....	p. 111
V.1.1. Effet Stark de l'hydrogène .....	p. 113
V.1.2. Passage adiabatique rapide (P.A.R.) .....	p. 113
V.1.3. Ordre de grandeur des paramètres expérimentaux utiles pour préparer des atomes circulaires $n \sim 25$ .....	p. 114
V.2. Principe de la préparation des états circulaires. Généralisation au cas d'un alcalin .....	p. 116
V.2.1. Effet Stark de l'alcalin .....	p. 116
V.2.2. Préparation de l'état $ m=2, n_1=0\rangle$ du lithium .....	p. 116
V.2.3. Ordre de grandeur des paramètres expérimentaux .....	p. 122
V.3. Montage expérimental .....	p. 123
V.4. Mise en évidence d'un état circulaire .....	p. 125
V.4.1. Préparation de l'état $ m=2, n_1=0\rangle$ .....	p. 125
V.4.2. Passage adiabatique rapide (P.A.R.) .....	p. 129
V.4.3. Détection des atomes circulaires par un champ ionisant .....	p. 129
V.4.4. Signal d'ionisation expérimental d'un état circulaire .....	p. 129
V.5. Transition microonde entre états circulaires .....	p. 132
<b>CHAPITRE VI. COMPORTEMENT DYNAMIQUE D'UN ATOME CIRCULAIRE DANS UN CHAMP ELECTRIQUE FAIBLE DE DIRECTION VARIABLE</b> .....	p. 136
VI.1. Montage expérimental .....	p. 136
VI.2. Analyse des résultats expérimentaux pour un champ électrique dans les régimes de variation lent et intermédiaire .....	p. 139
VI.3. Mise en évidence du régime de rotation rapide du champ .....	p. 143
VI.4. Conclusion : champ parasite et spectroscopie des atomes circulaires .....	p. 145
CONCLUSION .....	p. 147
<b>APPENDICE I. Les énergies propres de <math>H_S</math> dans <math>\xi'_m</math> sont solutions de l'équation (II.2)</b> .....	p. 149
<b>APPENDICE II. Elément de matrice radiale dans la base parabolique</b> .....	p. 151
<b>APPENDICE III. Quantum defects and specific isotopic shift measurements in <math>nS</math> and <math>nP</math> very excited states of lithium : exchange effects between Rydberg and core electrons</b> .....	p. 153

<u>APPENDICE IV.</u> The "lamp-laser" : realization of a very long cavity dye laser .....	p.188
<u>APPENDICE V.</u> Modification of the velocity of atoms submitted to a resonant multimode laser : an experimental study .....	p.193
<u>REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES</u> .....	p.207

## NOTATIONS ET CONSTANTES

### - Grandeurs de la mécanique classique

$\vec{r}$	rayon vecteur	
$\vec{p}$	impulsion	
$\vec{L} = \vec{r} \times \vec{p}$	moment cinétique	
$\vec{A} = \frac{1}{m} \vec{L} \times \vec{p} + \frac{q^2}{4\pi\epsilon_0} \frac{\vec{r}}{r}$	vecteur de Runge-Lenz	
$\vec{F}, \vec{E}$	champ électrostatique	
$\vec{B}$	champ magnétique	

### - Grandeurs correspondantes de la mécanique quantique

$\vec{R}$	rayon vecteur	$\vec{r}$
$\vec{P}$	impulsion	$\vec{p}$
$\vec{L}$	moment cinétique	$\ell$
$L_z$	composante z du moment cinétique	m (ou $m\ell$ )
$\vec{A}$	vecteur de Runge-Lenz	
H	Hamiltonien	E
$\pi_t$	transformation d'inversion $\vec{r} \rightarrow -\vec{r}$	

Nous rappelons ci-dessous les valeurs de quelques constantes fondamentales en unités du système international:

$\hbar$ , constante de Planck réduite :  $\hbar = 1,05459 \times 10^{-34}$  J.s

c, vitesse de la lumière :  $c = 2,99792456 \times 10^8$  m/s

q, charge de l'électron :  $q = -1,60219 \times 10^{-19}$  C

m, masse de l'électron :  $m = 9,10956 \times 10^{-31}$  kg

On pose :

$$e^2 = \frac{q^2}{4\pi\epsilon_0} = 2,30713 \times 10^{-28} \text{ J.m}$$

$$\alpha = \frac{e^2}{\hbar c} = \frac{1}{137,0360} \text{ constante de structure fine}$$

$$a_0 = \frac{\hbar^2}{me^2} = 0,5291771 \times 10^{-10} \text{ m rayon de Bohr}$$

Nous utilisons le système d'unités atomiques de façon à alléger les notations. Dans le système d'unités atomiques, les unités de masse, de longueur et de temps sont respectivement:

[M] = m, masse de l'électron

[L] =  $a_0$ , rayon de Bohr

$$[T] = \frac{\hbar^3}{me^4} = 2,41887 \times 10^{-17} \text{ s}$$

On en déduit immédiatement l'ensemble des autres grandeurs. Le passage aux unités atomiques peut s'effectuer en faisant  $m=1$ ,  $\hbar=1$ ,  $e^2=1$ ,  $q=-1$ , dans les formules (avec  $4\pi\epsilon_0=1$ ;  $\mu_0/4\pi=\alpha^2$ ). On en déduit, ci-dessous, les valeurs de l'unité atomique de quantités particulièrement importantes:

$$\begin{aligned} \text{- Unité d'énergie : } E &= \frac{me^4}{\hbar^2} = 2.\text{Rydberg} = 4,35988.10^{-18} \text{ J} \\ &= 27,212 \text{ eV} \\ &= 1 \text{ Hartree} \end{aligned}$$

- Unité de champ électrique atomique  $F_c$

$$F_c = \frac{m^2 e^6}{|q| \hbar^4} = \frac{e^2}{|q| a_0^2} = 5,142253 \times 10^{11} \text{ V/m}$$

(champ créé par le proton sur la première orbite de Bohr).

- Unité de champ magnétique  $B_C$

$$B_C = \frac{m^2 e^4}{|q| \hbar^3} = 2,35 \cdot 10^5 \text{ T}$$

- Vecteur de Lenz :  $A = e^2 = 2,30713 \cdot 10^{-28} \text{ J.m}$

Outre celles introduites ci-dessus, nous utiliserons aussi les notations suivantes :

- Pulsation de Larmor :  $\omega_L = -(qB/2m)$

- Pulsation Stark linéaire :  $\omega_S = 3/2(4\pi\epsilon_0 \hbar/m |q|) n.F$

## INTRODUCTION

La production, il y a 3 ans, d'atomes de Rydberg circulaires, en utilisant la technique d'excitation laser-microonde en champ électrostatique [21], a permis l'ouverture d'un nouveau domaine en physique des états atomiques très excités.

Un atome de Rydberg circulaire (appelé ultérieurement atome circulaire) est un état très excité en énergie, de moment angulaire  $\ell$  maximum et de moment magnétique  $m_\ell$  maximum (i.e.  $\ell = |m_\ell| = n-1$ ,  $n$ : nombre quantique principal avec  $n \gg 1$ ) correspondant aux orbites "circulaires" de la théorie de Bohr-Sommerfeld. Depuis une dizaine d'années, de nombreux physiciens cherchent des méthodes expérimentales pour produire des atomes circulaires. FREEMAN et KLEPPNER [7] (1976) ont d'abord proposé une méthode, appelée "Stark switching", pour transférer des atomes vers des états de  $\ell$  élevé. KOCH [22] a utilisé l'excitation par laser des atomes de Rydberg dans une collision rapide pour peupler sélectivement des états de Rydberg de grand  $\ell$ . Ces méthodes ne sont cependant pas capables de produire des atomes dans l'état de  $m_\ell$  maximum ( $|m_\ell| = n-1$ ). L'équipe de KLEPPNER à M.I.T. a développé une méthode pour transférer la population des atomes d'un état de Rydberg de faible  $m_\ell$  vers un état circulaire avec une efficacité de 100%. Les atomes sont transférés par une série de passages adiabatiques rapides [23] induits par un champ microonde et un champ électrostatique qui varie linéairement dans le temps. Jusqu'à maintenant, seule la méthode de KLEPPNER est capable de préparer proprement des atomes circulaires. La possibilité d'étudier expérimentalement un grand nombre d'effets sur des atomes circulaires est ainsi apparue.

Les atomes circulaires (hydrogène ou alcalin) sont des systèmes atomiques quasi-classiques dont les propriétés sont très différentes des états de Rydberg ordinaires de  $\ell$  bas.

i) La fonction d'onde d'un état circulaire a la forme d'un tore de rayon  $n^2 a_0$ , centré sur le coeur atomique et dont l'axe de symétrie sera pris comme axe de quantification. Dans le cas des alcalins, comme l'électron de Rydberg ne pénètre pratiquement pas dans le coeur atomique, les états circulaires des divers éléments ont presque tous la même fonction

d'onde. Leurs énergies de liaisons ne diffèrent de celles de l'hydrogène :  $E_n = (-e^2/2a_0)(1/n^2)$ , que d'une très petite quantité liée à la polarisabilité du coeur atomique [1, 7].

ii) Comme l'électron de valence se déplace sur une orbite quasi-bidimensionnelle, les atomes n'ont aucun dipôle le long de l'axe de quantification et sont relativement insensibles aux champs électriques dirigés perpendiculairement au plan de l'orbite. L'effet Stark des atomes circulaires est quadratique dans cette direction.

iii) A cause des règles de sélection dipolaire électrique, les états circulaires ne s'amortissent radiativement que vers d'autres états circulaires: l'état circulaire  $|n, m_l = \pm(n-1)\rangle$  vers l'état circulaire  $|n'=n-1, m'_l = \pm(n-2)\rangle$  via la transition de radiofréquence. Ils ont donc une très longue durée de vie d'émission spontanée  $\tau_n$ , qui varie comme  $n^5$  ( $\tau_n \sim 2\text{ms}$ , pour  $n=30$ ) [24].

iv) Un état circulaire dont les 3 nombres quantiques sont grands à la fois est un système très proche d'un système classique en vertu du principe de correspondance. Nous verrons en particulier que la dynamique d'un atome initialement circulaire dans un champ électrique et/ou magnétique peut être décrite par la théorie classique.

v) Le dipôle magnétique est maximum dans un état circulaire.

vi) La fonction d'onde très anisotrope d'un état circulaire rend la collision ou la photoionisation des atomes circulaire très anisotrope.

Pour avoir une idée plus concrète, on donne dans le tableau ci-contre (tableau I) la liste de différentes propriétés physiques des atomes avec leurs valeurs typiques dans les atomes peu excités, dans les atomes de Rydberg de  $l$  bas et dans les atomes circulaires de  $n \approx 30$ .

La méthode de l'équipe de KLEPPNER (M. I. T.) pour la préparation des états circulaires utilise un champ électrostatique pour lever la dégénérescence des niveaux d'énergie de lithium à  $n$  fixé. La connaissance des propriétés des atomes de Rydberg alcalins en présence d'un champ électrostatique (effet Stark) est importante pour comprendre la dynamique de la préparation des états circulaires.

	Etat peu excité	Etat de Rydberg de $l$ bas $l \sim 1$		Etat de Rydberg circulaire $ m  = l = n - 1$	
	$n \sim 1$ $l \sim 1$	Variation avec $n$	Ordre de grandeur $n \sim 30$	Variation avec $n$	Ordre de grandeur $n \sim 30$
- Energie de liaison	$\begin{cases} 10 \text{ eV} \\ 10^5 \text{ cm}^{-1} \\ 1000 \text{ \AA} \end{cases}$	$\frac{1}{n^2}$	$\begin{cases} 10 \text{ meV} \\ 100 \text{ cm}^{-1} \\ 100 \text{ \mu m} \end{cases}$	$\frac{1}{n^2}$	idem
- Rayon de l'orbite	1 $\text{\AA}$	$n^2$	1000 $\text{\AA}$	$n^2$	1000 $\text{\AA}$
- Structure fine	10 GHz	$\frac{1}{n^3}$	5 MHz	$\frac{1}{n^3}$	7 KHz
- Excentricité de l'orbite			$\neq 0$		0
- Dipôle électrique . entre niveaux $ n\rangle$ et $ n-1\rangle$	1 $\text{\AA} \times q$	$n^2$	$10^3 \text{\AA} \times q$	$n^2$	$10^3 \text{\AA} \times q$
. entre niveaux $ n\rangle$ et niveau peu excité	1 $\text{\AA} \times q$	$\frac{1}{n^2}$	$10^{-4} \text{\AA} \times q$		0
- Dipôle magnétique	$\mu_B$ ( $9.27 \times 10^{-24} \text{ JT}^{-1}$ )	$n^0$		$n^1$	$(n-1) \mu_B$ ( $2.78 \times 10^{-22} \text{ JT}^{-1}$ )
- Durée de vie	1 ns	$\frac{1}{n^3}$	30 $\mu\text{s}$	$\frac{1}{n^3}$	2 ms
- Champ électrostatique ionisant	$10^8 \text{ V/cm}$	$\frac{1}{n^4}$	100 V/cm	$\frac{4}{3} \cdot \frac{1}{n^4}$	133 V/cm

Tableau I : Les propriétés physiques des atomes avec leurs valeurs typiques dans les atomes peu excités, dans les atomes de Rydberg de  $l$  bas et dans les atomes circulaires de  $n \sim 30$ .



Si le champ électrostatique  $F$  est suffisamment petit, le déplacement Stark des niveaux de Rydberg de  $\ell$  bas de l'atome alcalin est quadratique en  $F$ . Si  $F$  augmente, l'interaction Stark devient comparable à l'interaction avec le coeur atomique, représentée par le défaut quantique, et le déplacement Stark devient linéaire, avec des niveaux équidistants, comme dans l'hydrogène. L'effet Stark linéaire des atomes de Rydberg alcalins est très légèrement différent de l'effet Stark de l'atome d'hydrogène. Certains niveaux Stark de  $|m|$  différents (e.g.  $|m| = 0, 1, 2$  dans le sodium) apparaissent comme quasi-dégénérés dans le régime linéaire. Ce phénomène, que nous avons observé dans le sodium, est commun aux différents alcalins et peut être expliqué par un modèle simple. Cette caractéristique "universelle" est importante pour distinguer et identifier des sous-niveaux dans un spectre Stark.

Les diverses propriétés des états de Rydberg circulaires permettent d'envisager de nombreux types d'expériences. Premièrement, ce système peut être utilisé pour déterminer la constante de Rydberg en unité de fréquence [21, 25] par spectroscopie microonde de haute résolution. On peut espérer observer des résonances très fines avec des raies spectrales sensibles seulement quadratiquement aux champs électriques parasites et dont les fréquences dépendent peu des propriétés du coeur atomique. On relie alors facilement les fréquences mesurées aux fréquences de l'hydrogène via la détermination de très petites corrections dues aux défauts quantiques. D'autres types d'effets sont intéressants à étudier, comme l'évolution d'un atome initialement circulaire dans un champ électrostatique dont l'amplitude et la direction varient dans le temps. Si un atome circulaire est insensible aux champs électriques appliqués parallèlement à l'axe de quantification, il est au contraire très sensible aux champs perpendiculaires à cet axe. Comme un état circulaire est très dégénéré avec les autres états de grand  $\ell$  comparé aux états alcalins de  $\ell$  bas (non dégénérés à cause de leurs défauts quantiques), un tout petit champ orthogonal peut faire passer les atomes d'un état circulaire vers un état correspondant à une orbite très elliptique.

Ce travail rassemble diverses études spectroscopiques sur les atomes de Rydberg, dont la motivation principale est la compréhension détaillée des processus qui interviennent dans la préparation et l'évolution des atomes de Rydberg circulaires. Il constitue ainsi une étape préliminaire à une mesure de la constante de Rydberg en unités de fréquence.

Au chapitre I de ce mémoire, nous présentons une revue des propriétés d'un atome circulaire (hydrogène ou alcalin) et passons en revue les propriétés principales de l'atome isolé, puis celles de l'atome en interaction avec le milieu extérieur: rayonnement, champ électrique ou magnétique statique, autres atomes dans des processus de collision, etc... L'intérêt de l'étude de ces atomes circulaires étant ainsi justifié, nous présentons ensuite notre contribution à l'étude de ces états.

La méthode de préparation des atomes circulaires met en jeu les propriétés des atomes de Rydberg dans un champ électrique. Il est nécessaire de savoir préparer initialement l'atome dans un sous-niveau Stark bien défini, de faible moment magnétique. Cette préparation est a priori plus sélective avec une excitation laser continue de faible largeur spectrale (lasers à diode). Elle est cependant plus efficace avec une excitation laser en impulsion intense. Nous avons donc exploré ces deux voies de préparation et étudié aussi bien l'excitation continue que l'excitation impulsionnelle. A cette occasion, nous avons été amenés à étudier différents aspects de l'effet Stark des atomes alcalins qui les distingue de celui de l'hydrogène et dont la compréhension est importante pour l'analyse du processus de préparation des atomes circulaires. Cette partie du travail est présentée aux chapitres II, III et IV de ce mémoire: le chapitre II analyse l'effet Stark des atomes de Rydberg alcalins de faible moment magnétique.

Le chapitre III décrit la préparation continue ou impulsionnelle des atomes alcalins (sodium ou lithium) dans des états de Rydberg de faible moment magnétique et le chapitre IV présente l'ensemble des études expérimentales d'effet Stark que nous avons réalisées, tant sur le Na que sur le Li.

Nous abordons ensuite les expériences proprement dites effectuées sur les états circulaires préparés par la méthode de HULET et KLEPPNER [21]. Le chapitre V présente une expérience de spectroscopie d'un atome circulaire de lithium (transition  $n=25 \rightarrow n=24$ ) qui constitue un premier pas vers une mesure de Rydberg.

Cette expérience nous a révélé l'importance des effets dynamiques produits sur un atome circulaire par un champ électrique de direction variable dans le temps. Ces effets, dont la compréhension est également très importante pour la physique des atomes circulaires, sont décrits au chapitre VI.

Nous décrivons enfin, en Appendice, deux expériences que nous avons réalisées et qui ne sont pas directement reliées aux études précédemment décrites: la spectroscopie des états de Rydberg du lithium en l'absence de champ électrique (Appendice III) et une expérience de modification des vitesses des atomes d'un jet atomique soumis à un laser multimode à modes rapprochés (Appendices IV et V).

## PARTIE THEORIQUE

## CHAPITRE I

PROPRIETES GENERALES D'UN ATOME DE RYDBERG CIRCULAIRE  
(HYDROGENE OU ALCALIN)

I. 1. ATOME ISOLE

Nous allons nous intéresser, au début de cette partie théorique, aux états de Rydberg circulaires, en les décrivant à la fois quantiquement et classiquement. Le système étudié dans I. 1 sera toujours constitué d'un seul atome, soit hydrogénoïde, soit alcalin. La présentation se fera en commençant par l'atome d'hydrogène, pour extrapoler ensuite aux alcalins en introduisant les effets liés au coeur. L'interaction avec l'extérieur (champ électrique, magnétique, rayonnement) sera étudiée par la suite.

Nous commencerons par le modèle classique, l'électron se déplaçant suivant une trajectoire bien définie. Ensuite, dans le cadre de la mécanique quantique, nous décrirons le spectre et la fonction d'onde d'un atome d'hydrogène isolé. Dans le cas d'atomes alcalins, il existe pour l'état circulaire un défaut quantique résiduel que nous évaluerons.

Dans cette partie, nous nous référerons souvent aux travaux de thèse de FABRE [1], PENENT [2] et CHARDONNET [3].

I. 1. 1. Atome d'hydrogène isolé (modèle classique)

Rappelons quelques résultats physiques simples pour un atome à un électron dans un espace à trois dimensions en mécanique classique.

Nous ferons les hypothèses simplificatrices :

- le noyau est ponctuel;
- sa masse est infinie;
- on néglige tout effet relativiste.

Nous utiliserons dans ce paragraphe le système SI.

Nous noterons  $\vec{r}$  et  $\vec{p}$  les vecteurs position et quantité de mouvement de l'électron, l'origine étant choisie au noyau.

En l'absence de champ extérieur, l'électron est soumis à la seule force de Coulomb :

$$\vec{F}_a = - \frac{q^2}{4\pi\epsilon_0} \frac{\vec{r}}{r^3} \quad (I.1)$$

Le mouvement s'effectuant dans un champ central, le moment cinétique est conservé :

$$\frac{d\vec{L}}{dt} = \frac{d}{dt} (\vec{r} \times \vec{p}) = \vec{0} \quad (\text{I.2})$$

Il existe une autre constante du mouvement, spécifique du champ coulombien :

$$\vec{A} = \frac{1}{m} \vec{L} \times \vec{p} + \frac{q^2}{4\pi\epsilon_0} \frac{\vec{r}}{r} \quad \text{et} \quad \frac{d\vec{A}}{dt} = \vec{0} \quad (\text{I.3})$$

$\vec{A}$  est appelé vecteur de Runge-Lenz.  $\vec{L}$  et  $\vec{A}$  vérifient :

$$\vec{L} \cdot \vec{A} = 0 \quad (\text{I.4})$$

Ces deux constantes vectorielles,  $\vec{L}$  et  $\vec{A}$ , suffisent à rendre compte parfaitement de la trajectoire de l'électron.

Notamment, un calcul élémentaire permet de montrer que l'énergie totale  $E = p^2/2m - (q^2/4\pi\epsilon_0)(1/r)$  vérifie la relation :

$$E = - \frac{me^4}{2L^2} \left[ 1 - \frac{A^2}{e^4} \right] \quad (\text{I.5})$$

où 
$$e^2 = \frac{q^2}{4\pi\epsilon_0}.$$

*Trajectoire :*

- Elle est très simplement reliée à  $\vec{L}$  et  $\vec{A}$ .
- Elle est dans un plan orthogonal à  $\vec{L}$ .
- Dans ce plan, son équation s'obtient en formant  $\vec{A} \cdot \vec{r}$ :

$$\vec{A} \cdot \vec{r} = e^2 r - \frac{L^2}{m}.$$

Introduisons alors  $\theta$ , l'angle entre  $\vec{A}$  et  $\vec{r}$ , l'équation de la trajectoire s'écrit immédiatement :

$$\frac{1}{r} = \frac{me^2}{L^2} \left[ 1 - \frac{A}{e^2} \cos \theta \right] \quad (\text{I.6})$$

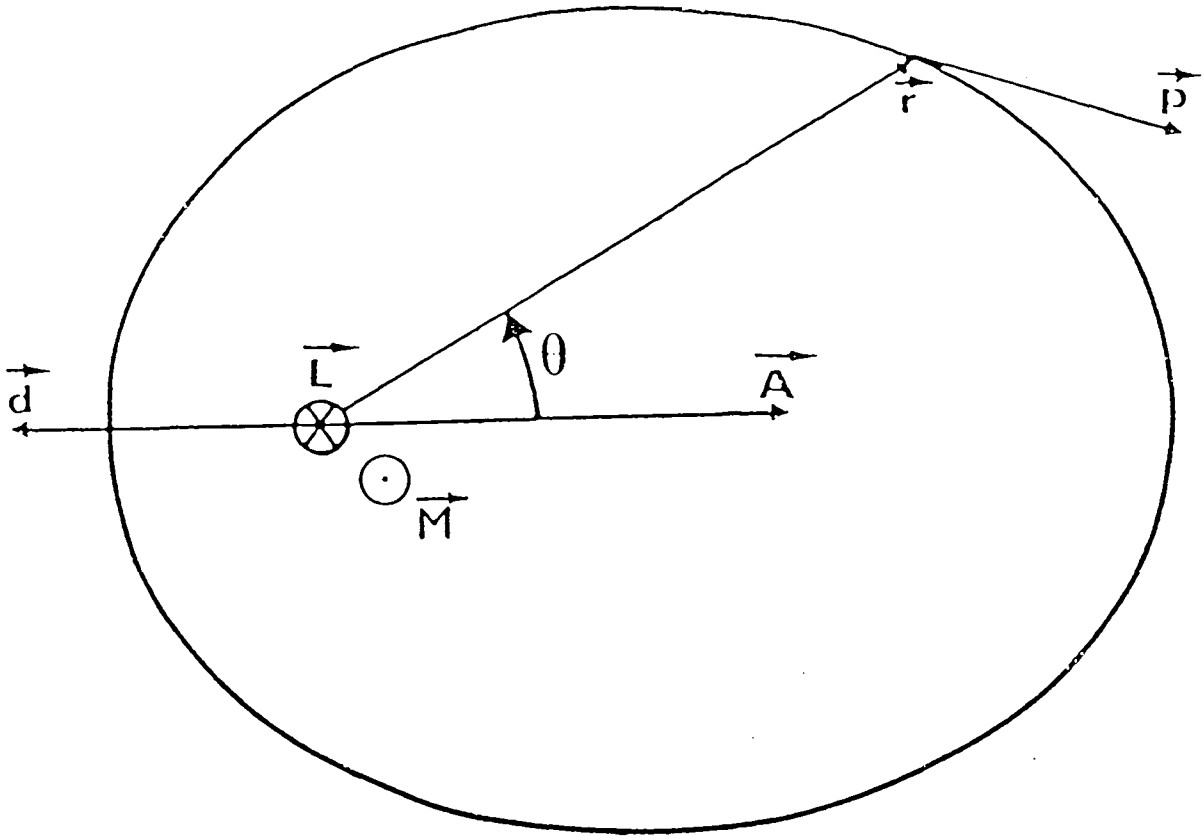


Fig.1-la La trajectoire elliptique de l'electron

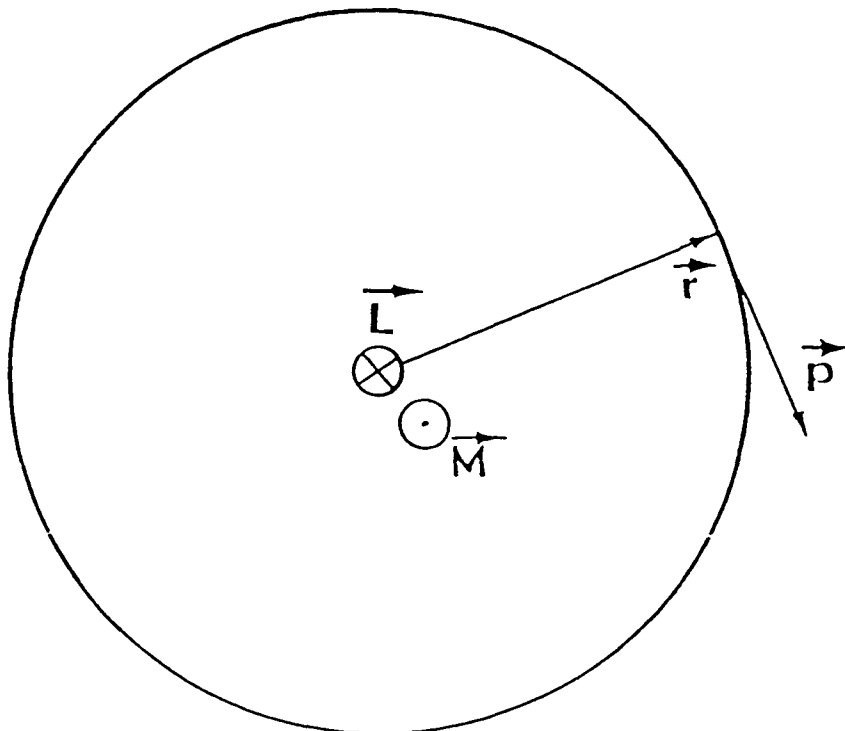


Fig.1-lb La trajectoire circulaire de l'electron

$\vec{A}$  possède une interprétation simple : son module est (au facteur  $e^2$  près) l'excentricité de la trajectoire. On retrouve les trajectoires elliptiques ( $A/e^2 < 1$  et  $E < 0$ ), paraboliques ( $A/e^2 = 1$  et  $E = 0$ ), hyperboliques ( $A/e^2 > 1$  et  $E > 0$ ). Un des foyers des trajectoires est le noyau.

- Enfin, dans le cas d'une trajectoire elliptique, si  $a$  est le demi-grand axe de l'ellipse, on retrouve que :

$$E = - \frac{e^2}{2a} \quad (\text{I.7})$$

- La figure I-1.a représente une trajectoire elliptique avec ces différentes caractéristiques.

Dans le cas d'une trajectoire circulaire (fig. I-1.b),  $A$  est nul et la trajectoire a pour équation :

$$r = \frac{L^2}{me^2}$$

où  $L^2/me^2$  est le rayon de l'orbite circulaire. Le module de l'impulsion de l'électron placé sur une orbite circulaire est constant et vaut :

$$P = |\vec{p}| = \frac{|\vec{L}|}{r} = \frac{me^2}{L}$$

Notons, dans le cas d'une trajectoire elliptique, une propriété qui nous sera utile par la suite : l'atome possède un dipôle électrique permanent moyen :

$$\vec{d} = q \langle \vec{r} \rangle = q \frac{1}{T} \int_0^T \vec{r}(t) dt$$

où  $T$  est la période du mouvement  $T = 2\pi \left[ \frac{m}{e^2} \right]^{1/2} a^{3/2}$ .

On montre aisément que :

$$\vec{d} = \frac{3}{2} \frac{qa}{e^2} \vec{A} \quad (\text{I.8})$$

$\vec{d}$  est proportionnel à l'excentricité et s'annule évidemment pour l'orbite circulaire.



L'atome possède également un dipôle magnétique permanent  $\vec{M}$  résultant de la rotation de l'électron autour du noyau :

$$\vec{M} = \frac{-|q|}{2m} \vec{L} \quad (I.9)$$

Calculons maintenant la durée de vie (classique) de l'électron sur une orbite circulaire. Du fait de son accélération  $\vec{a}$ , l'électron rayonne. On admettra que la puissance rayonnée est  $P(t) = (e^2)/(4\pi\epsilon_0 C^3) |\vec{a}|^2$  [47] et que l'énergie  $E$  ne change d'une façon appréciable qu'au bout d'un temps long devant la période  $T$ . La variation à long terme de  $E$  peut donc être évaluée en calculant la valeur moyenne temporelle notée  $\langle E \rangle$  sur l'orbite non perturbée (moyenne séculaire).

D'après l'équation (I.1), l'accélération de l'électron vaut:

$$\vec{a} = \frac{\vec{F}_a}{m} = - \frac{e^2}{m} \frac{\vec{r}}{r^3}$$

La variation de l'énergie  $E$  moyenne  $\langle E \rangle$  obéit donc à la relation:

$$\begin{aligned} \frac{d \langle E \rangle}{dt} &= \langle P(t) \rangle \\ &= - \frac{\tau_0}{m} e^4 \left\langle \frac{1}{r^4} \right\rangle \quad \text{avec } \tau_0 = \frac{q^2}{6\pi\epsilon_0 m C^3} \end{aligned}$$

Pour une orbite circulaire, l'énergie vaut  $E = -(1/2)(e^2/r)$  (voir l'équation (I.7)). En revenant à l'équation précédente, on montre que l'équation d'évolution de  $r(t)$  est:

$$r^3(t) = r_0^3 - 9 (C\tau_0)^3 \frac{t}{t_0} \quad (I.10)$$

où  $r_0$  est la valeur initiale de  $r$  à l'instant  $t=0$ . D'après le modèle de Bohr [48], le moment cinétique vaut  $n\hbar$  et on a donc:

$$\begin{cases} r = n^2 a_0 \\ v = \frac{1}{n} \frac{C}{\alpha} \end{cases}$$

( $r$  et  $v$  sont le rayon et la vitesse de l'électron,  $a_0$  le rayon de Bohr;  $\alpha$  la constante de structure fine;  $C$  la vitesse de la lumière).

La probabilité de transition par unité de temps du niveau  $n$  au niveau  $n-1$   $\gamma_{n \rightarrow n-1}$  se calcule facilement à partir de l'équation d'évolution de  $r(t)$  (équ. I.10):

$$\gamma_{n \rightarrow n-1} = \frac{3}{2} \frac{(C\tau_0)^3}{\tau_0 a_0^3} n^{-5}$$

La durée de vie du niveau  $n$  vaut numériquement:

$$\tau_n = \gamma_{n \rightarrow n-1}^{-1} = 9,33 \cdot 10^{-11} n^5 \text{ (s)} \quad (\text{I.11})$$

Elle varie avec  $n$  comme  $n^5$ .

### I.1.2. Atome d'hydrogène isolé (modèle quantique)

Dans ce paragraphe, nous rappelons les résultats essentiels qui nous serviront dans les chapitres ultérieurs et nous introduisons les notations que nous utiliserons. Nous emploierons les unités atomiques.

L'hamiltonien du système s'écrit :

$$H_0 = \frac{1}{2} \vec{p}^2 - \frac{1}{R}$$

Nous négligeons ici les spins de l'électron et du noyau ainsi que les effets relativistes.

Le spectre des énergies négatives du système s'écrit :

$$E_n = - \frac{1}{2n^2} \quad (\text{I.12})$$

Le spectre des énergies positives est continu.

La fonction d'onde de l'électron peut se mettre sous différentes formes.

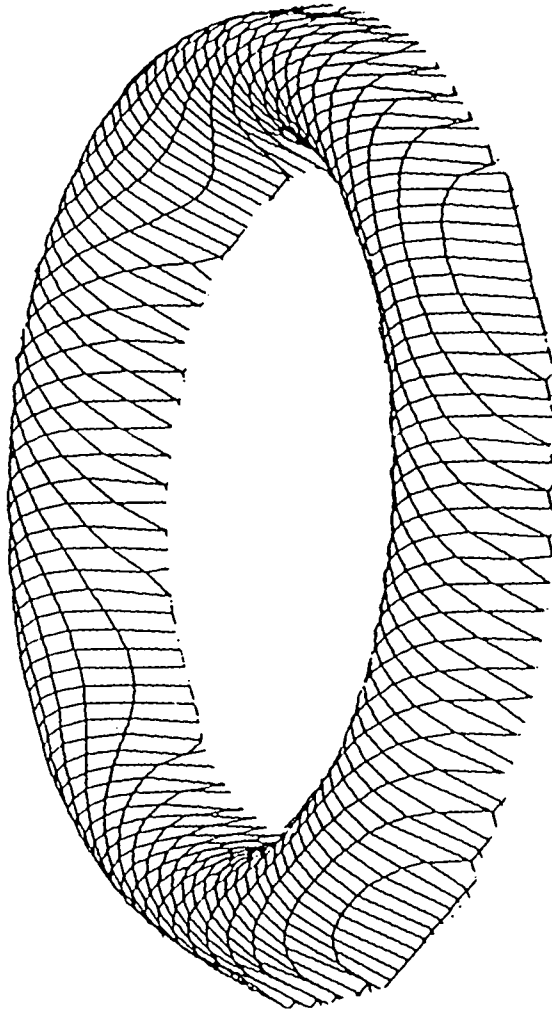


Fig I-2a Vue en perspective de la fonction d'onde d'un état circulaire  
 $l_n=25, m=24$  dans le demi espace supérieur

longueur de l'anneau  $\frac{2\pi}{k}$   $\frac{2\pi}{k}$   $\frac{2\pi}{k}$

- Fonction d'onde en coordonnées sphériques

La fonction d'onde de l'électron s'écrit [4]

$$\begin{aligned} \psi_{n,\ell,m} &= R_{n\ell}(r) Y_{\ell}^m(\theta, \varphi) \\ &= \frac{2}{n^{\ell+2} (2\ell+1)!} \sqrt{\frac{(n+\ell)!}{(n-\ell-1)!}} (2r)^{\ell} \\ & e^{-r/n} F\left[-n+\ell+1, 2\ell+2, \frac{2r}{n}\right] Y_{\ell}^m(\theta, \varphi) \end{aligned} \quad (\text{I.13})$$

où  $F$  est la fonction hypergéométrique confluyente.  $\ell(\ell+1)$  et  $m$  sont respectivement les valeurs propres de  $L^2$  et  $L_z$  (l'axe de quantification étant  $\vec{e}_z$ ).  $\ell$  et  $m$  sont des entiers satisfaisant à la condition:

$$\begin{aligned} 0 &\leq \ell \leq n-1 \\ -\ell &\leq m \leq \ell \end{aligned}$$

La fonction d'onde est particulièrement simple et intéressante pour un état circulaire. Un tel état correspond classiquement à une orbite circulaire (voir fig. I.1. b) quantiquement à l'état de  $\ell = |m|$  maximum égal à  $(n-1)$ . La fonction d'onde de l'état circulaire  $|n, \ell=n-1, m=n-1\rangle$  se met sous la forme:

$$\psi(r, \theta, \varphi) = A_n e^{-r/n} r^{n-1} (\sin\theta)^{n-1} e^{i(n-1)\varphi} \quad (\text{I.14})$$

$$\text{où } A_n = (-)^{n-1} \frac{1}{2\pi} \cdot \frac{\sqrt{(2n-2)!}}{n^n n!}$$

En fixant  $n=25$ , nous avons dessiné sur la figure 1.2. a une vue en perspective de la fonction d'onde de l'état circulaire dans le demi-espace supérieur qui a une forme torique (à la surface du tore, la probabilité de présence de l'électron  $|\psi|^2$  est égale à la moitié de  $|\psi_{\max}|^2$ ). Nous avons tracé sur les figures I.2. b et I.2. c la dépendance radiale (en fonction de  $r$ ) et angulaire (en fonction de  $\theta$ ) de la probabilité de présence de l'électron.

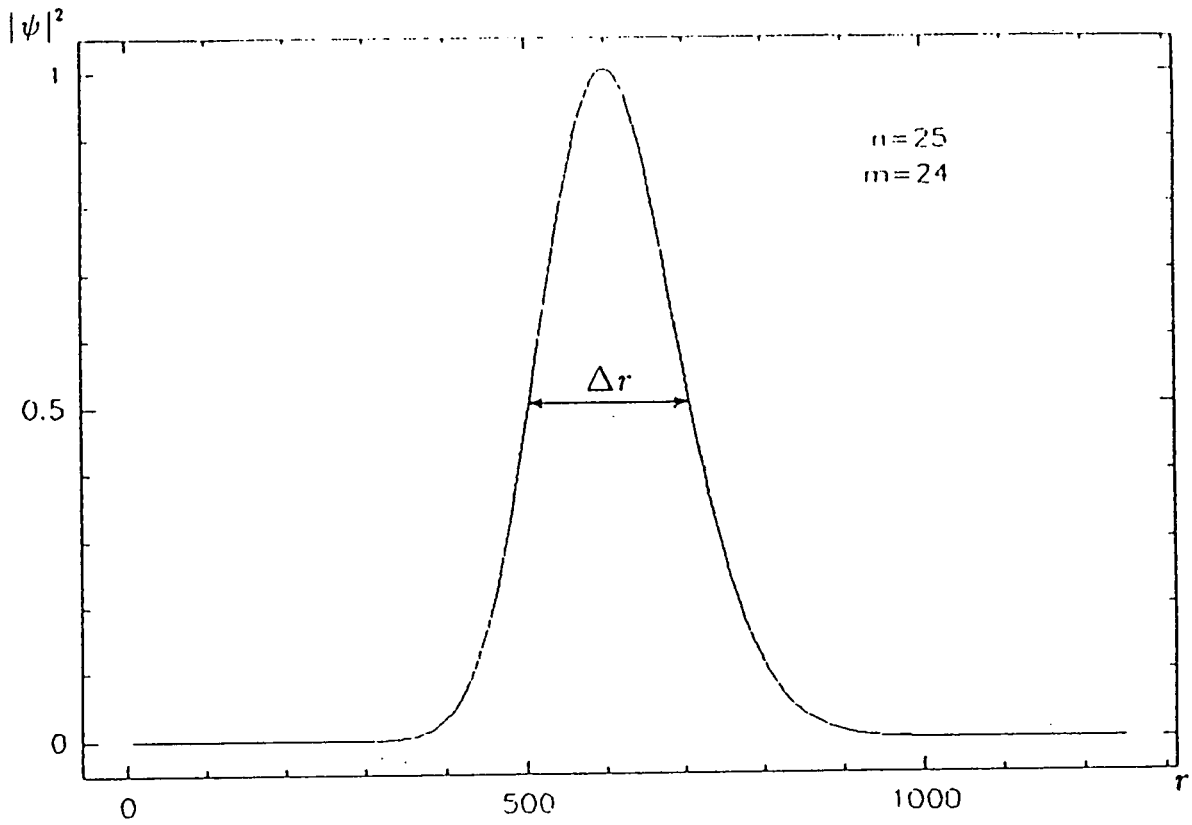


Fig. I-2b La fonction d'onde radiale d'un état circulaire  $|n=25, m=24\rangle$

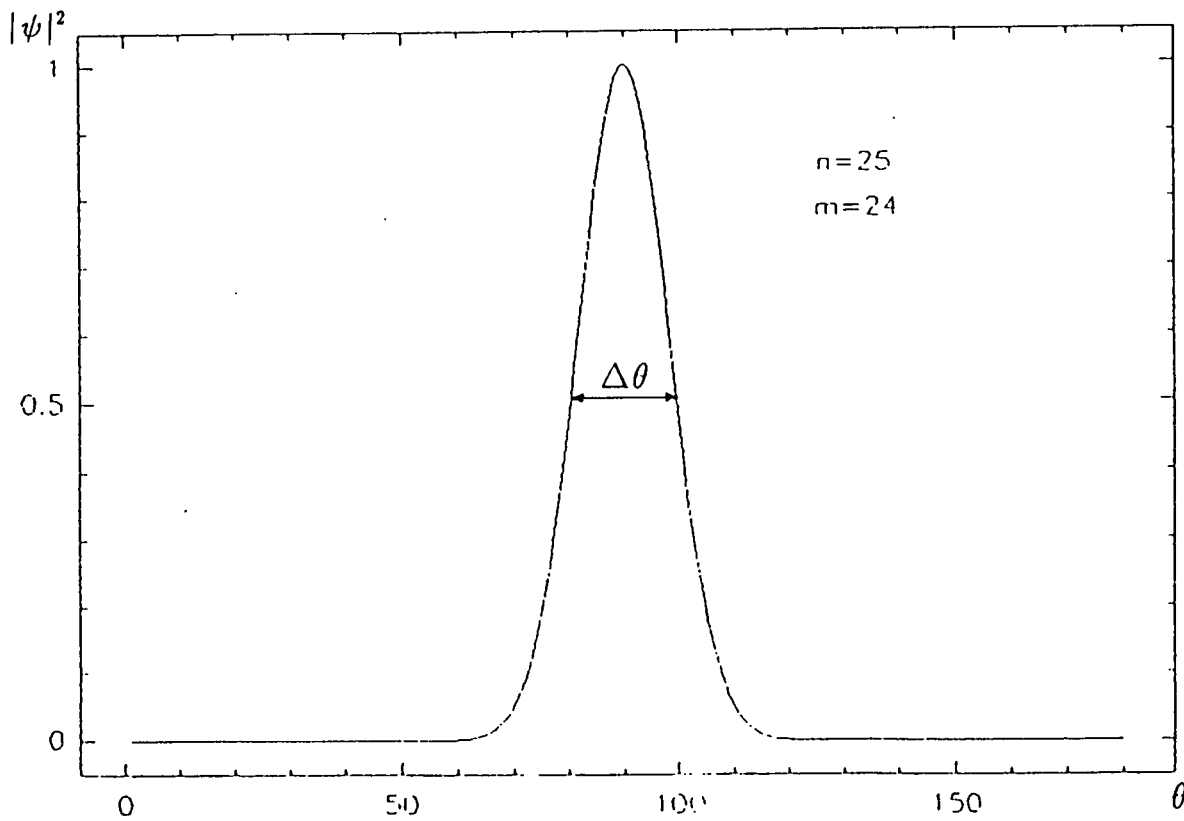


Fig. I-2c La fonction d'onde angulaire d'un état circulaire  $|n=25, m=24\rangle$

On constate sur ces courbes que l'on a affaire à des états qui tendent très vite à être extrêmement localisés dans le plan XOY, autour du cercle de rayon  $n(n+1)$ , mais entièrement délocalisés sur ce cercle. On peut montrer que lorsque  $n$  croît,  $\Delta r = 2n \sqrt{n-1}$ , et que l'on a donc:

$$\frac{\Delta r}{r} \approx \frac{2}{\sqrt{n}} \quad (\text{I.15-a})$$

et

$$\Delta \theta \approx \frac{2}{\sqrt{n}} \quad (\text{I.15-b})$$

Lorsque  $n \rightarrow \infty$ , la fonction d'onde est de plus en plus localisée le long de la trajectoire classique. C'est là une illustration du principe de correspondance de Bohr. Remarquons la grande anisotropie de la fonction d'onde qui est de dimension  $2n^2 a_0$  dans le plan perpendiculaire à  $\vec{e}_z$  et  $2n\sqrt{n-1} a_0$  dans la direction  $\vec{e}_z$ .

#### -Fonction d'onde en coordonnées paraboliques

Les coordonnées cylindrique et sphérique sont notées habituellement  $(\rho, z, \varphi)$  et  $(r, \theta, \varphi)$ . Les coordonnées paraboliques s'en déduisent par:

$$\begin{cases} \xi = r + z \\ \eta = r - z \\ \varphi = \text{tg}^{-1} \frac{y}{x} \end{cases} \quad (\text{I.16})$$

La fonction d'onde pour les états liés d'énergie négative est [3] :

$$\psi_{n_1, n_2, m} = \frac{\sqrt{2}}{n^2} f_{n_1, m} \left[ \frac{\xi}{n} \right] f_{n_2, m} \left[ \frac{\eta}{n} \right] \frac{e^{im\varphi}}{\sqrt{2\pi}} \quad (\text{I.17})$$

où :

$$f_{p, m}(\rho) = \frac{1}{|m|!} \sqrt{\frac{(p+|m|)!}{p!}} F(-p, |m|+1, \rho) e^{-\rho/2} \rho^{|m|/2}$$

avec  $n = n_1 + n_2 + |m| + 1$ .

Un état circulaire correspond à  $n_1 = 0$  et  $|m| = n-1$ .

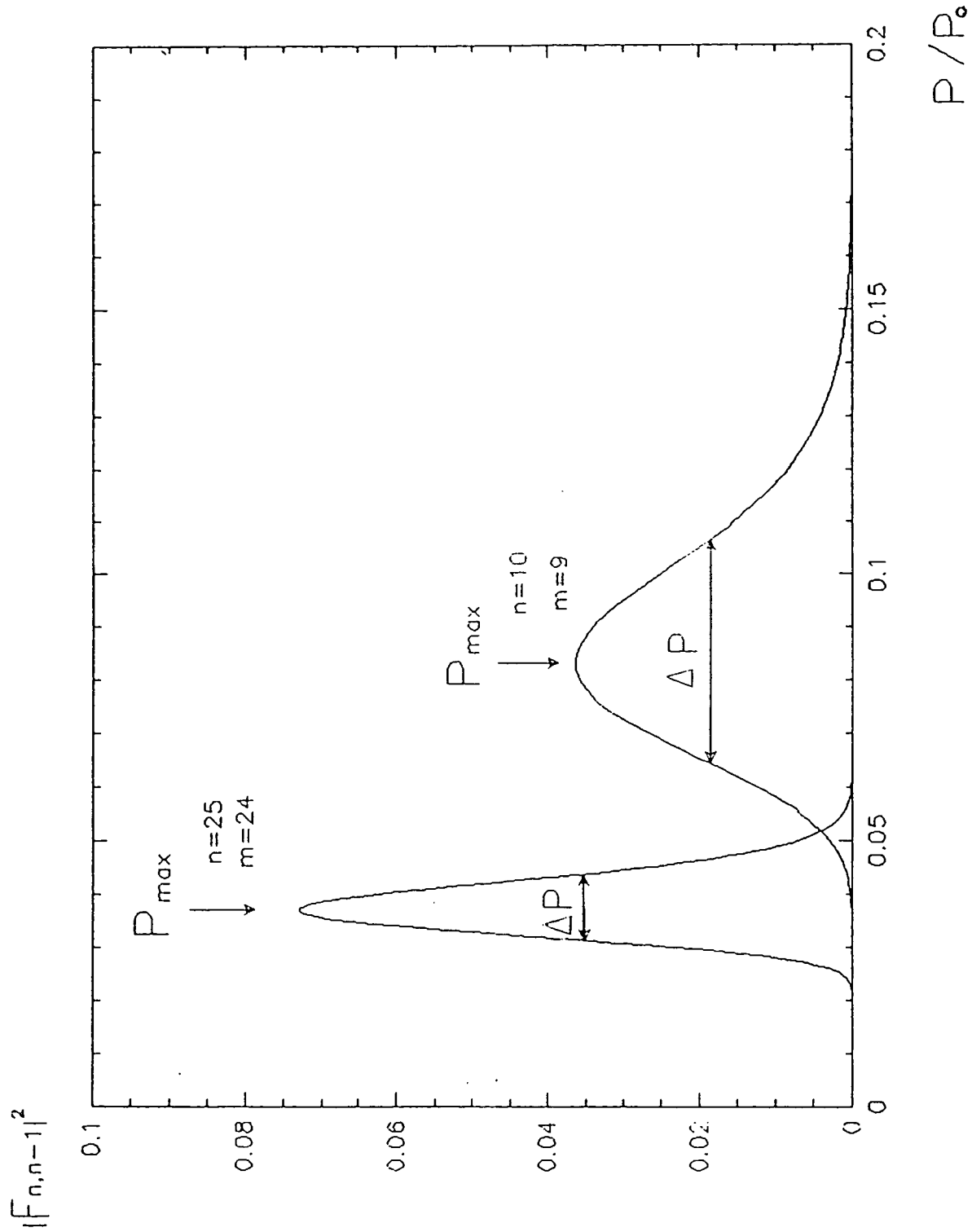


Fig. I-3 La fonction d'onde d'un état circulaire en représentation  $p$

- Fonction d'onde en représentation  $\vec{p}$  ( $p, \theta, \varphi$ ) [1].

Elle peut être utile dans certaines applications. Posons :

$$\alpha = 2 \operatorname{Arctg} \frac{p_0}{np} \quad (\text{I.18})$$

où  $p_0$  est l'unité atomique d'impulsion :  $p_0 = me^2/\hbar = \alpha mc$ . La fonction d'onde en représentation  $p$  s'écrit alors :

$$F_{nl}(p) = \frac{1}{p_0^{3/2}} \left[ \frac{2}{\pi} \frac{(n-l-1)!}{(n+l)!} \right]^{1/2} n^{-2} 2^{2(l+1)} l! \Phi_{nl}(p) \quad (\text{I.19})$$

avec :

$$\Phi_{nl}(p) = \cos^l \frac{\alpha}{2} \sin^{l+4} \frac{\alpha}{2} C_{n-l-1}^{l+1}(\cos \alpha) \quad (\text{I.20})$$

$C_n^m(x)$  étant un polynôme de GEGENBAUER. Cette expression se simplifie pour les valeurs extrêmes du moment cinétique. On a alors, en vertu des relations de la référence [5] (page 776), pour un état circulaire:

$$F_{n,n-1}(p) = \frac{1}{p_0^{3/2}} \sqrt{\frac{8}{\pi(2n-1)!}} n 2^n n! \sin^{n-1} \alpha \sin^4 \frac{\alpha}{2} \quad (\text{I.21})$$

Cette fonction d'onde est représentée sur la figure 1.3 pour les valeurs  $n=9$  et  $n=25$ . Elle n'a qu'un maximum centré sur  $p$  voisin de  $p_0/n$  ( $p_{\max} = p_0/n (1 - 4/n+3)$ ). La largeur de la courbe est de l'ordre de  $p_0/n^2$ . Pour les faibles valeurs de  $p$ , la fonction d'onde tend vers 0 comme  $p^{n+3}$ , pour  $p \rightarrow +\infty$ , elle est proportionnelle à  $(1/p)^{n+3}$ . Elle tend donc vers 0 très rapidement. On remarquera que la largeur relative  $\Delta P/P_{\max}$  de la distribution de  $p$ , diminue lorsque  $n$  augmente. Lorsque  $n$  est grand,  $F_{n,n-1}(p)$  tend vers une fonction  $\delta(p-p_0/n)$ : l'électron sur une orbite circulaire est de plus en plus monocinétique.



### I.1.3. Ecart à la loi $1/n^2$ : Polarisation, pénétration et effet relativiste

On peut exprimer l'énergie des atomes alcalins à l'aide du défaut quantique  $\delta_l$  [6] suivant (la formule en unités atomiques):

$$E = - \frac{1}{2} \left[ n - \delta_l \right]^{-2} \quad (I.22)$$

$\delta_l$  varie très lentement en fonction de  $n$ . Pour des états de Rydberg ( $n \gg 1$ ) de grand moment angulaire ( $l \gg 1$ ),  $\delta_l$  est très petit ( $\delta_l \ll 1$ ), on peut écrire:

$$E = - \frac{1}{2n^2} - (\delta_l/n^3) \left[ 1 + O(\delta_l/n) \right] \quad (I.23)$$

L'état circulaire d'un alcalin est l'état le plus hydrogénoïde parce que de tous les états de même  $n$ , c'est l'état qui a le défaut quantique  $\delta_l$

le plus petit ( $\delta_l$  diminue avec  $l$  et  $l = n-1$  est maximum). Nous allons calculer dans ce paragraphe le défaut quantique résiduel d'un état circulaire alcalin.

Si l'on met l'énergie d'un atome de Rydberg sous la forme  $E = -1/2n^2 - A/n^3$  où  $A$  varie très lentement en fonction de  $n$ , on peut identifier  $A$  avec le défaut quantique.

Pour un alcalin dans un état correspondant à une orbite non pénétrante, c'est-à-dire de  $l > l_{\text{coeur}}$  où  $l_{\text{coeur}}$  est le moment angulaire maximum des électrons du coeur, on peut écrire [7]:

$$E(n, l) = E_0 + E_{\text{pol}} + E_{\text{pen}} + E_{\text{rel}} \quad (I.24)$$

$E_0$  est l'énergie hydrogénoïde  $E_0 = -1/2n^2$ ,  $E_{\text{pol}}$  est l'énergie de polarisation du coeur par l'électron de valence;  $E_{\text{pen}}$  est le déplacement d'énergie dû à la pénétration de l'électron externe dans le coeur (effet d'écran), et  $E_{\text{rel}}$  est la correction relativiste à l'énergie coulombienne. Les trois derniers termes  $E_{\text{pol}}$ ,  $E_{\text{pen}}$ ,  $E_{\text{rel}}$  dans la formule (I.24) sont supposés suffisamment petits pour être traités par la théorie perturbative.

Dans les états de grand moment angulaire,  $E_{\text{pen}}$  est très petit devant  $E_{\text{pol}}$  et  $E_{\text{rel}}$ , et sera négligé dans notre calcul.  $E_{\text{rel}}$  est très proche de la valeur hydrogénoïde

$$E_{\text{rel}}^{(j)} = \frac{1}{2} n^{-3} \alpha^2 \left[ \frac{1}{j + 1/2} - \frac{3}{4n} \right] \quad (\text{I.25})$$

( $\alpha$ , constante de structure fine,  $j = l \pm 1/2$ ).

Il est responsable de la structure fine du niveau.

$E_{\text{pol}}$  peut être évalué à partir du potentiel [e] :

$$V_{\text{pol}} = - \frac{1}{2} \alpha'_d \left[ \frac{1}{r^4} \right] - \frac{1}{2} \alpha'_Q \left[ \frac{1}{r^6} \right] + \dots \quad (\text{I.26})$$

Ce potentiel est dû au fait que l'électron de Rydberg polarise le coeur. Ceci entraîne l'existence d'un champ multipolaire dû au coeur, qui à son tour interagit avec l'électron de Rydberg. Les deux termes de la formule (I.26) sont les deux premiers termes du développement multipolaire.

$\alpha'_d$  et  $\alpha'_Q$  sont la polarisabilité dipolaire électrique et quadrupolaire électrique.

Nous approximons  $V_{\text{pol}}$  par le terme dipolaire dominant; en utilisant la valeur hydrogénoïde de  $\langle r^{-4} \rangle$ , on a:

$$E_{\text{pol}} = \langle n, l | V_{\text{pol}} | n, l \rangle = - \frac{1}{2} \alpha'_d \frac{3n^2 - l(l+1)}{2n^5 (l - \frac{1}{2}) l (l + \frac{1}{2}) (l+1) (l + \frac{3}{2})} \quad (\text{I.27})$$

Pour  $n \gg 1$ ,  $l < n$ ,  $E_{\text{pol}}$  varie en gros comme  $n^{-3} l^{-5}$ . En combinant les équations (I.25) et (I.27), on obtient la formule de défaut quantique de grand  $l$ :

$$\delta_l(j) = \delta_{\text{pol}} + \delta_{\text{rel}}(j) = \frac{\alpha'_d}{2} \frac{3 - l(l+1)/n^2}{2(l - \frac{1}{2}) l (l + \frac{1}{2}) (l+1) (l + \frac{3}{2})} + \frac{1}{2} \alpha^2 \left[ \frac{1}{j + \frac{1}{2}} - \frac{3}{4n} \right] \quad (\text{I.28})$$

pour D  
 l'ordre  $10^{-6}$   
 multiplié par  $10^4$

$\frac{3\alpha^2}{2n}$

DS/1

Nous pouvons déduire la valeur de  $\alpha'_d$  en analysant les fréquences de transitions mesurées entre états de Rydberg de  $l$  bas mais supérieur à  $l_{\text{coeur}}$ .

#### Application au lithium :

Nous avons  $l_{\text{coeur}}=0$  dans le lithium. Les défauts quantiques de  $\text{Li}^7$  sont déduits de la mesure de la fréquence des transitions entre états de Rydberg. Pour  $l < 5$ , le terme relativiste est négligeable devant  $E_{\text{pol}}$ . En comparant la formule (I.28) avec les défauts quantiques mesurés, on obtient le tableau II.

	$\delta_l$	$\alpha'_d$
P $l = 1$	0,047157(8)	0,23578
D $l = 2$	0,0019383(80)	0,19(1)
F $l = 3$	0,0003044(100)	0,19(2)
G $l = 4$	$(8,35 \pm 1) 10^{-5}$	0,19(2)

0,00193508

Tableau II : Défaut quantique de  $\text{Li}^7$  et les valeurs de  $\alpha'_d$ .

On en déduit l'expression du défaut quantique des états de grand  $l$  du  $\text{Li}^7$ :

$$\delta_l(j) = \frac{0,19(2)}{2} \cdot \frac{3 - l(l+1) / n^2}{2(l - \frac{1}{2})(l + \frac{1}{2})(l+1)(l + \frac{3}{2})} + \frac{1}{2} \alpha'^2 \left[ \frac{1}{j + \frac{1}{2}} - \frac{3}{4n} \right]$$

(I.29)

Pour  $n = 25$ ,  $l = 24$  (l'état circulaire de  $n = 25$ ), on a :

$$\delta_l = 1,1 \cdot 10^{-8} + \begin{cases} 26,6 \cdot 10^{-8} & \text{pour } i = l + \frac{1}{2} \\ 31,1 \cdot 10^{-8} & \text{pour } j = l - \frac{1}{2} \end{cases}$$

$$\downarrow \qquad \qquad \downarrow$$

$$\delta_l^{\text{pol}} \qquad + \qquad \delta_l^{\text{rel}}(j)$$

$\delta_\ell^{\text{rel}}$  domine pour un état circulaire. On obtient respectivement les déplacements d'énergie suivants ( $n=25$ ):

$$\begin{aligned} E_{\text{pol}} &= 4,6 \text{ kHz} \\ E_{\text{rel}} &= 131 \text{ kHz} \\ \Delta E_{\text{rel}} &= E_{\text{rel}}(\ell+1/2) - E_{\text{rel}}(\ell-1/2) = 1/2 (\alpha^2/\ell(\ell+1)) = 18,7 \text{ kHz} \end{aligned} \quad (\text{I.30})$$

Pour les autres alcalins, la polarisabilité est bien plus grande que dans le lithium. Par exemple pour le sodium, on a  $\alpha'_D = 1,0015(15)$ ,  $\alpha'_Q = 0,48(15)$  [7]. Les défauts quantiques du sodium de grand  $\ell$  s'écrivent de la manière suivante:

$$\delta_\ell^{(j)} = \frac{1,0015(15)}{2} \frac{3 - \ell(\ell+1)/n^2}{2(\ell - \frac{1}{2})(\ell + \frac{1}{2})(\ell+1)(\ell + \frac{1}{3})} + \frac{1}{2} \alpha^2 \left[ \frac{1}{j + \frac{1}{2}} - \frac{3}{4n} \right] \quad (\text{I.31})$$

Pour l'état circulaire  $n = 25$ ,  $\ell = 24$ , on a respectivement:

$$\begin{aligned} \delta_\ell^{\text{pol}} &= 5,8 \cdot 10^{-8} \\ \delta_\ell^{\text{rel}} &= 31,8 \cdot 10^{-8} \end{aligned}$$

On a également

$$E_{\text{pol}} = 24,4 \text{ kHz} \quad (\text{I.32})$$

qui devient du même ordre que l'intervalle de structure fine  $\Delta E_{\text{rel}}=18,7\text{kHz}$ .

## I.2. PROPRIETES RADIATIVES

Nous avons présenté dans le chapitre précédent les propriétés générales d'un atome de Rydberg isolé dans un état circulaire. Nous allons maintenant décrire différentes propriétés radiatives d'un état circulaire en considérant qu'il est un système hydrogénoïde (en négligeant l'effet résiduel du coeur). Les études sur ces propriétés radiatives sont non seulement importantes pour les expériences de spectroscopie de très haute résolution, mais elles sont aussi intéressantes pour les autres types d'expériences comme la photoionisation d'un état circulaire, etc...

Nous commencerons dans I.2.1 par déterminer les éléments de matrice du dipôle électriques, élément principal du calcul pour les propriétés radiatives. Dans I.2.2, nous expliquerons pourquoi la durée de

vie d'un état circulaire est spécialement longue. Nous étudierons ensuite, dans I.2.3 et I.2.4 la transition dipolaire à 1 photon et à 2 photons et dans I.2.5, le transfert thermique qui couple le niveau circulaire aux autres états de Rydberg. Nous calculerons dans I.2.6 la probabilité de photo-ioniser un état circulaire. A la fin (I.2.7), nous calculerons le déplacement radiatif des niveaux circulaires.

### I.2.1. Eléments de matrice du dipôle électrique

Toute l'étude ultérieure est conditionnée par la connaissance des éléments de matrice  $\langle n \ell m | \vec{R} | n' \ell' m' \rangle$ , c'est-à-dire, puisque la dépendance en fonction de  $m$ ,  $m'$  et de la direction de  $\vec{R}$  est entièrement déterminée par des considérations géométriques d'algèbre angulaire, en fin de compte par la quantité

$$\langle n \ell m | \vec{R} | n' \ell' m' \rangle = R_{n\ell}^{n'\ell'} \times \text{coefficients de Clebsch-Gordan}$$

avec

$$R_{n\ell}^{n'\ell'} = \int_0^\infty r^2 dr R_{n\ell}(r) r R_{n'\ell'}(r)$$

$R_{n\ell}$  est la fonction d'onde radiale définie dans la formule (I.13).

Nous rappelons que nous avons un système hydrogénoïde. Le défaut quantique résiduel dans un état circulaire joue un rôle négligeable. Nous avons alors:

$$R_{n\ell}^{n'\ell'} \approx \int_0^\infty r^3 R_{n\ell}^{(\text{Coulomb})}(r) \cdot R_{n'\ell'}^{(\text{Coulomb})}(r) dr$$

L'élément de matrice du dipôle est, dans ce cas, entièrement calculable à l'aide de fonctions spéciales [9]. Il est donné par l'expression suivante (formule de Gordon):

- pour  $n \neq n'$  :

$$R_{n\ell}^{n'\ell-1} = \frac{(-1)^{n'-\ell} a_0}{4(2\ell-1)!} \sqrt{\frac{(n+\ell)! (n'+\ell-1)!}{(n-\ell-1)! (n'-\ell)!}} (4nn')^{\ell+1} \frac{(n-n')^{n+n'-2\ell-2}}{(n+n')^{n+n'}} \times$$

$$\times \left[ F(-n+\ell+1, -n'+\ell, 2\ell; Z) - \left[ \frac{n-n'}{n+n'} \right]^2 F(-n+\ell-1, -n'+\ell, 2\ell; Z) \right]$$

(I.33)

avec  $Z = -4nn'/(n-n')^2$ : la fonction hypergéométrique :

$$F(\alpha, \beta, \gamma; Z) = \sum_{i=0}^{\infty} \frac{(\alpha)_i (\beta)_i}{(\gamma)_i} \frac{Z^i}{i!} = 1 + \frac{\alpha\beta}{\gamma} \frac{z}{1!} + \frac{\alpha(\alpha+1)\beta(\beta+1)}{\gamma(\gamma+1)} \frac{z^2}{2!} + \dots \quad (\text{I.34})$$

est un polynôme puisque  $\alpha$  et  $\beta$  sont des entiers négatifs et que  $(-n)_i$  s'annule pour toutes les valeurs de  $i$  supérieures ou égales à  $n$ .

- pour  $n = n'$ , l'expression est très simple :

$$R_{n, \ell-1}^{n, \ell} = \frac{3}{2} n^2 \sqrt{n^2 - \ell^2} a_0 \quad (\text{I.35})$$

Supposons qu'un des deux états ( $|n\ell\rangle$  par exemple) est un état circulaire et calculons tous les couplages possibles. Il faut distinguer 2 domaines:

- (1)  $n' < n$ , les états couplés à l'état circulaire dont les énergies sont inférieures à l'énergie du circulaire ("transitions descendantes")
- (2)  $n' > n$ , les états couplés à l'état circulaire dont les énergies sont supérieures à l'énergie du circulaire ("transitions montantes").

(1)  $n' < n$

Si l'état  $|n\ell m\rangle$  est un état circulaire (i. e.  $\ell = |m| = n-1$ ), il n'y a qu'un seul état lié qui est  $|n-1, n-2\rangle$  grâce à la règle de sélection  $\Delta\ell = \pm 1$ . On a donc  $\ell' = \ell-1 = n-2$  ( $\Delta\ell = -1$ ). L'élément de matrice s'écrit :

$$R_{n, n-1}^{n-1, n-2} = n(n-1)a_0 \times \left[1 - \left(\frac{1}{2n-1}\right)^2\right]^n \left[1 - \frac{1}{2n-1}\right]^{1/2} \quad (\text{I.36})$$

Pour les états de Rydberg,  $n \gg 1$ ,

$$R_{n, n-1}^{n-1, n-2} \approx n^2 a_0 \quad (\text{I.37})$$

Cette valeur est exactement le rayon d'une orbite circulaire. Ceci n'est pas étonnant parce que les fonctions d'onde des états  $|n, n-1\rangle$  et  $|n-1, n-2\rangle$  sont très concentrées sur des cercles (cf. fig. I-2) dont les rayons sont respectivement  $n(n-1)a_0$ ,  $(n-1)(n-2)a_0$ . Comme ce sont aussi des états de Rydberg ( $n \gg 1$ ), ces deux rayons sont presque égaux.

(2)  $n' > n$

Dans ce cas, les états couplés au circulaire sont nombreux. Nous pourrions les séparer en deux parties  $\Delta l = -1$ ,  $\Delta l = +1$ .

$\Delta l = -1$

Avec  $\Delta l = -1$ ,  $l = n-1$ ,  $n' > n$ , à partir de la formule (I.33), l'élément de matrice se met sous la forme :

$$R_{n, n-1}^{n', n-2} = \frac{(-1)^{n'-n+1} a_0}{4(2n-3)!} \sqrt{\frac{(2n-1)! (n'+n-2)!}{(n'-n+1)!}} (4nn')^{n+1} \frac{(n-n')^{n'-n-1}}{(n+n')^{n'+n+1}} \cdot \left[ \frac{n'}{(n-1)(2n-1)} \right] \quad (\text{I.38})$$

Dans ce cas-là, il y a couplage entre un état circulaire et un état non circulaire mais de grand  $l$ . Nous allons calculer les expressions exactes pour  $n'=n+1$ ,  $n'=n+2$ , puis une expression approchée pour  $n' \gg n$ .

$$R_{n, n-1}^{n+1, n-2} = \frac{n}{2\sqrt{2}} a_0 \quad (\text{I.39})$$

$$R_{n, n-1}^{n+2, n-2} = \frac{\sqrt{n}}{\sqrt{12}} a_0 \quad (\text{I.40})$$

Plus  $n'$  est grand, plus le couplage est faible. Dans la limite  $n' \gg n$ , on a :

$$R_{n, n-1}^{n', n-2} \simeq 4,08 \cdot 2^n \cdot n'^{-3/2} n^{5/4} a_0 \quad (\text{I.41})$$

$$\Delta l = +1$$

Pour  $n'=n+1$ , l'état couplé à l'état  $|n^l\rangle$  est encore un état circulaire  $|n+1, l=n\rangle$ . Il ne l'est plus lorsque  $n' > n+1$ . La formule (I.33) devient très simple, de la forme:

$$R_{n,n'}^{n',n'-1} = \frac{a_0}{4} \sqrt{\frac{(n+n')!}{(n-n'-1)! (2n'-1)!}} (4nn')^{n'+2} \frac{(n-n')^{n-n'-2}}{(n+n')^{n+n'+2}} \quad (I.42)$$

Donnons-en l'expression explicite pour  $n'=n+1$ ,  $n'=n+2$ , puis une expression approchée pour  $n \gg n'$ .

Si  $n=n'+1$  :

$$R_{n'+1,n'}^{n',n'-1} = n'^2 a_0 \quad (\text{à la limite } n \gg 1) \quad (I.43)$$

On retrouve le même résultat que  $R_n^{n-1, n-2}$ .

Si  $n = n'+2$  :

$$R_{n'+2,n'}^{n',n'-1} = \frac{1}{\sqrt{2}} n'^{3/2} a_0 \quad (I.44)$$

Si  $n \gg n'$  :

$$R_n^{n',n'-1} \approx 1,106.2^{n'} n'^{9/4} n^{-3/2} a_0 \quad (I.45)$$

La dépendance en nombre quantique principal le plus grand de  $n$  et  $n'$  est la même que  $\Delta l = -1$ .

### Conclusion

Un état circulaire  $|n\rangle$  se couple principalement avec ses deux états circulaires voisins  $|n \pm 1\rangle$ . Les autres couplages sont relativement beaucoup plus faibles (d'un facteur  $1/\sqrt{n}$ ). Ultérieurement, nous ne tiendrons donc compte en général que du couplage entre 2 états circulaires consécutifs.



### I.2.2. Durée de vie

Considérons maintenant l'interaction avec les modes vides du champ, c'est-à-dire l'émission spontanée des états circulaires. Appelons  $\gamma_{n\ell \rightarrow n'\ell'}$  la probabilité de desexcitation spontanée de l'état  $|n\ell\rangle$  vers l'état  $|n'\ell'\rangle$ : elle s'écrit [10] comme:

$$\gamma_{n\ell \rightarrow n'\ell'} = \frac{\alpha^4}{12} \frac{c}{a_0} \left[ \frac{E_{n\ell \rightarrow n'\ell'}}{Ry} \right]^3 \left[ \frac{R_{n\ell}^{n'\ell'}}{a_0} \right]^2 \cdot \frac{2n-2}{2n-1} \quad (I.46)$$

soit :

$$\gamma_{n\ell \rightarrow n'\ell'} = 1,34 \times 10^9 \cdot \left[ \frac{E_{n\ell}^{n'\ell'}}{Ry} \right]^3 \left[ \frac{R_{n\ell}^{n'\ell'}}{a_0} \right]^2 (s^{-1}) \quad (I.47)$$

La durée de vie totale  $\tau_{n\ell}$  d'un niveau donné s'obtient à partir de la somme des  $\gamma_{n\ell \rightarrow n'\ell'}$  sur tous les niveaux  $n'\ell'$  couplés à  $n\ell$  et d'énergie inférieure à celui-ci. Pour l'état circulaire, il n'y a qu'un seul candidat qui est  $|n-1, n-2\rangle$  (décrit dans le paragraphe précédent). Lorsque  $n$  est grand, l'élément de matrice correspondant est égal à  $n^2 a_0$  et l'écart énergétique est  $2Ry/n^3$ . D'après un calcul très simple, on a:

$$\tau_{n, n-1} = 9,33 \cdot 10^{-11} n^5 (s) \quad (I.48)$$

$\tau_{n, n-1}$  varie comme  $n^5$ . Il en résulte que des atomes de Rydberg circulaires de grand  $n$  ont une durée de vie très longue (par exemple 0,3ms pour  $n=20$ , 2,3ms pour  $n=30$ , 9,6ms pour  $n=40$ ) plus grande par un facteur  $n^2$  que les atomes de Rydberg de faible moment cinétique (par exemple l'état  $n=20, \ell=0$  du sodium a une durée de vie de  $11\mu s$  [1]). Remarquons que  $\tau_{n, n-1}$  donné par (I.48) coïncide exactement avec la valeur classique (voir équ. (I.11)), ce qui signifie qu'un atome de Rydberg circulaire est très proche d'un système classique.

### I.2.3. Transitions dipolaires à un photon

Nous calculons, dans ce paragraphe, la probabilité de transition dipolaire à un photon partant d'un état circulaire  $|n, n-1, n-1\rangle$  vers un autre état circulaire ou non circulaire, induit par une onde électromagnétique extérieure dont les fréquences de transition sont, dans le domaine microonde (447 GHz pour la transition  $|25, 24\rangle \rightarrow |24, 23\rangle$ ).

A cause de l'anisotropie de la fonction d'onde des états circulaires (décrit dans I.1), la polarisation des photons microonde joue un rôle très important. Nous calculons les probabilités de transition pour différentes polarisations  $\pi$ ,  $\sigma^+$ ,  $\sigma^-$ .

Considérons une microonde dont la fréquence est résonnante avec la transition considérée. Les durées de vie des états circulaires, calculées dans le paragraphe précédent, sont très longues, de l'ordre de 1 milliseconde, correspondant à une largeur homogène de l'ordre du kHz. Supposons que la source microonde a une largeur inférieure, ou du même ordre de grandeur. La variation de la population des niveaux est régie par la formule de Rabi [4]. Le temps d'observation est défini, dans ce cas-là, par le temps d'interaction atome-microonde, de l'ordre de la microseconde pendant laquelle l'émission spontanée des atomes circulaires est négligeable.

Rappelons la formule de Rabi :

$$P_f(t) = \frac{|V_{if}|^2}{\hbar^2 \omega_1^2} \sin^2 \frac{\omega_1 t}{2}$$

$$P_f + P_i = 1$$

$$\text{avec } \omega_1^2 = (\omega - \omega_{fi})^2 + \frac{|V_{if}|^2}{\hbar^2}$$

où  $P_i$  et  $P_f$  sont les populations respectives du niveau initial et final.

Lorsque la fréquence de la microonde est résonnante  $\omega = \omega_{fi}$ , la population du niveau f s'écrit simplement:

$$P_f(t) = \sin^2 \frac{|V_{if}| t}{2\hbar} \quad (\text{I.49})$$

(1) Cas de la polarisation circulaire gauche  $\sigma^-$  ( $\Delta m = -1$ )

Avec cette polarisation, la microonde peut induire la transition de  $|n, n-1, n-1\rangle$  à  $|n-1, n-2, n-2\rangle$ , c'est-à-dire une transition entre deux états circulaires consécutifs. On obtient pour le niveau  $n=n-1$ :

$$P_{n-1}(t) = \sin^2 \left[ \frac{q\mathcal{E} | \langle n, n-1, n-1 | x-iy | n-1, n-2, n-2 \rangle | t}{2\hbar} \right] \quad (I.50)$$

où  $\langle n, n-1, n-1 | x-iy | n-1, n-2, n-2 \rangle$

$$= \sqrt{\frac{2n-2}{2n-1}} R_n^{n-1, n-2}$$

$$\approx n^2 a_0$$

où  $\mathcal{E}$  est l'amplitude du champ électrique microonde.

Nous avons finalement :

$$P_{n-1}(t) = \sin^2 \frac{q\mathcal{E} n^2 a_0 t}{2\hbar}$$

$$P_{n-1}(t) = \sin^2 \sqrt{\frac{2\pi\alpha\phi}{\hbar}} \cdot n^2 a_0 t \quad (I.51)$$

Elle correspond à une oscillation périodique entre 0 et 1 dont la périodicité dépend de  $n$  et de  $\phi$  le flux énergétique incident. Nous donnons l'ordre de grandeur de  $\phi$  pour que  $P_{n-1}$  soit égale à l'unité pour  $t=1\mu s$ .

$$\phi = \frac{1.91}{n^4} \text{ w/m}^2 \quad (I.52)$$

Pour  $n = 25$ ,  $\phi$  est égal à  $0.5 \text{ nw/cm}^2$ .

L'onde microonde de  $\sigma^-$  peut aussi transférer des atomes de l'état  $| n, n-1, n-1 \rangle$  vers les états non circulaires  $| n', l, n-2 \rangle$  ( $n' > n$ ). Les probabilités de transition sont parfaitement calculables en utilisant les formules des éléments de matrice du dipôle électrique dans 1.2.2.

Prenons un exemple : la transition  $| n, n-1, n-1 \rangle \rightarrow | n+1, n-2, n-2 \rangle$  dans le cas où la formule de Rabi est encore valable :

$$\phi = \frac{1,91}{n^2/8} = \frac{15,3}{n^2} w/m^2 \quad (I.53)$$

Pour  $n = 25$ ,  $\phi = 2,4 \text{ mw/cm}^2$ . On vérifie que, comme le couplage entre ces deux niveaux est faible, le flux incident nécessaire est beaucoup plus grand que pour la transition entre états circulaires.

(2) *Cas de la polarisation circulaire droite  $\sigma^+$*

L'onde microonde de polarisation  $\sigma^+$  peut induire la transition de l'état circulaire  $|n, n-1, n-1\rangle$  vers un autre état circulaire  $|n+1, n, n\rangle$ . On obtient la population du niveau final  $|n+1, n, n\rangle$  en remplaçant, dans la formule,  $\langle n, n-1, n-1 | x-iy | n-1, n-2, n-2 \rangle$  par  $\langle n, n-1, n-1 | x+iy | n+1, n, n \rangle$  qui vaut en fait la même valeur. On obtient donc la même expression que pour l'onde  $\sigma^-$

$$P_{n+1, \Delta m=+1} = \sin^2 \sqrt{\frac{2\pi\alpha\phi}{\hbar}} n^2 a_0 t \quad (I.54)$$

On peut également avoir d'autres transitions vers des niveaux non circulaires qui sont aussi calculables. Notons qu'il n'existe pas de transition vers des niveaux d'énergie plus bas avec la polarisation  $\sigma^+$ .

(3) *Cas de la polarisation linéaire  $\pi$*

Cette fois-ci, la transition entre 2 états circulaires n'est plus possible, parce que la règle de sélection  $\Delta l = \pm 1$ ,  $\Delta m = 0$  permet seulement de transférer des atomes de l'état  $|n, n-1, n-1\rangle$  vers des états  $|n', n, n-1\rangle$  ( $n' > n$ ) qui ne sont pas circulaires. Il est quand même intéressant de calculer la probabilité de ces transitions.

Calculons par exemple la transition de  $|n, n-1, n-1\rangle$  vers  $|n+1, n, n-1\rangle$  puis comparons avec celle de  $|n, n-1, n-1\rangle \rightarrow |n+1, n, n\rangle$  (transition entre deux circulaires  $\sigma^+$ ):

grand que pour la transition entre états circulaires.

En prenant  $z = r \cos \theta$ , on a :

$$\langle n, n-1, n-1 | z | n+1, n, n-1 \rangle = \frac{1}{\sqrt{2n+1}} R_{n, n-1}^{n+1, n} \quad (I.55)$$

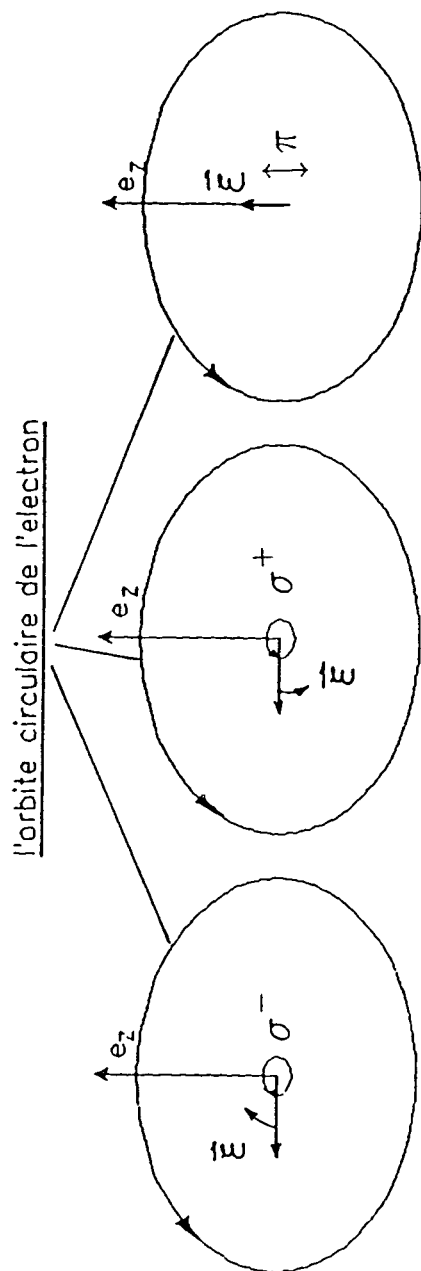


Fig. I-4 Atome circulaire interagissant avec la micro-onde de polarisations:  $\sigma^-$ ,  $\sigma^+$ ,  $\pi$

D'où le flux incident nécessaire pour effectuer la transition en une microseconde:

$$\Phi_{\left[ \begin{smallmatrix} \pi \\ n \rightarrow n+1 \\ \Delta m = 0 \end{smallmatrix} \right]} = 2n \Phi_{\left[ \begin{smallmatrix} \sigma^+ \\ n \rightarrow n+1 \\ \Delta m = +1 \end{smallmatrix} \right]} \quad (\text{I.56})$$

Ce flux est  $2n$  fois plus grand que celui qui était nécessaire en polarisation  $\sigma^+$ .

Dans le cas  $\sigma^+$  ou  $\sigma^-$ , le champ électrique est dans le plan de l'orbite circulaire. Si l'on considère l'image classique, le produit scalaire  $\vec{\Sigma} \cdot \vec{d}$ , où  $\vec{d} = q \cdot \vec{r}$  peut être de l'ordre de  $n^2 a_0 \vec{\Sigma}$ . Dans le cas  $\pi$ , le champ électrique est orthogonal au plan de l'orbite. Dans l'image classique,  $\vec{\Sigma} \cdot \vec{d}$  est toujours nul (voir fig. I-4).

#### I.2.4. Transitions dipolaires à 2 photons

La transition dipolaire à 2 photons a un grand intérêt dans des expériences de spectroscopie de très haute résolution à cause de la probabilité de s'affranchir de l'effet Doppler. C'est surtout la transition entre deux états circulaires de  $\Delta n = 2$  qui nous intéresse.

Pour calculer la probabilité de transition, il suffit de remplacer dans la formule de Rabi  $V_{fi}$  par  $\hat{V}_{fi}$  qui s'écrit sous la forme [11]:

$$\hat{V}_{fi} = \sum_r \frac{\langle f | v | r \rangle \langle r | v | i \rangle}{E_r - E_i - \hbar\omega} \quad (\text{I.57})$$

Définissons  $|f\rangle = |n, n-1, n-1\rangle$ ,  $|i\rangle = |n+2, n+1, n+1\rangle$ . Parmi tous les états intermédiaires  $|r\rangle$ , il n'y a que  $|n+1, n, n\rangle$  qui donne lieu à un dénominateur d'énergie de très faible valeur. Seule la composante  $\sigma^-$  du champ microonde peut induire cette transition. On peut réécrire  $\hat{V}_{fi}$  comme:

$$\hat{V}_{fi} = \frac{q^2 \xi^2 n^2 a_0 (n-1)^2 a_0}{E_{n+1} - E_{n+2} - \frac{1}{2} (E_{n+2} - E_n)}$$

$$\approx \frac{\frac{q^2 \epsilon^2 n^4 a_0^2}{2Ry}}{n^4} = \frac{4\pi^2 \alpha \hbar a_0^2}{Ry} \phi n^8 \quad (I.58)$$

La probabilité de transition à 2 photons est donc :

$$P_{n+2}(t) = \sin^2 \left[ \frac{2\pi^2 \alpha a_0^2}{Ry} \phi n^8 t \right] \quad (I.59)$$

On en déduit le flux énergétique incident nécessaire pour que  $P_{n+2}$  soit maximum (=1) (avec  $t = 1\mu s$ ) :

$$\phi = \frac{Ry}{4\pi\alpha a_0^2 (1\mu s)} \frac{1}{n^8}$$

$$= \frac{8,44 \cdot 10^9}{n^8} \text{ w/m}^2 \quad (I.60)$$

Pour  $n = 25$ ,  $\phi = 5,5 \text{ mw/cm}^2$  qui est  $10^4$  plus fort que le flux saturant la transition à 1 photon :

$$\frac{\phi_{2 \text{ photons}}}{\phi_{1 \text{ photon}}} = \frac{8,44 \cdot 10^9 / n^8}{1,91 / n^4} = \frac{4,2 \cdot 10^9}{n^4} \quad (I.61)$$

Pour  $n = 25$ , ce rapport vaut  $1,1 \cdot 10^4$ . Notons que la puissance saturant la transition à 2 photons reste très raisonnable en valeur absolue.

### I.2.5. Transfert de population induit par le rayonnement thermique

Les atomes sont également couplés au rayonnement thermique de faible puissance et dont le maximum se situe dans les fréquences submillimétriques ou infrarouges aux températures usuelles. Le flux incident

du rayonnement thermique par unité de fréquence est donné par la formule de Planck:

$$\frac{d\phi}{d\nu} = \frac{8\pi h}{c^2} \frac{\nu^3}{e^{h\nu/kT} - 1} \quad (\text{I.62})$$

Le rayonnement, ayant un spectre continu, peut transférer les atomes d'un état circulaire, créé initialement, à un autre état de Rydberg relié au premier par un couplage dipolaire électrique. L'émission spontanée est, de ce fait, perturbée de manière appréciable en présence des photons thermiques à la température de l'enceinte.

Le taux de transfert par unité de temps est donné par [4] :

$$W_{n \rightarrow n'} = \frac{4\pi^2 \alpha}{h} | \langle n | R | n' \rangle |^2 \frac{d\phi}{d\nu} \quad (\text{I.63})$$

En tenant compte que le couplage dipolaire électrique est maximum entre deux états circulaires consécutifs, la transition induite par un tel couplage n'absorbe qu'un seul mode du rayonnement thermique. La formule (I.63) est en fait le produit du taux de desexcitation spontanée (formule I.47) avec un facteur  $x$  (nombre moyen de photons thermiques), c'est-à-dire:

$$W_{n \rightarrow n'} = 1,07 \cdot 10^{10} n^{-5} \cdot x \text{ (s}^{-1}\text{)} \quad (\text{I.64})$$

$$\text{avec } x = \frac{1}{e^{h\nu/kT} - 1} = \begin{cases} kT/h\nu & \text{à haute température} \\ e^{-kT/h\nu} & \text{à basse température} \end{cases} \quad (\text{I.65})$$

On trouve le facteur  $x$  bien connu de Bose-Einstein, car pour une orbite circulaire, émission spontanée et transfert thermique ne peuvent avoir lieu que sur la même transition.

Donnons quelques ordres de grandeur sur la transition entre les niveaux  $|25, 24, 24\rangle$  et  $|24, 23, 23\rangle$ ,  $\nu = 447$  GHz. A la température ambiante,  $300^\circ\text{K}$ ,  $x = 13,5$ ,  $w_{25 \rightarrow 24} = 1,77 \times 10^4 \text{ s}^{-1}$ . A  $T = 77^\circ\text{K}$  (température de l'azote liquide),  $x=3$ , le taux de transfert est diminué, vaut  $3,42 \times 10^3 \text{ s}^{-1}$ . A  $T = 4^\circ\text{K}$  (température de l'hélium liquide),  $x = 5 \times 10^{-3}$ , le taux de transfert ne vaut que  $5,2 \text{ s}^{-1}$ .



A 300°K, toute la population du niveau  $|25, 24, 24\rangle$  est transférée au  $|24, 23, 23\rangle$  en  $60\mu\text{s}$  alors que la durée de vie spontanée est de  $900\mu\text{s}$ . L'effet est si important qu'il est nécessaire de refroidir l'environnement pour diminuer ce transfert considérable.

On peut considérer deux cas limites :

$h\nu \ll kT$  ( $T \gg 21^\circ\text{K}$  pour  $n = 25$ )

$W_{n \rightarrow n \pm 1}$  se réécrit comme :

$$W_{n \rightarrow n \pm 1} = \frac{32\pi^3 \alpha a_0^2 Ry^2 K}{h^3 c^2} \frac{1}{n^2} \cdot T$$

$$= 3,38 \cdot 10^4 \frac{1}{n^2} \cdot T \quad (\text{I.65})$$

$h\nu \gg kT$  ( $T \ll 21^\circ\text{K}$  pour  $n = 25$ )

$$W_{n \rightarrow n \pm 1} = \frac{32\pi^3 \alpha a_0^2}{c^2} \left[ \frac{Ry}{h} \right]^3 \frac{1}{n^5} \cdot e^{-kT/h\nu}$$

$$= 3,35 \cdot 10^8 \cdot \frac{1}{n^5} e^{-kT/h\nu} \quad (\text{I.66})$$

### I.2.6. Photoionisation d'un atome circulaire

Un atome de Rydberg s'ionise en présence d'un champ électrostatique [38], mais aussi en absorbant un photon incident. Nous allons présenter dans ce paragraphe les caractéristiques spécifiques de la photoionisation d'un atome circulaire par un rayonnement incident. Nous pouvons tester sur ce problème physique les propriétés d'anisotropie des états circulaires et, de manière générale, les particularités de ces états par rapport aux états de Rydberg de petit  $\ell$ , notamment le fait que la vitesse de l'électron sur orbite circulaire est relativement bien définie (cf. fig. I-3).

L'état initial du système est l'état circulaire  $|n, \ell=n-1, m=n-1\rangle$  orienté perpendiculairement à l'axe Oz. La règle d'or de Fermi donne l'expression suivante pour la probabilité différentielle de photoionisation [12]:

$$\frac{dw}{d\Omega} = 4\pi^2 \alpha \Phi | \langle n, n-1, n-1 | \vec{R} \cdot \vec{\epsilon} | \vec{k} \rangle |^2 \quad (\text{I.67})$$

avec  $\Phi$  : flux énergétique incident,  $\vec{\epsilon}$ , polarisation du champ électrique incident et  $|\vec{k}\rangle$ , fonction d'onde du continuum de vecteur d'onde  $\vec{k}$  normalisée en énergie  $\langle \vec{k} | \vec{k}' \rangle = \delta(E_k - E_{k'})$  avec  $E_k = \hbar^2 k^2 / 2m$ ,  $k = |\vec{k}|$ .

Dans la suite, nous ferons l'approximation dipolaire, i.e.  $e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}} = 1$  où  $\vec{k}$  est le vecteur d'onde du photon. Cette approximation est valable pour des énergies de photon incident telles que:

$$h\nu \ll \frac{2}{\alpha} \frac{Ry}{n^2} = \frac{3 \times 10^7 \text{ cm}^{-1}}{n^2}$$

Prenons l'exemple de  $n=10$ , la longueur d'onde de l'onde incidente doit être très supérieure à  $300\text{\AA}$ . Pour  $n=25$ , on doit avoir :  $\lambda \gg 1200\text{\AA}$ . Cette condition se satisfait facilement.

Considérons la photoionisation d'un atome circulaire par un photon de polarisation circulaire droite ( $\sigma^+$ ) (par rapport à l'axe de quantification de l'atome circulaire). En ayant absorbé un photon  $\sigma^+$ , le seul état accessible pour l'électron est un état  $|E, l, m\rangle$  avec  $l=n$ ,  $m=n$  d'après la règle de sélection dipolaire  $\Delta l=1$ ,  $\Delta m=1$  ( $|\vec{k}\rangle = |E, l=n, m=n\rangle$ ).

#### \* Dépendance angulaire de l'électron éjecté

La fonction d'onde du continuum  $|\vec{k}\rangle$  en représentation  $\vec{r}$  s'écrit:

$$\langle \vec{r} | \vec{k} \rangle = Y_n^n(\theta, \varphi) R_{En}(r) \quad (\text{I.68})$$

avec  $Y_n^n$  proportionnel à  $(\sin \theta)^n e^{in\varphi}$ .

Comme la direction incidente et la polarisation de photons sont bien définies le long de l'axe de quantification de l'atome circulaire, la dépendance angulaire des photoélectrons est donnée uniquement par la dépendance angulaire de l'état final, donc par  $(\sin \theta)^{2n}$ .

On obtient une probabilité très piquée autour de  $\theta=\pi/2$  avec une largeur à mi-hauteur:

$$\Delta\theta = 2\sqrt{1 - \left(\frac{1}{2}\right)^{1/n}} \quad (I.69)$$

$\Delta\theta$  vaut  $32^\circ$  pour  $n = 10$  et  $22^\circ$  pour  $n = 20$ .

Ceci est une manifestation de l'anisotropie : l'électron de photoionisation est émis pratiquement dans le plan de la trajectoire classique.

#### \* Calcul de la probabilité totale

Calculons la section efficace totale en intégrant  $dw/d\Omega$  (donné dans l'équation (I.67)). La partie angulaire de l'intégrale est égale à :

$$\int Y_{n-1}^{n-1}(\theta, \varphi) \sin \theta Y_n^n(\theta, \varphi) d\Omega = \sqrt{\frac{2n}{2n+1}} \quad (I.70)$$

qui est très proche de l'unité lorsque  $n \gg 1$ . On peut donc écrire la probabilité totale de photoionisation d'un atome circulaire comme :

$$W = 4\pi^2 \alpha \phi \left| \int R_{E\ell}(r) r^3 C_n(r) dr \right|^2 \quad (I.71)$$

$$\text{avec [12]} \quad C_n(r) = a_0^{-3/2} \frac{2^n}{n^{n+1} \sqrt{(2n-1)!}} (r/a_0)^{n-1} e^{-r/na_0} \quad (I.72)$$

$$R_{En}(r) = \frac{2}{\sqrt{1-2^{-2\pi/\kappa}}} \left[ \prod_{s=1}^n \sqrt{s^2 + \left[\frac{1}{\kappa}\right]^2} \right] \frac{1}{(2n+1)!} \left[ 2\kappa r/a_0 \right]^n e^{-i\kappa \frac{r}{a_0}} F \left( \frac{1}{ea_0} \right) \quad (I.73)$$

avec  $F = F\left(n + 1 + \frac{i}{\kappa}, 2n+2, 2i\kappa \frac{r}{a_0}\right)$ , vecteur d'onde de l'électron en unités atomiques.

La forme simple de la fonction d'onde de l'état circulaire plus quelques propriétés des fonctions hypergéométriques [13] permettent d'obtenir une forme analytique de  $w$  (exacte à l'approximation dipolaire) :

$$W = w_0(n) S_n(k)$$

avec

$$w_0(n) = \frac{128\pi^2 \alpha a_0^2}{Ry} \Phi \frac{2^{4n} n^{2n+6}}{(2n+1)!} e^{-4n}$$

$$s_n(k) = \frac{e^{4n-4/k} \operatorname{Arctg} nk}{1 - e^{-2\pi/k}} \frac{\prod_{s=1}^n (1+k^2 s^2)}{(1+k^2 n^2)^{2n+4}} \quad (I.74)$$

$w_0(n)$  représente la probabilité de photoionisation au seuil d'ionisation.  $s_n(k)$  représente la variation de  $w$  en fonction de l'énergie de l'électron éjecté. Nous discuterons ces deux termes.

- Photoionisation au seuil  $w_0(n)$  (pour  $\Phi = 1 \text{ mW/mm}^2$ ).

Avec  $n \gg 1$ , on peut réécrire  $w_0(n)$  comme :

$$w_0(n) \approx 1.68 \left[ \frac{2}{e} \right]^{2n} n^{9/2} \quad (I.75)$$

Nous donnons sur la figure I-5 la variation de  $w_0$  en fonction de  $n$  et en la comparant avec la photoionisation au seuil des niveaux de Rydberg de faible moment angulaire qui est donnée par [1].

$$w_0(n) = 0,147 \cos^2 \pi (\delta_\ell - \delta_{\ell'} + \frac{1}{6}) \frac{\max(\ell, \ell')}{2\ell+1} (n - \delta_\ell)^{11/3} \quad (I.76)$$

pour  $\Phi = 1 \text{ mW/mm}^2$

Remarquons que  $w_0(n)$  a une allure très différente pour les états circulaires et les états de  $\ell$  bas: pour les états circulaires,  $w_0(n)$  est maximum pour  $n=7$ ; pour les états de  $\ell$  bas (P,D,F),  $w_0(n)$  croît monotonement avec  $n$ ; pour les états s,  $w_0(n)$  est très faible à cause de la faible valeur de l'argument du cosinus ( $\delta_\ell - \delta_{\ell'} + 1/6 = 0,52$ ) dans la formule (I.76).

- Comportement au-delà du seuil  $s_n(k)$

La fonction  $s_n(k)$  décroît de manière monotone lorsque  $k$  croît pour les petites valeurs de  $k$ , on peut faire un développement en  $k$ :

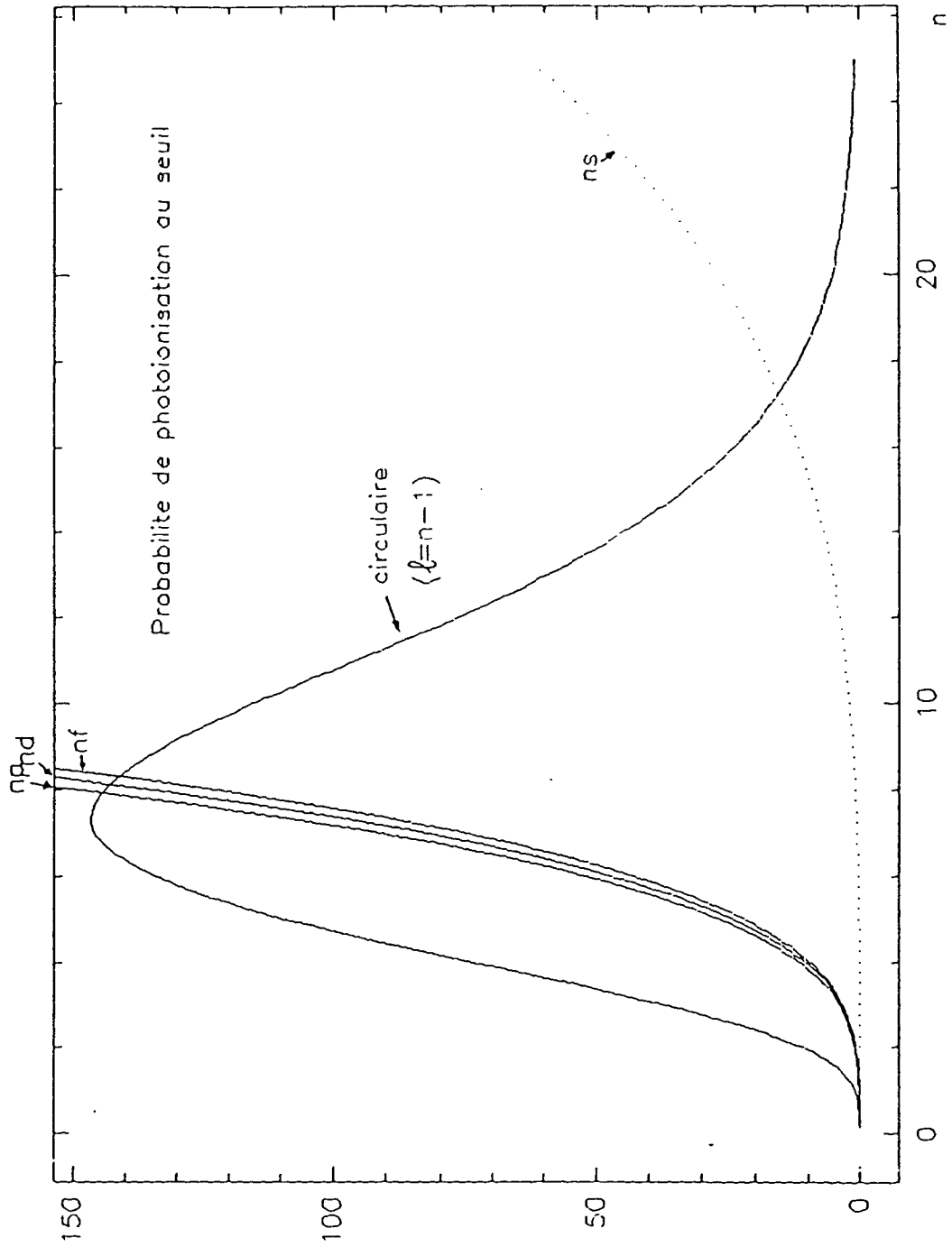


Fig I-5 Variation de probabilité de photoionisation au seuil  $W_0(n)$  en fonction de  $n$  pour les états de Rydberg circulaires et des états de Rydberg de faible moment angulaire (dans le lithium)

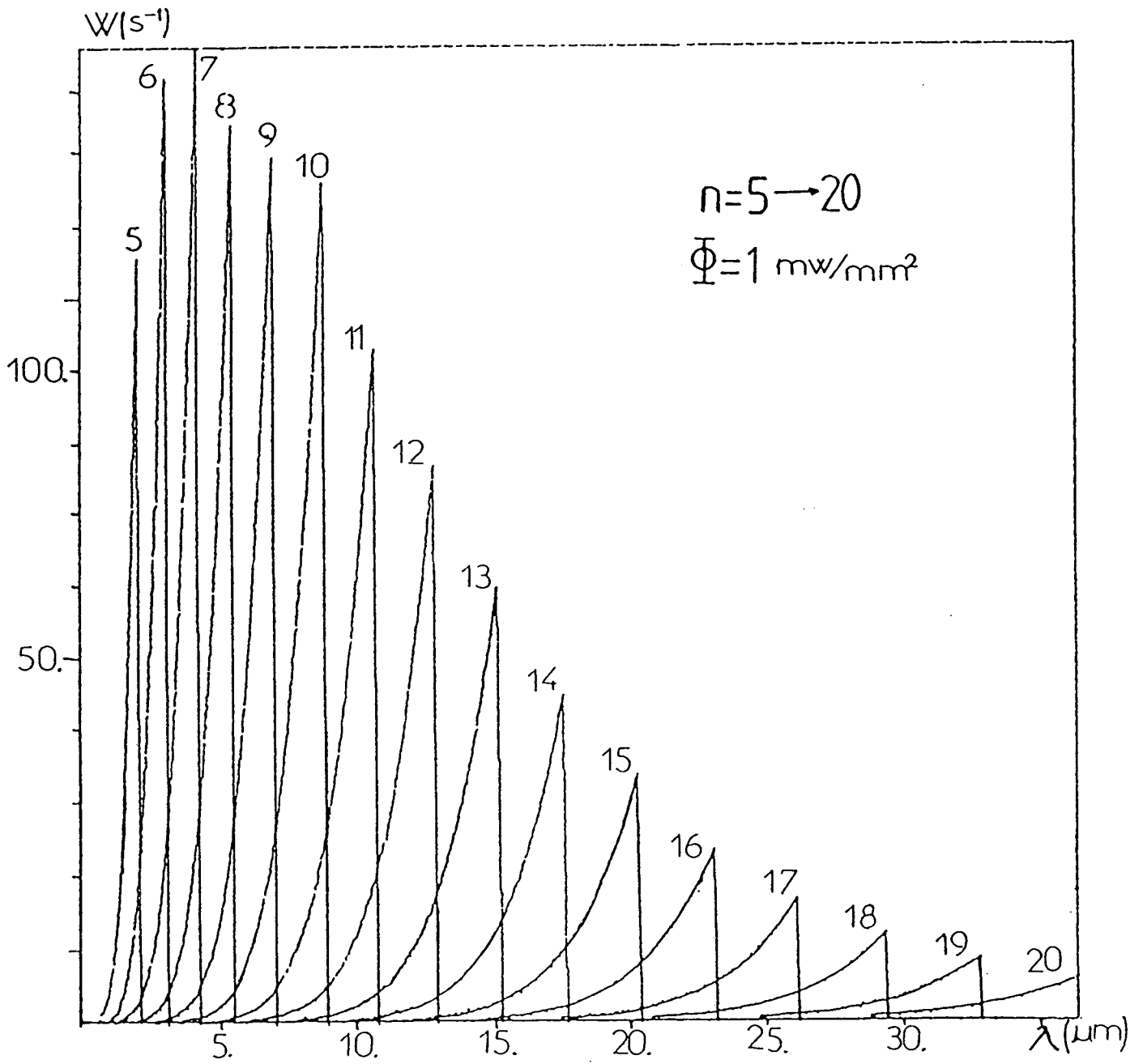


Fig I-6 Probabilité de photoionisation des atomes circulaires en fonction de la longueur d'onde du photon incident pour un flux de  $1\text{mw/mm}^2$

$$s_n(k) = \exp \left[ - \frac{2n+21}{6} n^2 k^2 \right] \quad (I.77)$$

On a une décroissance exponentielle en fonction de  $k^2$ , donc de l'énergie du photon émis:

$$s_n(k) = \frac{1}{e} \quad \text{pour } k^2 = \frac{3}{n^3 (1+21/n)} \quad \text{soit } E_{\text{électron}} = \frac{3Ry}{n^3 (1+21/n)}$$

La figure I-6 représente la probabilité totale de photoionisation des atomes circulaires ( $n$  varie de 5 à 20) en fonction de la longueur d'onde du photon incident pour un flux énergétique de  $1\text{mW/mm}^2$ .

On constate que la probabilité est maximum pour le seuil d'ionisation d'un atome circulaire de  $n = 7$ , puis décroît rapidement avec  $n$ . Plus  $n$  est grand, plus l'électron de Rydberg circulaire est libre (loin du noyau), plus l'atome est difficile à ioniser. Sur la figure I-6, pour une longueur d'onde donnée, on ne photoionise efficacement qu'un seul état de Rydberg circulaire donné (très différent par rapport aux états de  $\ell$  bas [15]).

En conclusion, les caractéristiques spécifiques de la photoionisation des états circulaires sont :

- (a) la distribution angulaire est très anisotrope
- (b) la variation en fréquence très piquée au seuil décroît très vite ensuite.

### I.2.7. Déplacement des niveaux par une onde quasi-résonnante

Le champ du rayonnement microonde provoque non seulement des transitions réelles entre les niveaux de Rydberg circulaires, mais aussi un déplacement des niveaux d'énergie par l'intermédiaire d'absorptions et de réémissions (ou l'inverse) virtuelles de photons de l'onde incidente [14].

Ce paragraphe est consacré à l'étude d'un tel déplacement. Cette étude est purement pratique: si l'on veut faire de la spectroscopie à haute résolution sur les fréquences de transition entre niveaux de Rydberg circulaires, il est important de connaître les déplacements énergétiques des niveaux, susceptibles de fausser la mesure finale. Cela est particulièrement

utile dans le cas des transitions à deux photons qui utilisent justement une quasi résonance sur un niveau relais.

Grâce à un développement de perturbation indépendant du temps au second ordre, le déplacement d'un niveau  $|i\rangle$  sous l'effet d'une onde d'amplitude classique  $\vec{E}$  à la fréquence  $\nu$  s'écrit (en supposant le désaccord de fréquence  $|\nu - \nu_{if}|$  grand devant les largeurs des niveaux  $i$  et  $f$  ( $\nu_{if} = (E_i - E_f)/h$ ):

$$\Delta E_i = q^2 \frac{\vec{E}^2}{4} \sum_f R_{if}^2 \left[ \frac{1}{E_i - E_f - h\nu} + \frac{1}{E_i - E_f + h\nu} \right] \quad (I.78)$$

$f$  étant tout autre niveau connecté à  $i$  par couplage dipolaire électrique.

En utilisant la formule du flux incident  $\Phi = 1/2 \epsilon_0 \vec{E}^2 C$  et  $\alpha = e^2/\hbar C$ , on peut réécrire  $\Delta E_i$  comme:

$$\Delta E_i = \alpha \hbar \Phi \sum_f R_{if}^2 \left[ \frac{1}{E_i - E_f - h\nu} + \frac{1}{E_i - E_f + h\nu} \right] \quad (I.79)$$

Nous allons calculer le déplacement des niveaux pour 2 cas particuliers : premièrement, une onde monochromatique est résonnante avec la transition entre deux niveaux circulaires consécutifs  $|n+1, n, n\rangle \rightarrow |n, n-1, n-1\rangle$ ; deuxièmement, une onde monochromatique est accordée en résonance avec la transition à deux photons du niveau circulaire  $|n+2, n+1, n+1\rangle$  à un autre circulaire  $|n, n-1, n-1\rangle$ .

(1) Transition à un photon  $|n+1, n, n\rangle \rightarrow |n, n-1, n-1\rangle$

Supposons qu'une onde est exactement à résonance sur la transition  $n+1 \rightarrow n$ ,  $h\nu = E_{n+1} - E_n$ . Il y a quasi-résonance sur les transitions adjacentes  $|n+1\rangle \rightarrow |n+2\rangle$  et  $|n\rangle \rightarrow |n-1\rangle$ . La mesure de la fréquence de transition va donc être perturbée par ces déplacements liés aux 2 quasi-résonances.

La figure I-7 montre le schéma des niveaux: les niveaux circulaires de  $(n-1)$ ,  $n$ ,  $(n+1)$ ,  $(n+2)$  respectivement.

Nous cherchons d'abord à calculer le déplacement de la fréquence de transition  $E_n \rightarrow E_{n+1}$  lorsqu'on applique une onde résonnante. Il est nécessaire de connaître les déplacements des 2 niveaux intéressés par la transition. Pour le niveau  $n+1$ ,  $f$  est essentiellement le niveau  $n+2$ , d'où:



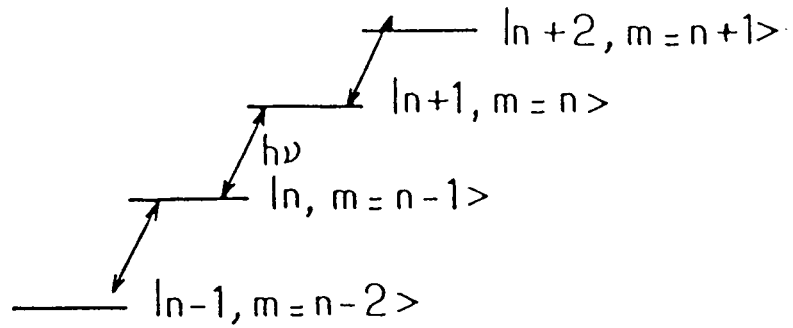


Fig.I-7 Schema des niveaux dans le cas d'une transition  
à un photon:  $h\nu = E_{n+1} - E_n$

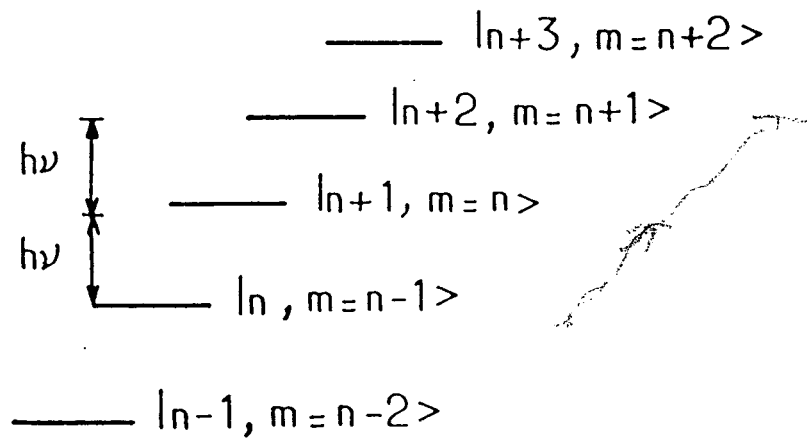


Fig.I-8 Schema des niveaux dans le cas d'une transition  
à deux photons:  $2h\nu = E_{n+2} - E_n$

$$\Delta E_{n+1} = \frac{\alpha h a_0 \phi}{6Ry} n^6 \left(1 + \frac{6}{n}\right) \quad (I.80)$$

On peut calculer le déplacement du niveau  $|n\rangle$ , qui est dû à la transition quasi-résonnante  $|n\rangle \rightarrow |n-1\rangle$ . La formule (I-79) nous donne:

$$\Delta E_n = \frac{\alpha h a_0 \phi}{6Ry} n^6 \left(1 - \frac{2}{n}\right) \quad (I.81)$$

Le déplacement du niveau  $|n\rangle$  est au premier ordre égal à celui du niveau  $|n+1\rangle$  et dans le même sens (un déplacement global). Il ne reste alors qu'un effet différentiel beaucoup plus petit. Pour  $n = 25$  et la puissance  $0,5 \text{ nW/cm}^2$  qui sature la transition  $|n+1\rangle \rightarrow |n\rangle$ , le déplacement est de l'ordre de 1Hz.

(2) Transition à deux photons  $|n+2, n+1, n+1\rangle \rightarrow |n, n-1, n-1\rangle$

Dans les expériences de spectroscopie de haute résolution, la mesure de la fréquence des transitions à deux photons est plus précise grâce à la diminution d'élargissement Doppler. Or, à cause de la puissance (plus grande que pour les transitions à 1 photon) nécessaire et de l'utilisation de quasi-résonance sur des niveaux intermédiaires, nous allons montrer que les déplacements des niveaux circulaires  $|n\rangle$  et  $|n+2\rangle$  peuvent être de l'ordre de kHz.

La figure I-8 montre le schéma des niveaux circulaires de  $(n-1)$ ,  $n$ ,  $(n+1)$ ,  $(n+2)$ ,  $(n+3)$  avec  $E_{n+2} - E_n = 2h\nu$ .

$\Delta E_n$

$E_i = E_n$ , deux niveaux voisins  $|n+1\rangle$  et  $|n-1\rangle$  sont couplés avec  $|n\rangle$ ,  $E_f = E_{n+1}$  ou  $E_{n-1}$ .

D'après la formule (I.79), on a donc :

$$\begin{aligned} \Delta E_n &= \alpha h \phi \left[ \frac{R_{n,n+1}^2}{E_n - E_{n+1} + \frac{1}{2}(E_{n+2} - E_n)} + \frac{R_{n,n-1}^2}{E_n - E_{n-1} - \frac{1}{2}(E_{n+2} - E_n)} \right] \\ &= - \frac{2\alpha h a_0^2}{9Ry} \phi n^6 \left(1 + \frac{18.7}{n}\right) \end{aligned} \quad (I.82)$$

$\Delta E_{n+2}$

$E_i = E_{n+2}$ , deux niveaux couplés à  $|i\rangle$  sont  $E_f = E_{n+3}, E_{n+1}$

$$\Delta E_{n+2} = \alpha h \Phi \left[ \frac{R_{n+2,n+3}^2}{E_{n+2} - E_{n+3} + \frac{1}{2} (E_{n+2} - E_n)} + \frac{R_{n+2,n+1}^2}{E_{n+2} - E_{n+1} - \frac{1}{2} (E_{n+2} - E_n)} \right]$$

$$= - \frac{2\alpha h a_0^2}{9Ry} \Phi n^8 \left( 1 + \frac{5.3}{n} \right) \quad (I.83)$$

Le déplacement du niveau  $|n\rangle$  est au premier ordre égal à celui du niveau  $|n+2\rangle$  et dans le même sens, qui vaut 8 kHz pour  $n = 25$  et une puissance ( $5,5 \mu\text{W}/\text{cm}^2$ ) qui sature à peine la transition. Mais l'effet différentiel est ici important et vaut:

$$- \frac{2\alpha h a_0^2}{9Ry} \Phi \cdot 13,4 n^7 \quad (I.84)$$

Cette quantité est égale à -4kHz pour  $n=25$  et à la même puissance.

### I.3. PROPRIETES EN PRESENCE D'UN CHAMP ELECTROSTATIQUE

Nous avons montré au début du chapitre 2 que le dipôle électrique d'un état circulaire est nul. Ceci rend les propriétés d'un atome circulaire en présence d'un champ électrique bien particulières. L'effet Stark est nul au premier ordre, non nul au 2ème ordre (effet Stark quadratique). L'atome circulaire n'est pratiquement pas sensible aux champs électriques appliqués le long de l'axe de quantification. Par ailleurs, un atome circulaire s'ionise plus difficilement qu'un atome de faible moment angulaire en champ électrostatique. Cet effet permet de détecter expérimentalement les atomes circulaires séparément. Ce chapitre est consacré à l'étude de ces deux effets.

### I. 3. 1. Effet Stark quadratique

Nous supposons qu'un champ électrique statique et uniforme  $\vec{F}$  est appliqué dans le sens des  $z$  croissants: cette hypothèse sera valable dans tout le chapitre.

#### *Hamiltonien*

En présence d'un champ électrique uniforme, le problème à deux corps reste séparable, puisque l'hamiltonien total est invariant par translation.

Nous considérons donc d'emblée le mouvement de la particule réduite et l'hamiltonien s'écrit en unités S.I. :

$$H = \frac{p^2}{2m} - \frac{q^2}{4\pi\epsilon_0} \frac{1}{R} - q\vec{F} \cdot \vec{R} = H_0 - q\vec{F} \cdot \vec{R}$$

soit en unités atomiques :

$$H = \frac{1}{2} p^2 - \frac{1}{R} + \vec{F} \cdot \vec{R} \quad (\text{I.85})$$

( $H, M_z, L_z$ ), où  $M_z$  est la projection du vecteur de Runge-Lenz généralisé  $\vec{M} = \vec{A} + 1/2 (\vec{R} \times \vec{F}) \times \vec{R}$  sur l'axe de quantification, constituent un ensemble complet d'observables ECOC.

Lorsque l'hamiltonien dipolaire électrique est une petite perturbation du terme de Coulomb, le spectre de l'atome dans un champ électrique peut être déduit simplement d'une théorie des perturbations.

L'application de la méthode d'approximation R.S.P.T. [16] nous donne le développement au 3ème ordre de l'énergie en présence d'un champ électrique :

$E = E^{(0)} + E^{(1)} + E^{(2)} + E^{(3)}$  avec

$$E^{(0)} = -\frac{1}{2n^2}, \text{ énergie non perturbée.}$$

$$E^{(1)} = -\frac{3}{2} \frac{n_1 - n_2}{n} \frac{n^4 F}{n^2}, \text{ effet Stark linéaire}$$

avec  $n = n_1 + n_2 + |m| + 1$

$$E^{(2)} = -\frac{1}{16} \left[ 17 - 3 \left[ \frac{n_1 - n_2}{n} \right]^2 - \frac{9m^2 - 19}{n^2} \right] \frac{(n^4 F)^2}{n^2}, \text{ effet Stark quadratique}$$

$$E^{(3)} = \frac{3}{32} \frac{n_1 - n_2}{n} \left[ 23 - \left[ \frac{n_1 - n_2}{n} \right]^2 + \frac{11m^2 + 39}{n^2} \right] \frac{(n^4 F)^3}{n^2} \quad (I.86)$$

où  $n_1, n_2$  sont les nombres quantiques paraboliques. Pour un état circulaire  $m=n-1$ ,  $n_1=n_2=0$ , on obtient:

$$E^{(1)} = 0$$

$$E^{(2)} = -\frac{1}{8} n^4 F^2 \left[ 4n^2 + 9n + 5 \right] \quad (I.87)$$

$$E^{(3)} = 0$$

Comme le dipôle électrique est nul dans l'état circulaire, il n'est pas étonnant que le terme d'effet Stark linéaire soit nul.

Il ne reste que le terme Stark quadratique en  $F^2$ . Le déplacement en énergie est de l'ordre de  $-33\text{kHz}/(\text{V}/\text{cm}^2)$  pour  $n=25$ . Ce déplacement est beaucoup plus faible que celui des niveaux non circulaires ( $48\text{MHz}/\text{V}/\text{cm}$ ) linéaire en champ électrique. On peut expliquer le signe négatif de  $E^{(2)}$  de la manière suivante:

La théorie des perturbations stationnaires au deuxième ordre conduit à :

$$E^{(2)} = \sum_{i \neq n} \frac{|V_{in}|^2}{E_n - E_i} \quad \text{où } V_{in} = \langle i | qFz | n \rangle \quad (I.88)$$

Si  $|n\rangle$  est un état circulaire, les états couplés à  $|n\rangle$  sont des états de même  $m$  dont le nombre quantique principal est supérieur à  $n$  ( $n' > n$ ) et dont l'énergie est supérieure à celle de l'état circulaire. Comme  $|V_{in}|^2$  est toujours positif, tous les termes de l'équation (I.88) sont négatifs et  $E^{(2)}$  est négatif. Les niveaux couplés au circulaire étant tous "au-dessus" de lui, le circulaire est "repoussé vers le bas".

### I.3.2. Ionisation par champ électrostatique

Un atome circulaire s'ionise dans un champ électrostatique plus fort qu'un atome de Rydberg de plus faible moment angulaire  $\ell$ . Nous pouvons donner de ce phénomène une explication qualitative à l'aide d'une description classique hydrogénoïde.

L'orbite classique d'un atome d'hydrogène a pour équation polaire:

$$\frac{1}{r} = \frac{me^2}{L^2} \left( 1 - \frac{A}{e^2} \cos \theta \right)$$

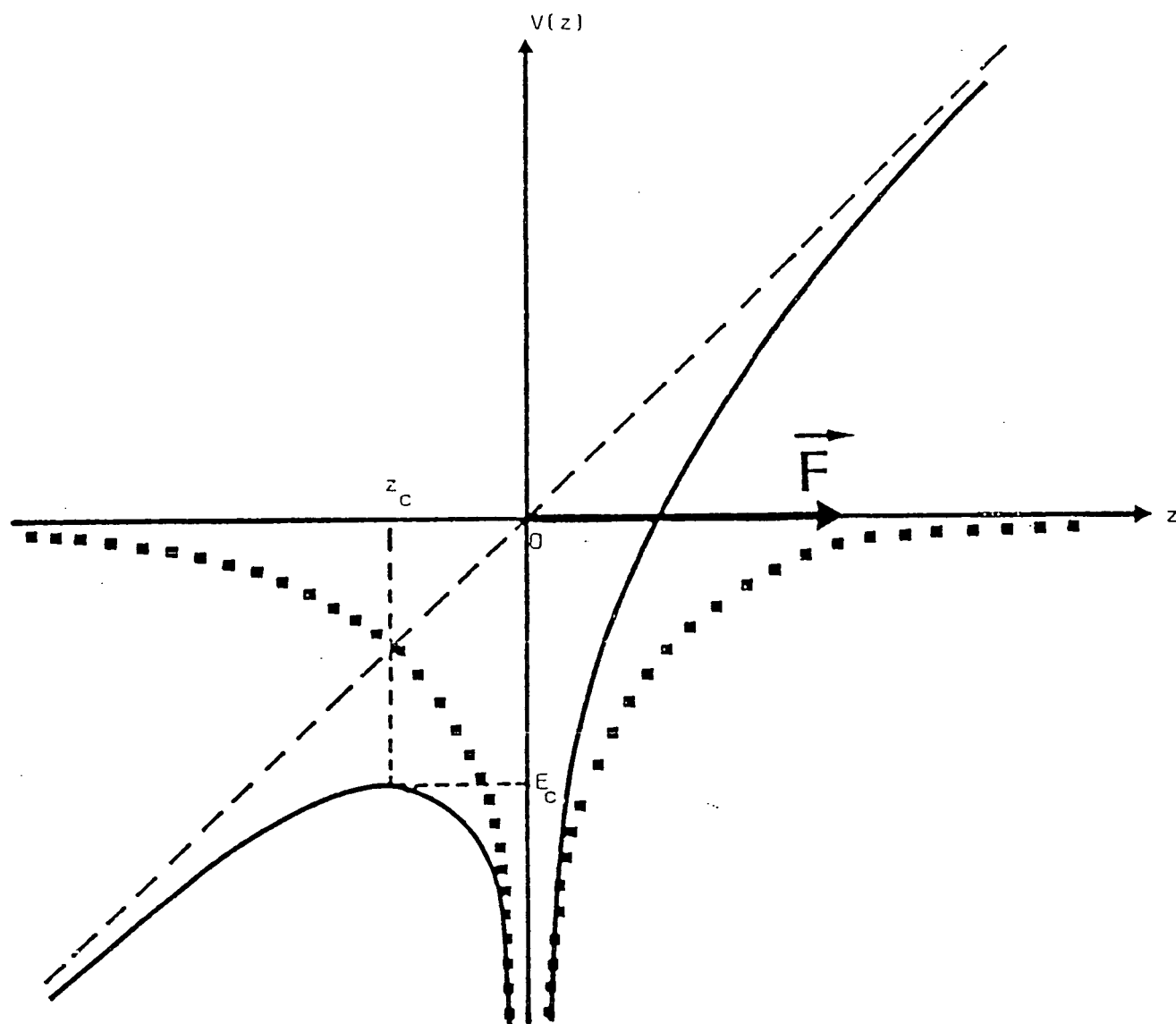
La trajectoire est une ellipse d'excentricité  $A/e^2$ . Le point de l'orbite le plus éloigné du noyau correspond à :

$$r = r_\ell = \frac{L^2}{me^2} \frac{1}{1 - A/e^2}$$

Parmi toutes les ellipses, le cercle est tel que ce point est le moins éloigné du noyau. Il est minimum et égal à  $L^2/me^2$  pour l'atome circulaire.

Lorsque l'on décrit l'ionisation par champ, par le modèle du potentiel attractif en  $1/r$  déformé par le potentiel lié au champ électrique (potentiel en  $r$ ) (voir fig. I-9), on voit que l'électron circulaire, qui est plus près du noyau, atteint le point critique (ou point selle) pour une valeur du champ électrique plus élevée qu'un électron de plus faible moment angulaire. Le seuil d'ionisation de l'état circulaire est donc le plus élevé.

Il est possible de déterminer exactement ces seuils numériquement pour l'atome d'hydrogène aussi bien pour les états circulaires que non circulaires.



- ■ ■ ■ Energie coulombienne
- - - - Energie due au champ électrique
- — — Energie potentielle totale

Fig. I-9 Energie potentielle de l'électron

La probabilité  $\Gamma$  exprimée en  $s^{-1}$  d'ionisation d'atomes hydrogénoïdes dans un champ électrique uniforme est donné par la formule semi-empirique [17]

$$\Gamma = \frac{(4R)^{2n_2+m+1}}{n^3 n_2! (n_2+m)!} \exp \left[ -\frac{2}{3} R - \frac{1}{4} n^3 F (34n_2^2 + 34n_2 m + 46n_2 + 7m^2 + 23m + \frac{53}{3}) \right] \quad (I.89)$$

où  $R = (-2E_0)^{3/2}$  et  $E_0$  est calculé par la théorie des perturbations à l'ordre 4.

Nous avons calculé  $\Gamma$  sur ordinateur et nous avons porté sur la figure I-10, pour les niveaux  $n_1=0$ ,  $0 \leq m \leq n-1$ , des multiplicités  $n=25$  et  $n=24$ , le champ d'ionisation correspondant à une probabilité d'ionisation  $\Gamma = 1.10^6 s^{-1}$ .

Nous pouvons vérifier sur la figure I. 10 que l'état circulaire ( $m=n-1$ ,  $n_1=0$ ) s'ionise dans un champ beaucoup plus fort que les états de plus faible moment angulaire comme l'état  $m=0$ ,  $n_1=0$  (4/3 fois plus fort approximativement).

#### I. 4. PROPRIETE EN PRESENCE D'UN CHAMP MAGNETIQUE

Un état circulaire, grâce à son moment magnétique maximum ( $m=n-1$ ), a certainement des propriétés intéressantes en présence d'un champ magnétique statique. Nous allons étudier au premier paragraphe l'hamiltonien d'un atome d'hydrogène en présence d'un champ magnétique statique. Dans le deuxième paragraphe, l'effet paramagnétique sera analysé. Les troisième et quatrième paragraphes seront consacrés à l'étude des effets diamagnétiques dans la zone de inter- $\ell$ -mixing et dans celle de inter- $n$ -mixing.

##### I. 4. 1. Hamiltonien d'un atome d'hydrogène en présence d'un champ magnétique

Nous nous plaçons dans le cadre d'une étude non relativiste de l'atome d'hydrogène perturbé par la présence d'un champ magnétique uniforme.

En utilisant la jauge cylindrique, l'hamiltonien réduit s'écrit:



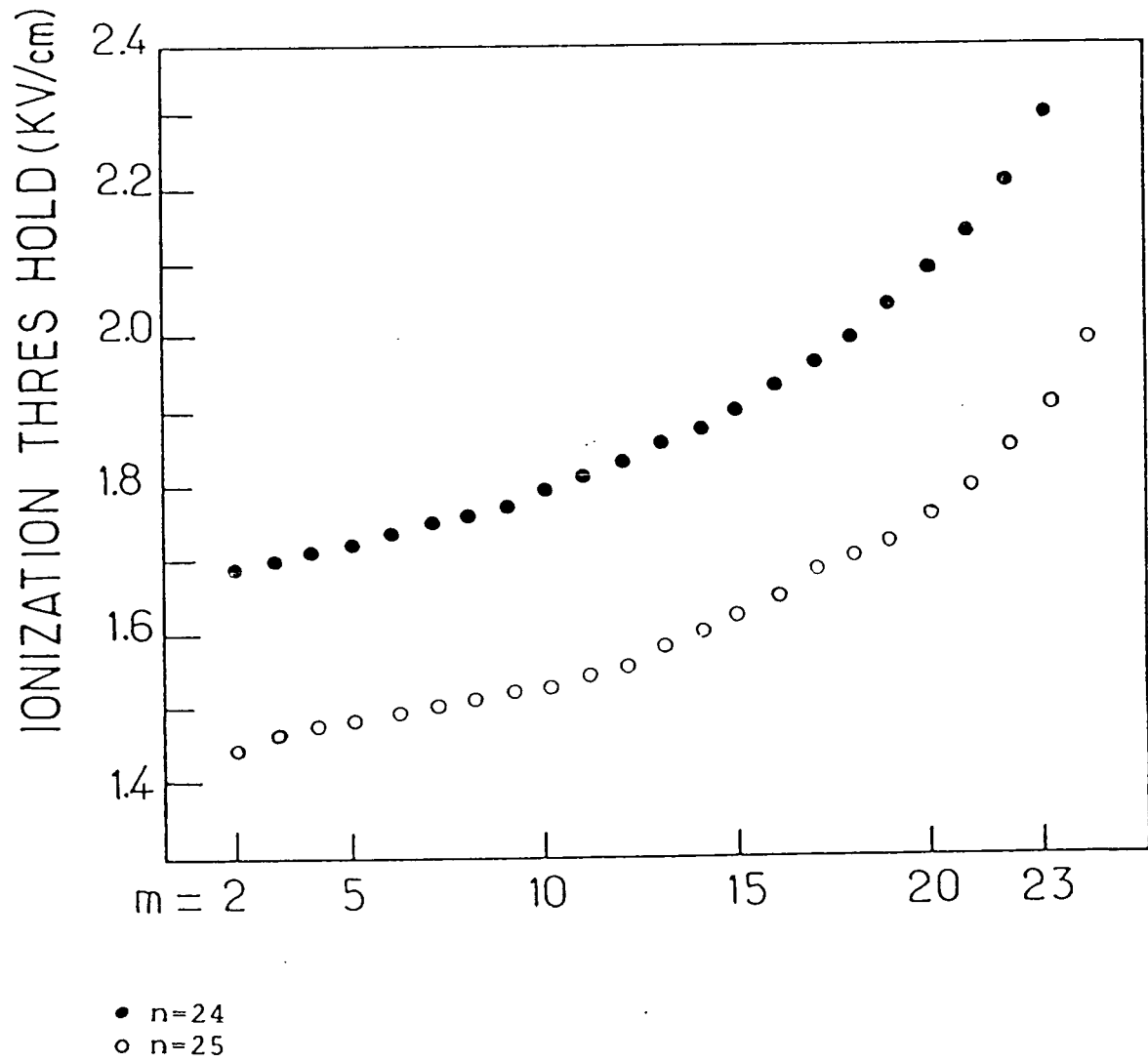


Fig. 1-10

$$H_B = \frac{\vec{P}^2}{2m} - \frac{e^2}{|\vec{R}|} - \frac{q}{2m} \vec{B} \cdot \vec{L} + \frac{q^2}{8m} (\vec{r} \times \vec{B})^2 \quad (I.90)$$

Les deux termes qui dépendent du champ  $\vec{B}$  (le terme paramagnétique linéaire et le terme diamagnétique quadratique) rompent la symétrie sphérique associée au potentiel coulombien. Seule subsiste la symétrie de révolution autour de l'axe Oz. La composante  $L_z$  du moment cinétique commute avec l'hamiltonien  $H_B$ . On peut chercher les fonctions propres de  $H_B$  comme fonctions propres de  $L_z$ .

Nous voulons traiter les termes paramagnétiques et diamagnétiques comme des perturbations par rapport à l'hamiltonien en champ nul  $H_0$ . La condition de validité de cette approximation est:

$$\gamma n^3 \ll 1 \text{ avec } \gamma = B/B_C \quad B_C = 2.35 \cdot 10^5 \text{ T.}$$

#### I.4.2. L'effet paramagnétique

Le terme paramagnétique  $1/2 \vec{B} \cdot \vec{L}$  en unité atomique est linéaire en B.

$$E_P = \frac{1}{2} m B_z \quad (I.91)$$

Ce terme est maximum :  $1/2 (n-1)B_z$ , pour l'état circulaire droit ( $m=n-1$ ) et est minimum:  $-1/2 (n-1)B_z$ , pour l'état circulaire gauche ( $m=-(n-1)$ ). Dans le diagramme énergie-champ magnétique, l'énergie en fonction du champ B est maximum ou minimum respectivement pour ces deux états.

L'ordre de grandeur de l'effet paramagnétique pour un état circulaire droit est de  $E_P = 336\text{GHz}$  pour  $n=25$  pour un champ de 1 Tesla.

Le terme paramagnétique  $1/2 \vec{B} \cdot \vec{L}$  est le même dans tout sous-espace de nombre quantique magnétique m fixé et ne fait que déplacer globalement l'énergie du système. On peut donc s'intéresser uniquement à l'hamiltonien diamagnétique  $H_D$

$$H_D = \frac{\vec{P}^2}{2m} - \frac{e^2}{|\vec{R}|} + \frac{q^2 B^2}{8m} \rho^2$$

En unité atomique,  $H_D$  est de la forme :

$$H_D = \frac{1}{2} \vec{p}^2 - \frac{1}{|\vec{R}|} + \frac{\gamma^2}{8} \rho^2 \quad \text{avec } \gamma = \frac{B}{B_C} \quad (\text{I.92})$$

#### I.4.3. L'effet diamagnétique dans la zone de inter- $\ell$ -mixing

Le terme diamagnétique s'écrit :

$$H_D = \frac{\gamma^2}{8} \rho^2 = \frac{\gamma^2}{8} r^2 \sin^2 \theta \quad (\text{I.93})$$

Pour un niveau  $n$ , le rayon de la trajectoire classique croît comme  $n^2$ . L'écart entre deux niveaux non perturbés consécutifs est  $1/n^3$ . Il en résulte qu'une théorie perturbative au premier ordre dans l'espace  $n$  fixé n'est valable que si:

$$\frac{\gamma^2}{8} n^4 \ll \frac{1}{n^3} \longrightarrow \gamma n^{7/2} \ll 1 \quad (\text{I.94})$$

Dans cette hypothèse,  $H_D$  couple les états de même  $n$ , mais de  $\ell$  différents.

Le niveau  $n$  est dégénéré  $n^2$  fois, mais  $m$  est un bon nombre quantique et l'on peut diagonaliser la matrice d'interaction magnétique à l'intérieur d'un espace à  $n$  et  $m$  donnés. Nous devons donc calculer les éléments de matrice (écrits en coordonnées sphériques):

$$\begin{aligned} \langle n, \ell, m | r^2 \sin^2 \theta | n, \ell, m \rangle &= n^2 \left[ 5n^2 + 1 - 3\ell(\ell+1) \right] \frac{\ell^2 + \ell - 1 + m^2}{(2\ell-1)(2\ell+3)} \\ \langle n, \ell, m | r^2 \sin^2 \theta | n, \ell+2, m \rangle &= -\frac{5}{2} n^2 \left[ n^2 - (\ell+2)^2 \right]^{\frac{1}{2}} \left[ n^2 - (\ell+1)^2 \right]^{\frac{1}{2}} \\ &\quad \times \left| \frac{[(\ell+1)^2 - m^2][(\ell+2)^2 - m^2]}{(2\ell+1)(2\ell+3)^2(2\ell+5)} \right|^{1/2} \end{aligned} \quad (\text{I.96})$$

On peut donc diagonaliser séparément les états de  $\ell$  pair et de  $\ell$  impair, ce qui n'est qu'une manifestation de la conservation de la parité totale  $\pi_l$ .

La dimension des matrices à diagonaliser est déterminée par le nombre de valeurs de  $l$  possibles, ayant la même parité, avec de plus la condition  $|m| \leq l \leq n-1$ . Pour des moments magnétiques élevés, la dimension de ces matrices devient petite (1 dimension pour l'état circulaire) et l'on peut les diagonaliser analytiquement (ce qui est un avantage appréciable). Nous allons calculer l'énergie diamagnétique pour les 3 valeurs les plus élevées du moment magnétique à  $n$  fixé,  $m=n-1$ ,  $n-2$ ,  $n-3$ .

#### Cas $m = n - 1$

Ce cas est le plus simple, la matrice à diagonaliser est de dimension  $1 \times 1$ , le seul terme vaut :

$$\begin{aligned} \langle n, l=n-1, m=n-1 | r^2 \sin^2 \theta | n, l=n-1, m=n-1 \rangle \\ = n^3(n+1) \end{aligned}$$

L'énergie diamagnétique de l'état circulaire est :

$$E_D(l=m=n-1) = \frac{\gamma^2}{8} n^3 (n+1) \quad (\text{I.97})$$

L'ordre de grandeur de  $E_D$  pour  $n = 25$  et  $B = 1$  Tesla est :

$$E_D = 6 \text{ GHz.}$$

On notera que pour un champ de 1 Tesla, l'effet paramagnétique de l'état circulaire ( $n=25$ ) est supérieur à l'effet diamagnétique. L'effet diamagnétique de l'état circulaire devient dominant dès que le champ magnétique est supérieur à  $4(n-1)/n^3(n+1)B_C$ .

#### $m = n - 2$

Nous nous trouvons en présence d'une matrice de dimension 2 déjà diagonalisée dont les 2 termes diagonaux sont l'énergie des deux sous-niveaux:

$$\begin{aligned} \langle n, l=n-1, m=n-2 | \gamma^2 \sin^2 \theta | n, l=n-1, m=n-2 \rangle &= \frac{\gamma^2}{8} \\ &= n^2(n^2-1) \frac{\gamma^2}{8} \end{aligned} \quad (\text{I.98})$$

$$\begin{aligned}
 \text{et } \langle n, \ell=n-2, m=n-2 | r^2 \sin^2 \theta | n, \ell=n-2, m=n-2 \rangle &= \frac{\gamma^2}{8} \\
 &= n^2(n-1)(n+5) \frac{\gamma^2}{8} \quad (\text{I.99})
 \end{aligned}$$

$m = n-3$

La dimension de matrice à diagonaliser est trois, qui est le nombre de valeurs possibles pour le moment cinétique  $\ell$ :  $(n-1)(n-2)(n-3)$ . On peut diagonaliser séparément les sous-matrices correspondant à  $\ell=n-2$  (1 dimension) et  $\ell=n-1, n-3$  (2 dimensions).

Pour  $\ell=n-2$ , on se trouve en présence du seul terme diagonal

$$\begin{aligned}
 \langle n, \ell=n-2, m=n-3 | r^2 \sin^2 \theta | n, \ell=n-2, m=n-3 \rangle &= \frac{\gamma^2}{8} \\
 &= n^2(n+5)(n-2) \frac{\gamma^2}{8} \quad (\text{I.100})
 \end{aligned}$$

Pour  $\ell=n-1, n-3$ , on a une matrice  $2 \times 2$  à diagonaliser :

$$\begin{aligned}
 &\frac{\gamma^2}{8} \left| \begin{array}{cc} \langle n, \ell=n-1, m=n-3 | \rho^2 | n, \ell=n-1, m=n-3 \rangle & \langle n, \ell=n-3, m=n-3 | \rho^2 | n, \ell=n-1, m=n-3 \rangle \\ \langle n, \ell=n-1, m=n-3 | \rho^2 | n, \ell=n-3, m=n-3 \rangle & \langle n, \ell=n-3, m=n-3 | \rho^2 | n, \ell=n-3, m=n-3 \rangle \end{array} \right| \\
 &= \frac{\gamma^2}{8} \left| \begin{array}{cc} \frac{n^2(n+1)(2n^2-7n+8)}{(2n-3)} & \frac{-10n^2 \sqrt{(n-1)(n-2)}}{(2n-3)} \\ \frac{-10n^2 \sqrt{(n-1)(n-2)}}{(2n-3)} & \frac{n^2(n-2)(2n^2+15n-17)}{(2n-3)} \end{array} \right|
 \end{aligned}$$

En remarquant que pour des atomes de Rydberg,  $n$  est très grand devant un, on obtient une expression simplifiée des énergies des 2 autres sous-niveaux:

$$E_D \approx \frac{\gamma^2}{8} \begin{cases} n^3(n+7) \\ n^3(n-1) \end{cases}$$

L'énergie des 3 sous-niveaux pour  $m = n-3$  est approximativement de :

$$E_D \approx \frac{\gamma^2}{8} \begin{cases} n^3(n+7) \\ n^3(n+3) \\ n^3(n-1) \end{cases} \quad (\text{I.101})$$

Les sous-niveaux sont donc équidistants avec un écart égal à  $(\gamma^2/2)n^3$ .

Les éléments de matrice de l'interaction diamagnétique sont proportionnels à  $\gamma^2$ , donc à  $B^2$ . Il sera donc très pratique de représenter graphiquement l'évolution des énergies des sous-niveaux pour  $m = n-1, n-2, n-3$  en fonction de l'intensité du champ dans le diagramme  $(E, B^2)$  (voir fig. I-11). Les expressions des énergies sont pour  $n \gg 1$  :

$$\begin{array}{lll} \text{pour } m = n-1 & \text{pour } m = n-2 & \text{pour } m = n-3 \\ E_D = n^3(n+1) \frac{\gamma^2}{8} & E_D = \frac{\gamma^2}{8} \begin{cases} n^3(n+4) \\ n^4 \end{cases} & E_D = \frac{\gamma^2}{8} \begin{cases} n^3(n+7) \\ n^3(n+3) \\ n^3(n-1) \end{cases} \end{array} \quad (\text{I.102})$$

On peut remarquer que l'énergie diamagnétique n'est ni maximale ni minimale pour l'état circulaire, comme c'est le cas pour l'énergie paramagnétique. Les pentes extrêmes correspondent aux séries de  $m=0$ : le minimum est de l'ordre de  $(\gamma^2/16)n^4$  et le maximum est de l'ordre de  $5\gamma^2 n^4/8$  comme cela est prévu par la théorie de la symétrie approximative [18]  $O(3)\lambda$ .

#### I.4.4. L'effet diamagnétique dans la zone de inter-n-mixing

Quand le champ magnétique  $B$  croît, de petits anticroisements entre sous-niveaux issus des multiplicités de  $n$  différent sont observés [19]. L'écart à l'anticroisement varie comme  $e^{-2n}$ , suivant la théorie de la symétrie approximative.

Dans le cas de l'état circulaire, son énergie ne peut être proche de celle d'un autre état de même  $m$  et de  $n$  différent et cela quelle que soit

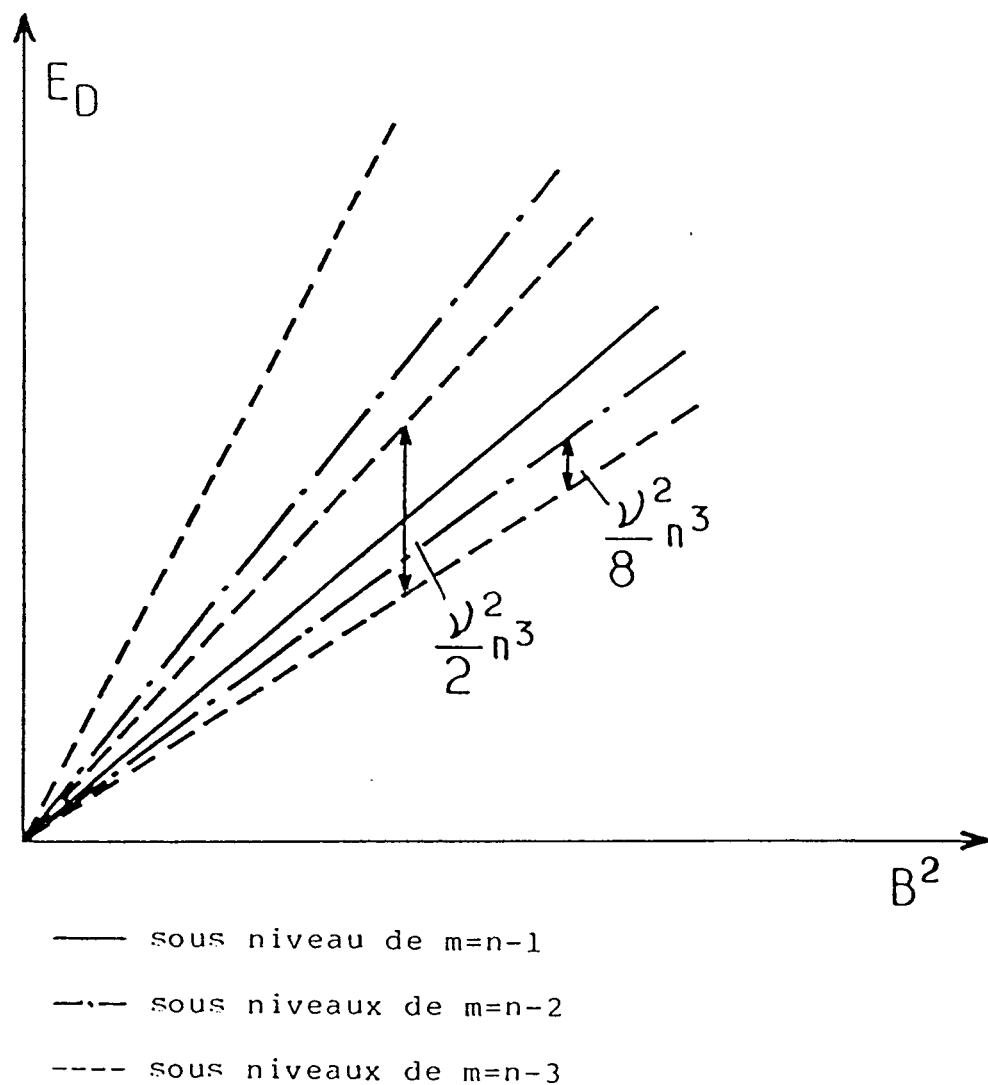


Fig. I-11 Diagramme d'énergie en fonction de  $B^2$  pour  $(n,m)$  donné :  
 $m=n-1$  ,  $m=n-2$  ,  $m=n-3$  sans terme paramagnétique

la valeur du champ magnétique. L'énergie diamagnétique d'un état circulaire est en effet  $E_D(n, m=n-1) = (\gamma^2/8)n^3(n+1)$ . Celle d'un des états de même  $m$  le plus proche:  $m = n-1$ ,  $n' = n+1$  est  $E_D(n'=n+1, m=n-1) = (n+1)^2(n^2+2n)\gamma^2/8$  (le sous-niveau dont l'énergie est la plus faible des deux) et croît plus vite avec  $B^2$  que pour le circulaire. Finalement les deux niveaux ne se rencontrent jamais dans le diagramme d'énergie  $E$  en fonction de  $B^2$ . Il n'y aura donc ni croisement ni anticroisement et l'état circulaire reste toujours isolé sans se coupler avec d'autres états.

### I.5 COMPORTEMENT DYNAMIQUE D'UN ATOME INITIALEMENT CIRCULAIRE DANS UN CHAMP ELECTRIQUE OU/ET MAGNETIQUE STATIQUE FAIBLE

Nous avons étudié dans les paragraphes I.3 et I.4 les propriétés d'un atome circulaire en présence d'un champ électrostatique ou magnétique statique dont la direction est parallèle à l'axe de quantification. Ce chapitre sera consacré aux propriétés dynamiques d'un atome initialement circulaire couplé à un champ électrique ou/et magnétique statique faible dont la direction ou/et le module varient dans le temps.

Comme pour un état de Rydberg circulaire les 3 nombres quantiques  $n$ ,  $\ell$ ,  $m_\ell$  sont très supérieurs à un, nous pouvons le décrire comme un système hydrogénoïde classique, suivant le modèle introduit au paragraphe I.1. Dans les cas les plus intéressants, nous vérifierons numériquement l'équivalence entre les approches classique et quantique.

Considérons le problème de Coulomb perturbé par la présence d'un champ électrique ( $\vec{E}$ ) et/ou magnétique ( $\vec{B}$ ) statique uniforme. Nous allons nous intéresser au cas où les champs appliqués sont de faible intensité. Une telle situation se décrit et s'interprète physiquement de manière très simple. De plus, comme nous le verrons, elle rend bien compte d'une partie de nos résultats expérimentaux.

Appelons  $\vec{L}$  le moment cinétique orbital classique de l'électron (nous négligeons ici l'effet du spin électronique qui est découplé des variables orbitales) et  $\vec{A}$  le vecteur de Runge-Lenz généralisé:

$$\vec{L} = \vec{r} \wedge \vec{p} \quad (\text{I.103})$$

$$\vec{A} = \sqrt{\frac{ma}{e^2}} \left[ \frac{1}{m} \vec{L} \wedge \vec{p} + e^2 \frac{\vec{r}}{r} \right] \quad (\text{I.104})$$



$m$ ,  $\vec{r}$  et  $\vec{p}$  sont respectivement la masse, le rayon vecteur et l'impulsion de l'électron.

Dans le cadre de l'approximation séculaire [2], l'équation du mouvement de l'électron de l'atome est :

$$\begin{aligned}\frac{d}{dt} \vec{L} &= \vec{\omega}_L \wedge \vec{L} + \vec{\omega}_S \wedge \vec{A} \\ \frac{d}{dt} \vec{A} &= \vec{\omega}_L \wedge \vec{A} + \vec{\omega}_S \wedge \vec{L}\end{aligned}\quad (\text{I.105})$$

où  $\omega_S$  est la fréquence de Stark  $\vec{\omega}_S = 3/2 (4\pi\epsilon_0\hbar/m|q|)n\vec{E}$ ,  $\omega_L$  la fréquence de Larmor  $\vec{\omega}_L = -q/2m \vec{B}$  et  $q$  la charge de l'électron.  $\omega_S$  est égal à 48MHz dans un champ de 1V/cm pour  $n=25$ .  $\omega_L$  est égal à 1,4MHz dans un champ magnétique de 1 Gauss quel que soit  $n$ .

En introduisant :

$$\vec{J}_{1,2} = \frac{1}{2} (\vec{L} \pm \vec{A}) \quad (\text{I.106})$$

$$\vec{\omega}_{1,2} = \vec{\omega}_L \pm \vec{\omega}_S \quad (\text{I.107})$$

on peut découpler ces équations :

$$\frac{d}{dt} \vec{J}_{1,2} = \vec{\omega}_{1,2} \wedge \vec{J}_{1,2} \quad (\text{I.108})$$

Sous cette forme, la perturbation séculaire des trajectoires se traduit par la simple précession de  $\vec{J}_1$  autour de  $\vec{\omega}_1$  et de  $\vec{J}_2$  autour de  $\vec{\omega}_2$ . Les variations séculaires de  $\vec{L}$  et  $\vec{A}$  s'en déduisent immédiatement (voir fig. I-12).

L'énergie  $E$  de l'électron est modifiée, à cause des interactions entre les champs électrique et magnétique et les dipôles moyens correspondants, électrique et magnétique. On a:

$$E = E_0 - \vec{M} \cdot \vec{B} - \vec{d} \cdot \vec{F} \quad (\text{I.109})$$

En reprenant les expressions (I.8) de  $\vec{d}$  et (I.9) de  $\vec{M}$ , il vient en unité atomique:

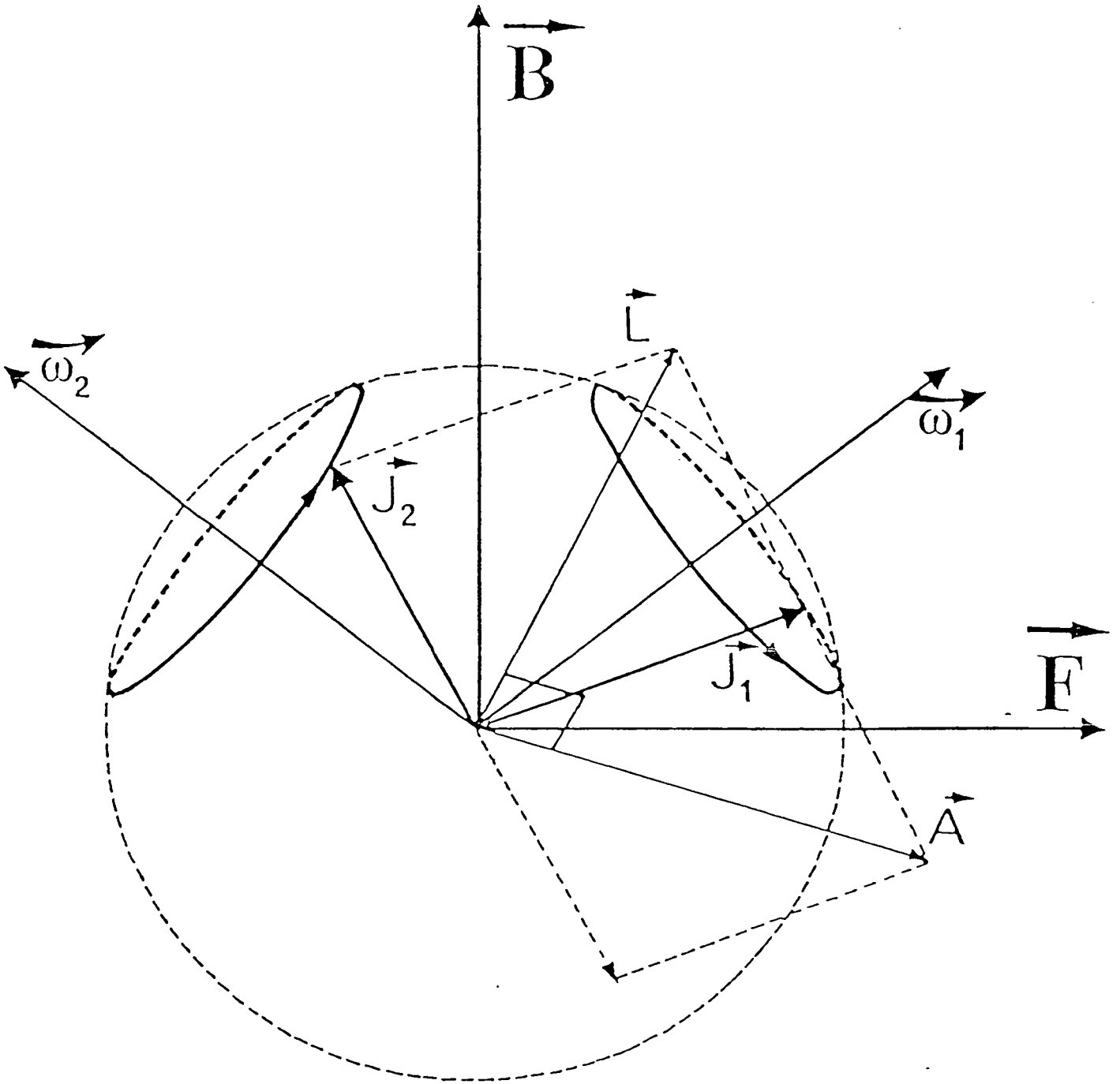


Fig. I-12 Evolution de  $\vec{L}$  et  $\vec{A}$  en présence des champs  $\vec{F}$  et  $\vec{B}$  (régime des champs faibles).  $\vec{J}_1$  et  $\vec{J}_2$  précessent autour de  $\vec{\omega}_1$  et  $\vec{\omega}_2$  [2]

$$\vec{E} = \vec{E}_0 + \frac{\vec{B}}{2} \cdot \vec{L} + \frac{3}{2} n \vec{A} \cdot \vec{E} = \vec{E}_0 + \vec{j}_1 \cdot \vec{\omega}_1 + \vec{j}_2 \cdot \vec{\omega}_2 \quad (\text{I.110})$$

Pour un état circulaire, le terme  $(\vec{B}/2 \cdot \vec{L})$  est maximum, le terme  $((3/2)n \vec{A} \cdot \vec{E})$  s'annule. Pour un état S ( $\vec{L}=0$ ), la situation est inverse.

L'équation (I.105) est valide si  $n^4 E \ll 1$  c'est-à-dire si l'effet Stark quadratique est négligeable et si la force diamagnétique ( $B^2$ ) est très petite devant la force paramagnétique.

### I.5.1. Le problème de Coulomb en présence d'un champ électrique uniforme

Si le champ magnétique est nul ( $\vec{B}=0$ ), l'équation du mouvement devient:

$$\frac{d}{dt} \vec{J}_{1,2} = \pm \vec{\omega}_S \wedge \vec{J}_{1,2} \quad (\text{I.111})$$

#### \* Champ électrique colinéaire à $\vec{L}$

On vérifie aisément, sous cette forme, qu'un état circulaire ( $\vec{A}=0$ ,  $|\vec{L}| = (n-1)\hbar$ ) reste stable si le champ électrique appliqué est colinéaire à  $\vec{L}$ , même si celui-ci varie dans le temps ( $\vec{\omega}_S \wedge \vec{L} = 0$ ).

#### \* Champ électrique non colinéaire à $\vec{L}$

Si le champ électrique n'est pas colinéaire à  $\vec{L}$ , l'effet du couplage avec le champ peut être énorme. Considérons le cas d'un électron initialement circulaire avec une orbite dans le plan x,y:  $\vec{L} = (n-1)\hbar \vec{e}_z$ ,  $\vec{A} = 0$ , couplé à un champ électrique de direction parallèle au plan de l'orbite  $\vec{\omega}_S = \omega_S \cdot \vec{e}_x$ .

L'équation du mouvement s'intègre facilement et l'on obtient :

$$\left. \begin{array}{l} \vec{L} \\ \vec{A} \end{array} \right\} = (n-1)\hbar \left\{ \begin{array}{l} \cos(\omega_S t) \vec{e}_z \\ \sin(\omega_S t) \vec{e}_y \end{array} \right. \quad (\text{I.112})$$

Cette équation montre qu'un électron peut passer d'une orbite circulaire  $n=25$  ( $\vec{L} = (n-1)\hbar \vec{e}_z$ ,  $\vec{A} = 0$ ) à une orbite très elliptique ( $\vec{A} \approx (n-1)\hbar \vec{e}_z$ ,  $\vec{L} = 0$ ) en un temps de  $1\mu\text{s}$  sous l'effet d'un champ électrique de l'ordre de  $10\text{mV/cm}$  ( $\omega_S \sim 2\pi \times 500\text{kHz}$ ).

\* Champ électrique de direction variable dans le temps

Si le champ électrique est initialement colinéaire avec  $\vec{L}$ , mais si sa direction varie, on observe suivant la vitesse de variation du champ différents régimes d'évolution.

Si le champ évolue lentement :

$$\left| \frac{d}{dt} \vec{\omega}_S \right| \ll \left| \vec{\omega}_S \right| \quad (I.113)$$

le système atomique suit adiabatiquement le champ et reste dans l'état quantique qui se déduit par continuité (approximation adiabatique). Si par contre le champ évolue rapidement, c'est-à-dire si :

$$\left| \frac{d}{dt} \vec{\omega}_S \right| \gg \left| \vec{\omega}_S \right| \quad (I.114)$$

le système atomique n'a pas le temps d'évoluer pendant le temps

$$\Delta t \sim \left| \vec{\omega}_S \right| \ll \left| \frac{d\vec{\omega}_S}{dt} \right|,$$

que met le champ électrique pour tourner (approximation soudaine).

Dans tous les cas intermédiaires, c'est-à-dire si :

$$\left| \frac{d}{dt} \vec{\omega}_S \right| \sim \left| \vec{\omega}_S \right| \quad (I.115)$$

le système a le temps d'évoluer, sans toutefois pouvoir suivre adiabatiquement la direction du champ, et l'orbite initialement circulaire se trouve être considérablement modifiée.

Nous avons illustré quantitativement cet effet sur la figure I-13. Cette figure présente l'allure des trajectoires  $\vec{L}$  lorsque l'on fait subir au champ électrique une demi-rotation dans le plan xz de  $\vec{e}_z$  à  $-\vec{e}_z$ :

$$\vec{\omega}_S = 2\pi\alpha \left[ \sin(2\pi\beta t) \vec{e}_x + \cos(2\pi\beta t) \vec{e}_z \right] \quad (I.116)$$

où  $\beta$  est la fréquence de la rotation et  $\alpha$  la fréquence Stark hydrogénoïde. Les séries de courbes a, b, c, d et e correspondent à  $\alpha/\beta = 0,2, 0,4, 1, 2,4$  respectivement. Comme  $\vec{L}$  reste toujours dans le plan xz, nous n'avons présenté sur la figure que la projection correspondante.

Si le champ tourne lentement :  $\alpha \gg \beta$  (fig. I.13e),  $\vec{L}$  "suit bien" la direction du champ. S'il tourne vite:  $\alpha \ll \beta$  (fig. I.13a),  $\vec{L}$  n'a pas le temps de changer et reste orienté suivant  $\vec{e}_z$ . Dans les cas intermédiaires (fig. I.13c), après rotation et la direction et le module de  $\vec{L}$  se trouvent modifiés.

Nous avons testé la validité des équations classiques (I.111) en comparant l'évolution classique (courbes en trait plein) avec l'évolution quantique pour les mêmes valeurs du rapport  $\alpha/\beta$  pour  $n = 10$  (courbes pointillées) et  $n = 20$  (courbes en tirets). Le calcul se fait en intégrant numériquement l'équation de Schrödinger dans la base sphérique  $n, l, m$  le champ électrique  $\vec{E}$  étant traité classiquement dans l'hamiltonien Stark hydrogénoïde  $H = \vec{E} \cdot \vec{D}$ . Les trajectoires quantiques restent proches des trajectoires classiques pour  $n$  grand, ce qui confirme la validité des équations classiques (I.111). Notons que cette fois  $\vec{L}$  n'est plus strictement dans le plan  $xz$  ( $\langle L_y \rangle \neq 0$ ).

### I.5.2. Le problème de Coulomb en présence d'un champ magnétique uniforme

Si le champ électrique est nul :  $\vec{\omega}_S = 0$ , l'équation du mouvement (I.105) s'écrit :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{d}{dt} \vec{L} = \vec{\omega}_L \wedge \vec{L} \\ \frac{d}{dt} \vec{A} = \vec{\omega}_L \wedge \vec{A} \end{array} \right. \quad (\text{I.117})$$

$$\frac{d}{dt} \vec{J}_{1,2} = \vec{\omega}_L \wedge \vec{J}_{1,2} \quad (\text{I.118})$$

Ces équations sont plus simples que les équations en champ électrique (I.111),  $\vec{L}$  et  $\vec{A}$  sont découplés. De plus,  $|\vec{L}|$  et  $|\vec{A}|$  sont des constantes du mouvement.

Etudions par exemple l'effet du champ terrestre qui est de l'ordre de 1 Gauss. Considérons un atome circulaire dont l'axe de quantification fait initialement un angle  $\eta$  avec le champ terrestre. D'après les équations (I.117),  $\vec{L}$ ,  $\vec{A}$  ( $=0$ ) vont précesser autour du champ à la fréquence de Larmor  $\omega_L = q/2mB \sim 1\text{MHz}$ . Comme  $\vec{L}$  et  $\vec{A}$  sont découplés,  $\vec{A}$  reste toujours nul et  $|\vec{L}|$  reste maximum (voir fig. I-14).

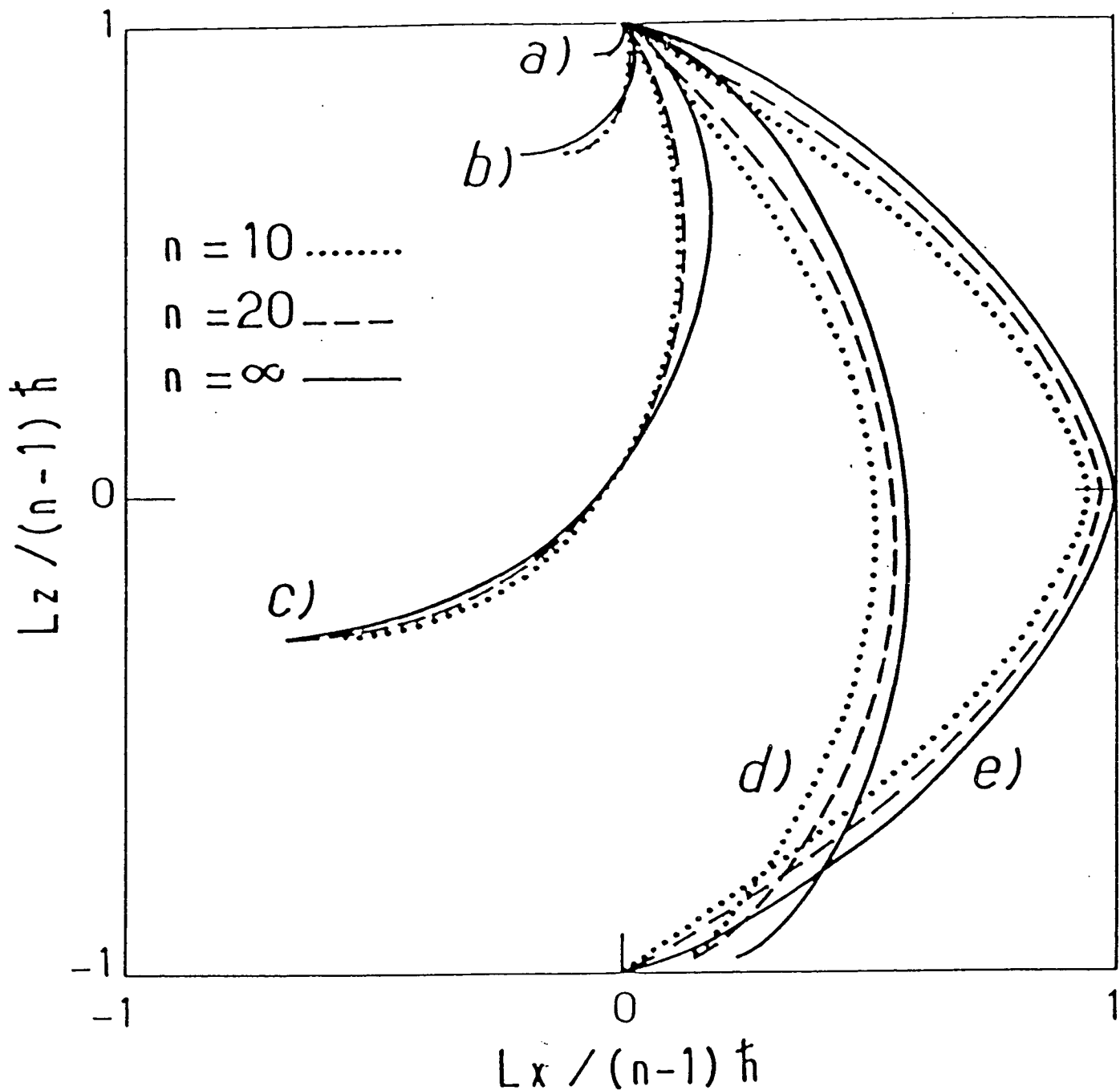


Fig. I-13 Evolution de  $L_x$  et  $L_z$ , lorsque les atomes initialement circulaires orientés suivant  $Oz$  ( $\vec{L} = (n-1)\hbar \vec{e}_z$ ), voient un champ électrique qui varie dans le temps de  $\vec{e}_z$  à  $-\vec{e}_z$  suivant l'équation (I.116)

En trait plein, évolution calculée classiquement suivant l'équation (I.111)

En trait pointillé (tirété), évolution calculée quantiquement  $n=10$  ( $n=20$ )

Les séries de courbes a), b), c), d) et e) correspondent à des champs électriques tels que le rapport entre la fréquence Stark, et la fréquence de variation de la direction du champ ( $\alpha$  et  $\beta$  de l'équation I.116) est respectivement de  $\alpha/\beta = 0,2, 0,4, 1,0, 2,0; 4,0$

Dans le cas où la direction de  $\vec{B}$  n'est pas fixe, on peut définir comme pour le champ électrique  $\vec{E}$ , suivant la vitesse de variation de la direction de  $\vec{B}$ , différents régimes d'évolution pour  $\vec{L}$  (ou  $\vec{A}$ ).

Si  $|d/dt \vec{\omega}_L| / |\vec{\omega}_L| \ll |\vec{\omega}_L|$ , la projection de  $\vec{L}$  (ou  $\vec{A}$ ) suivant la direction de  $\vec{B}$  reste constante. C'est le régime lent.

Si  $|d/dt \vec{\omega}_L| / |\vec{\omega}_L| \sim |\vec{\omega}_L|$ , la projection de  $\vec{L}$  (ou  $\vec{A}$ ) peut varier. C'est le régime intermédiaire.

Si  $|d/dt \vec{\omega}_L| / |\vec{\omega}_L| \gg |\vec{\omega}_L|$ ,  $\vec{L}$  (ou  $\vec{A}$ ) n'évolue pas notablement pendant le temps que met le champ  $\vec{B}$  pour tourner.

### I.5.3. Le problème de Coulomb en présence de champs électrique et magnétique croisés

En présence de champs électrique et magnétique, l'évolution du système atomique reste décrite par les équations (I.105). Nous nous intéressons ici uniquement au cas où les champs  $\vec{E}$  et  $\vec{B}$  sont

- de direction fixe
- orthogonaux entre eux,  $\vec{E} // Oz$ ,  $\vec{B} // Ox$  - variables en amplitude dans le temps.

L'équation du mouvement de l'électron est :

$$\frac{d}{dt} \vec{J}_{1,2} = \vec{\omega}_{1,2} \wedge \vec{J}_{1,2}$$

Si  $\vec{E}$  et  $\vec{B}$  varient en amplitude,  $\vec{\omega}_1$  et  $\vec{\omega}_2$  varient en direction. Suivant la vitesse de variation de cette direction, on est amené à faire une discussion similaire à celle faite au § 1.5.1. pour un champ électrique de direction variable dans le temps.

Comme  $\vec{\omega}_1$  et  $\vec{\omega}_2$  ont même module puisque  $\vec{\omega}_L$  et  $\vec{\omega}_S$  sont orthogonaux, nous poserons pour la suite  $\omega = |\vec{\omega}_1| = |\vec{\omega}_2|$ . On observe suivant la vitesse de variation de la direction de  $\vec{\omega}_1$  et  $\vec{\omega}_2$  les régimes d'évolution suivants :

(1)

$$\text{Si } \frac{\left| \frac{d}{dt} \vec{\omega}_{1,2} \right|}{\omega} \ll \omega,$$

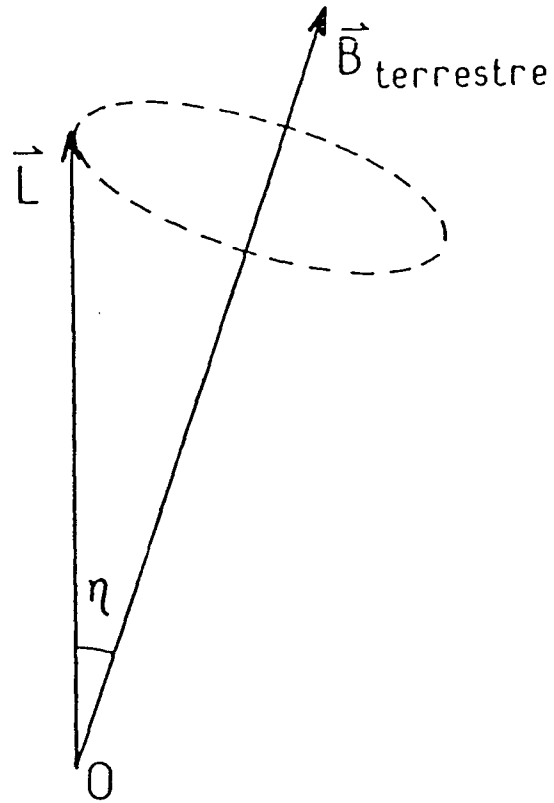


Fig. I-14 Precession de  $\vec{L}$  autour du champ terrestre.  
 $\vec{A}$  est toujours nul



la projection de  $\vec{J}_1$  (ou  $\vec{J}_2$ ) suivant la direction de  $\vec{\omega}_1$  (ou  $\vec{\omega}_2$ ) reste constante. C'est le régime lent (approximation adiabatique).

(2)

$$\text{Si } \left| \frac{d}{dt} \vec{\omega}_{1,2} \right| \sim \omega,$$

la projection de  $\vec{J}_1$  (ou  $\vec{J}_2$ ) peut varier. C'est le régime intermédiaire.

(3)

$$\text{Si } \left| \frac{d}{dt} \vec{\omega}_{1,2} \right| \gg \omega,$$

$\vec{J}_1$  (ou  $\vec{J}_2$ ) n'évolue pas pendant le temps met le vecteur  $\vec{\omega}_1$  (ou  $\vec{\omega}_2$ ) pour tourner. C'est le régime rapide (approximation soudaine).

En utilisant des combinaisons convenables de champs électrique et magnétique, il est possible de mettre en évidence des effets physiques intéressants, comme par exemple préparer un état circulaire à partir d'un état de faible moment angulaire.

Considérons que l'on part de l'état parabolique  $m=0$ ,  $n_1=0$ ,  $n_2=n-1$  et que le champ magnétique, qui est orienté suivant Ox ( $\vec{B} // \text{Ox}$ ), est initialement nul ( $\vec{B}(t=0)=0$ ), alors que le champ électrique, qui est orienté orthogonalement suivant Oz ( $\vec{E} // \text{Oz}$ ), ne l'est pas ( $\vec{E}(t=0) \neq 0$ ). L'énergie dipolaire électrique ( $\vec{E} \cdot \vec{D}$ ) est ici maximale, ce qui revient à dire que l'on a classiquement  $\vec{L}=0$ ,  $\vec{A}=(n-1)\hbar \vec{e}_z$ .

Si l'on fait varier  $\vec{E}$  et  $\vec{B}$  lentement dans le temps de manière à annuler  $\vec{E}$ , tout en donnant à  $\vec{B}$  une valeur non nulle:

$$\vec{E}(t=0) = E(0) \vec{e}_z \longrightarrow \vec{E}(t=\infty) = 0$$

$$\vec{B}(t=0) = 0 \longrightarrow \vec{B}(t=\infty) = B(\infty) \vec{e}_x$$

on prépare l'état  $\vec{L} = (n-1)\hbar \vec{e}_x$ ,  $\vec{A} = 0$  qui est l'analogie classique de l'état circulaire orienté dans la direction Ox:

Pour le vérifier, il suffit de remarquer qu'initialement  $\vec{J}_{1,2}$  et  $\vec{\omega}_{1,2}$

sont parallèles:

$$\left\{ \begin{array}{l} \vec{J}_1 = \frac{1}{2} \vec{A} \\ \vec{J}_2 = -\frac{1}{2} \vec{A} \\ \vec{\omega}_1 = \vec{\omega}_S \\ \vec{\omega}_2 = -\vec{\omega}_S \end{array} \right. \quad (\text{I.119})$$

et qu'ils restent alignés au cours de l'évolution ultérieure, car comme  $\vec{E}$  et  $\vec{B}$  varient lentement,  $\vec{\omega}_1$  et  $\vec{\omega}_2$  tournent lentement et l'approximation de régime lent est valide. On en déduit l'état final pour  $\vec{\omega}_1$  et  $\vec{\omega}_2$

$$\left\{ \begin{array}{l} \vec{\omega}_1(\infty) = \vec{\omega}_L \\ \vec{\omega}_2(\infty) = \vec{\omega}_L \end{array} \right. \quad (\text{I.120})$$

et pour  $\vec{J}_1$  et  $\vec{J}_2$

$$\left\{ \begin{array}{l} \vec{J}_1(\infty) = \frac{1}{2} \vec{L} = \frac{1}{2} \vec{L}_{\max} \\ \vec{J}_2(\infty) = \frac{1}{2} \vec{L} = \frac{1}{2} \vec{L}_{\max} \end{array} \right. \quad (\text{I.121})$$

L'effet que nous venons de présenter peut s'interpréter quantitativement de manière simple [20].

Rappelons que le spectre d'énergie en champ électrique seul ou en champ magnétique seul s'écrit au premier ordre comme (cf. (I.86) et (I.91)):

$$E_{\text{Stark}} = \frac{3}{2} n(n_1 - n_2) E_z \quad (\text{I.122})$$

$$E_{\text{Zeeman}} = \frac{1}{2} m B_x \quad (\text{I.123})$$

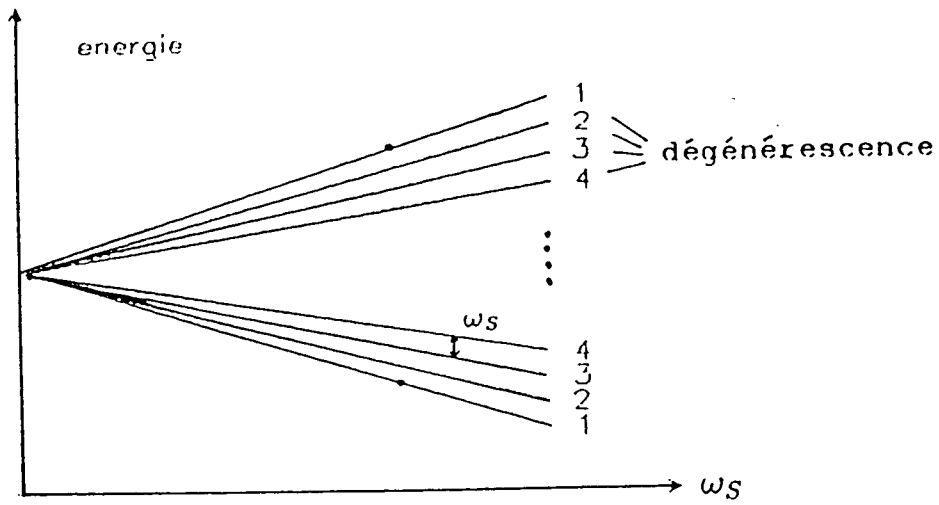


Fig. I-15a Spectre Stark

$$\omega_S = 3nE_z$$

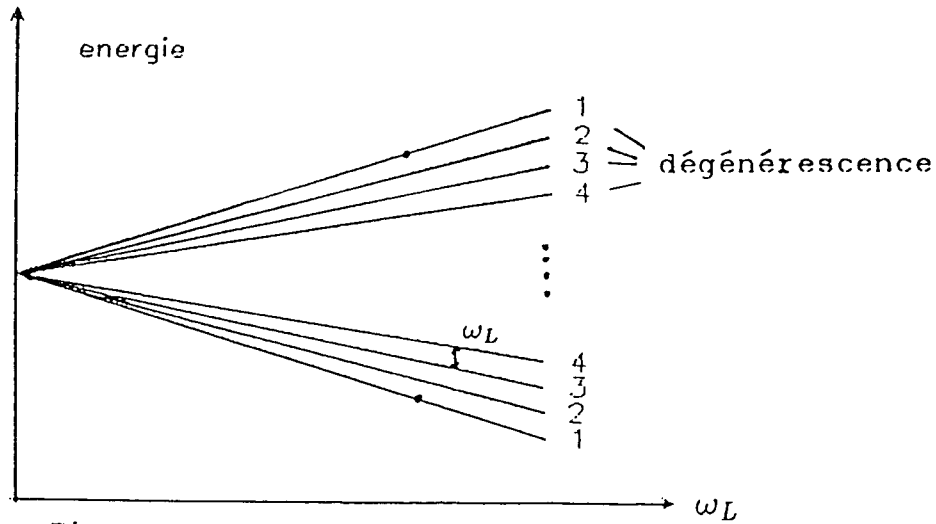


Fig. I-15b Spectre Zeeman

$$\omega_L = \frac{1}{2}B_x$$

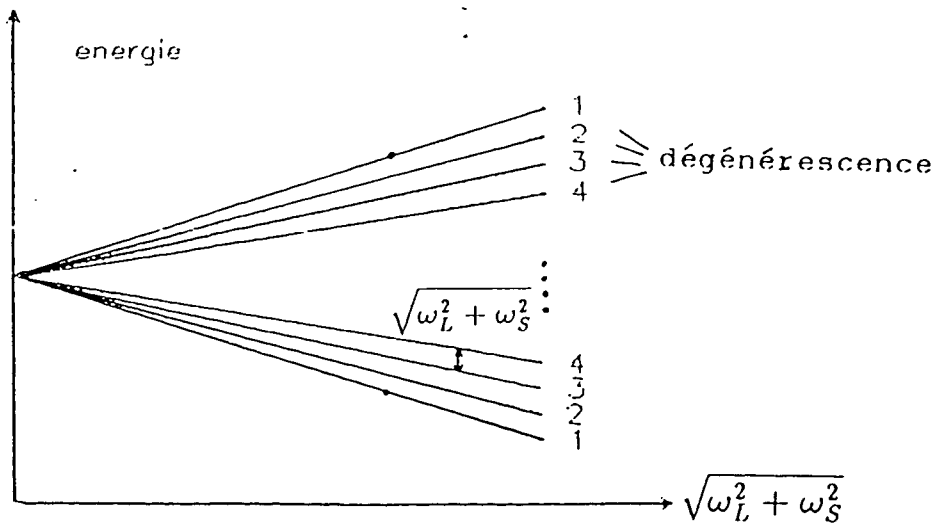


Fig. I-15c Spectre d'énergie en champs croisés

Le spectre d'énergie en champ électrique seul (I.122), appelé le spectre Stark, et celui en champ magnétique seul (I.123), appelé le spectre Zeeman, ont la même structure dans une multiplicité (voir fig. I-16a, b). Pour un niveau d'énergie donné, la dégénérescence est la même. L'écart entre 2 niveaux d'énergie consécutifs est égal à  $\omega_S = 3nE_Z$  dans la fig. I-16a et  $\omega_L = (1/2)B_X$  dans la fig. I-16b.

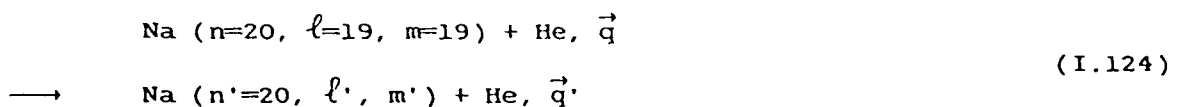
Il est facile de déduire [2] que dans le cas de champs croisés le spectre d'énergie ressemble à celui du spectre Stark ou Zeeman. La seule différence est l'écart entre 2 niveaux consécutifs égal à  $\sqrt{\omega_L^2 + \omega_S^2}$  (voir fig. I-16c).

Initialement, le système est préparé dans l'état de la multiplicité  $n$  d'énergie maximale (ou minimale) en présence d'un champ électrique seul (cf. fig. I-16a, le spectre Stark). C'est un état parabolique  $n_2=0$ ,  $m=0$  (ou  $n_1=0$ ,  $m=0$ ) correspondant à l'état classique  $\vec{L}=0$ ,  $|\vec{A}| = \text{maximum}$ . Au cours de l'évolution  $\vec{E}$  et  $\vec{B}$  dans le régime lent décrit précédemment, le système garde son énergie maximale (ou minimale), se trouve à la fin dans l'état  $m=n-1$  (ou  $m=-(n-1)$ ) (voir fig. I-16b). On a ainsi fait passer le système d'un état d'orbite classique très elliptique à un état d'orbite circulaire.

## I.6. COLLISION DES ATOMES CIRCULAIRES AVEC DES ATOMES DE GAZ RARE

Les atomes de Rydberg dans leurs états circulaires ont une fonction d'onde très anisotrope (voir fig. I-2). L'électron de valence a un mouvement quasi-bidimensionnel. Ce comportement anisotropique se manifeste non seulement dans les effets comme la photoionisation des atomes circulaires, mais aussi dans le processus collisionnel des atomes circulaires avec des atomes de gaz rare dans leur état fondamental.

Le processus collisionnel concernant les atomes circulaires est étudié théoriquement par Yoshizawa (1984) [36] et de Prunelé (1985) [37] avec la méthode de l'approximation d'impulsion. Le processus collisionnel est analysé numériquement pour le cas:



où  $\vec{q}(\vec{q}')$  est le vecteur de l'impulsion relatif initial (final) des deux partenaires de la collision.

Dans le cas où l'impulsion relative  $\vec{q}$  est parallèle à l'axe de quantification  $\vec{e}_z$ , il existe une règle de sélection qui interdit presque les transitions de  $(\ell'-m') = \text{impaire}$ . De plus, la section efficace avec  $|m'| < \ell'$  est au moins deux ordres de grandeur plus petite que celle avec  $|m'| = \ell'$ .

Ce phénomène s'explique de la manière suivante : la section efficace est proportionnelle au recouvrement de  $Y_m^\ell(\theta, \varphi)$  ( $\ell=m=n-1$ ) et  $Y_{m'}^{\ell'}(\theta, \varphi)$ . L'état circulaire a un ventre à  $\theta=\pi/2$ ; or d'autres états ont des noeuds à  $\theta=\pi/2$  pour  $\ell'-m'=\text{impaire}$  et un ventre relativement petit à  $\theta=\pi/2$  pour  $|\ell'-m'| = \text{pair}$ .

Considérons le cas où  $\vec{q}$  n'est pas parallèle à l'axe de quantification  $\vec{e}_z$  qui est l'axe de l'atome circulaire; on prend, dans ce cas-là, la direction de  $\vec{q}$  (différent de  $\vec{e}_z$ ) comme l'axe de quantification, l'état circulaire devient une superposition des états de  $|n, \ell=n-1, m\rangle$  ( $m=-(n-1), \dots, n-1$ ), un mélange de toutes les valeurs de  $m$  à  $\ell$  fixe. La règle de sélection (transitions interdites de  $|\ell'-m'|$  impaires) n'existe alors plus.

Tous ces résultats sont obtenus avec la méthode de l'approximation d'impulsion. Une étude expérimentale de ces effets sera bien un test crucial de la validité de cette méthode pour traiter les collisions entre atomes de Rydberg et atomes de gaz rare dans l'état fondamental.

## CHAPITRE II

II. EFFET STARK DES ATOMES DE RYDBERG DES ALCALINS DE FAIBLE MOMENT MAGNETIQUE  $|m\ell|$  [26]

Au contraire du chapitre précédent, nous allons nous intéresser dans ce chapitre à l'effet Stark des états de Rydberg des atomes alcalins de faible moment magnétique  $|m\ell|$  en présence d'un champ électrostatique (champ Stark). Ceci est important pour comprendre la dynamique de la préparation des atomes de Rydberg circulaires, parce que la préparation part d'un état de Rydberg de faible  $|m\ell|$  dans un champ Stark. Nous nous placerons dans la zone inter- $\ell$ -mixing où le hamiltonien du système atomique couple les états de même  $n$ , mais de  $\ell$  différents.

Si le champ Stark  $F$  est suffisamment petit, le déplacement Stark des niveaux de Rydberg de l'atome alcalin est proportionnel au carré de  $F$ , puis si  $F$  augmente, l'interaction Stark devient comparable à l'interaction avec le coeur atomique à l'origine du défaut quantique et le déplacement Stark devient linéaire, avec des niveaux écartés équidistants, comme dans l'hydrogène. Nous allons décrire dans ce chapitre un phénomène particulier de l'effet Stark linéaire des atomes de Rydberg alcalins: à la différence de l'effet Stark de l'atome d'hydrogène, les niveaux Stark de certaines valeurs de  $|m\ell|$  faible apparaissent comme quasi-dégénérés dans le régime linéaire.

Nous présentons sur la figure II-1a le spectre Stark de l'atome d'hydrogène dans un champ électrique fixé dont les énergies sont données par la formule (I.86). Il existe une dégénérescence entre les niveaux de valeurs de  $|m|$  pair (ou impair). Le spectre Stark de l'atome de sodium est présenté sur la figure II-1b. On remarque que les niveaux de  $|m| = 0, 1, 2$  sont quasi-dégénérés. En extrapolant aux autres alcalins, la quasi-dégénérescence existe pour les valeurs de  $|m\ell| \leq (\ell_{\text{coeur}} + 1)$  où  $\ell_{\text{coeur}}$  est le moment cinétique maximal des électrons du coeur atomique. ( $\ell_{\text{coeur}} = 0, 1, 2, 3, 4, 5$  pour Li, Na, K, Rb, Cs, Fr respectivement).

Ce phénomène s'explique bien par la diagonalisation numérique de l'hamiltonien Stark et aussi par un modèle approché simple.

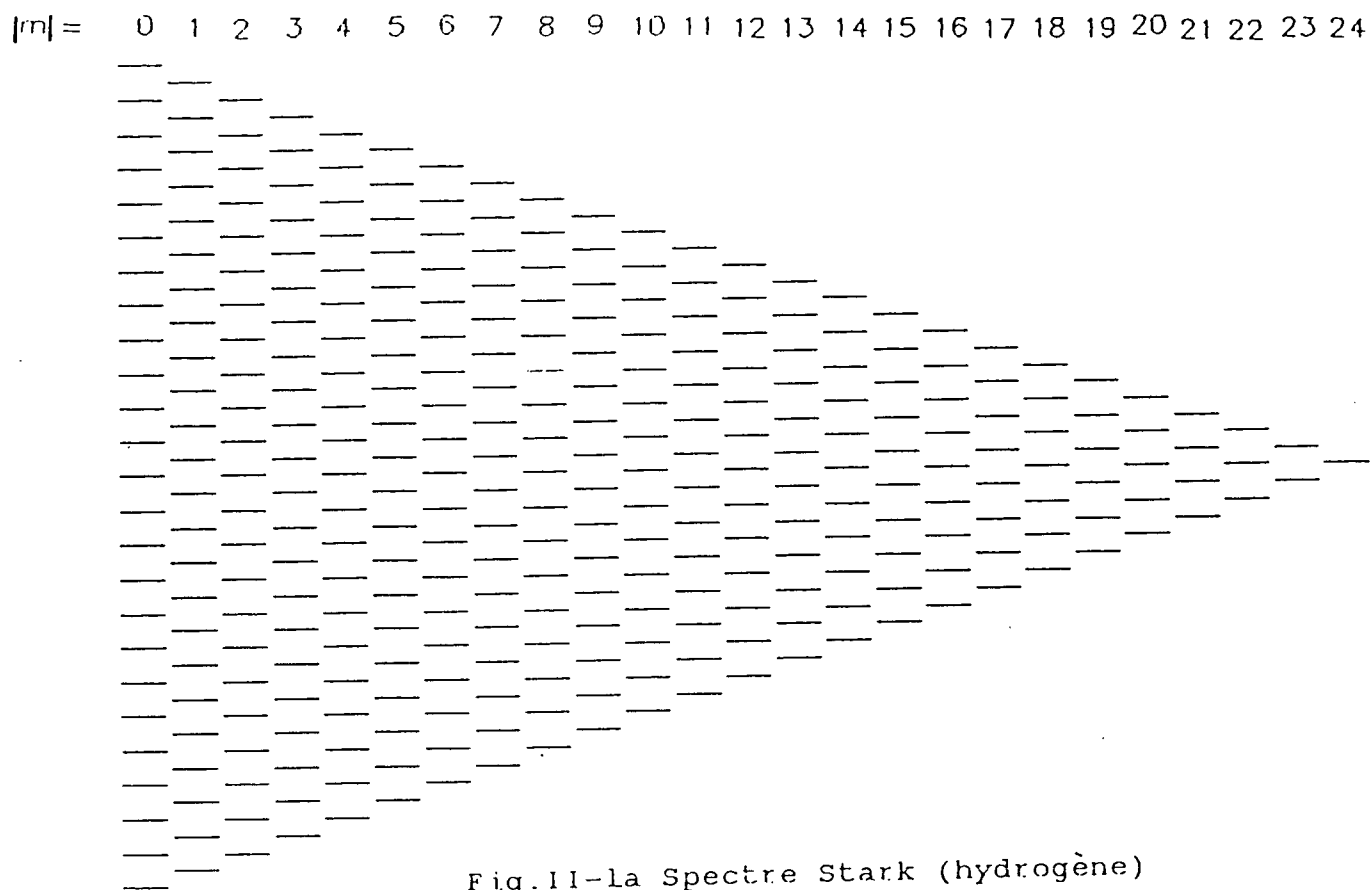
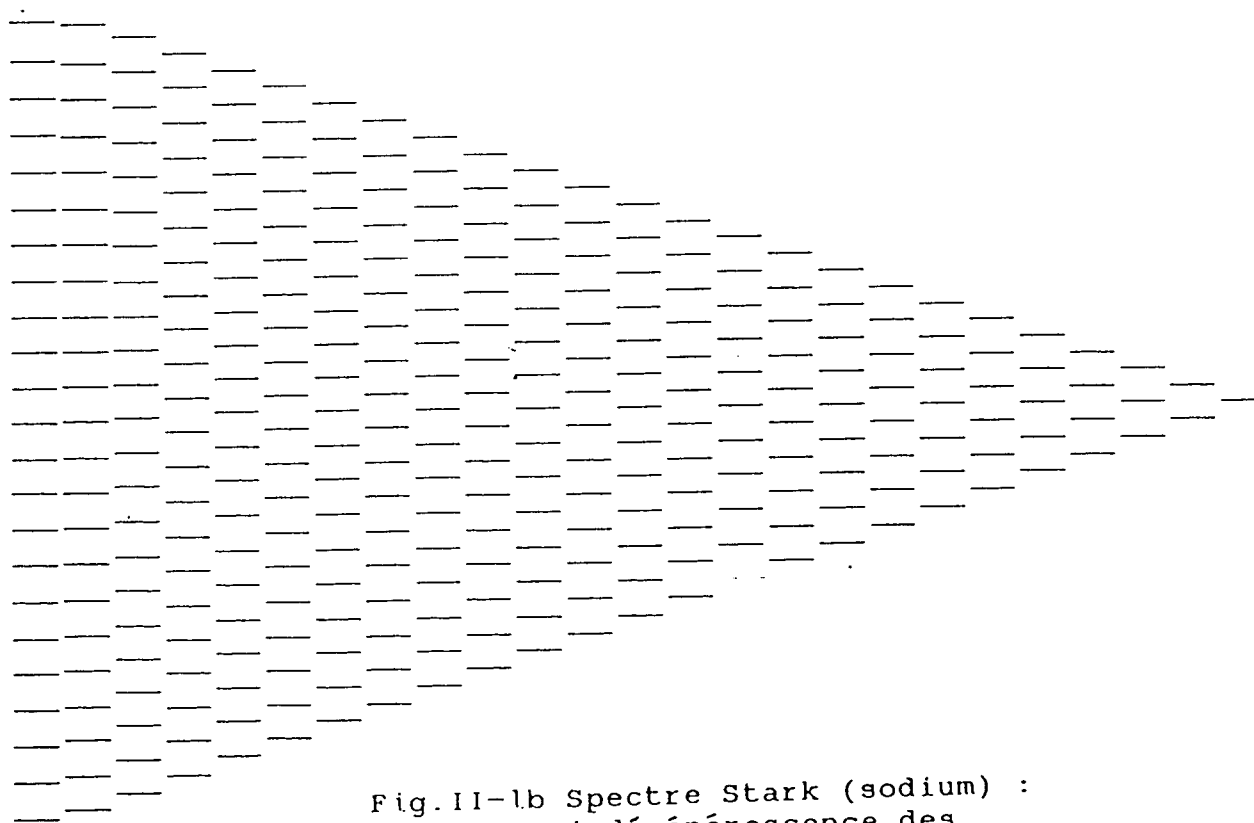


Fig.II-la Spectre Stark (hydrogène)

Fig.II-lb Spectre Stark (sodium) :  
quasi-dégénérescence des  
niveaux de  $|m|=0$ ,  $|m|=1$  et  $|m|=2$ 

— p

— s

### II.1. RESOLUTION NUMERIQUE

Il est possible de diagonaliser numériquement le hamiltonien Stark  $H_S$ :

$$H_S = H_0 - q F_z \quad (II.1)$$

pour obtenir des valeurs précises des énergies des niveaux de Rydberg dans un champ électrostatique, en prenant comme énergies propres de  $H_0$  les valeurs expérimentales des énergies atomiques non perturbées [27]. En particulier, ces calculs rendent compte de la dégénérescence entre les sous-niveaux de faible valeur de  $|m|$  : dans notre régime de champ faible, il suffit de diagonaliser le hamiltonien Stark  $H_S$  dans le sous-espace vectoriel sous-tendu par les niveaux voisins  $(n+1)S$ ,  $(n+1)P$  et  $n\ell$  avec  $\ell=2, \dots, n-1$  (dans le cas du sodium) pour obtenir des énergies en accord avec les données des spectres optiques (cf. chapitre IV). On peut raffiner la méthode en tenant compte de l'influence des multiplicités voisines  $(n+1)$  et  $(n-1)$  d'une manière perturbative, grâce à une approche de type hamiltonien effectif [28].

Cependant une telle approche, précieuse pour prédire précisément toutes les fréquences de transition entre niveaux atomiques, ne permet pas d'expliquer une caractéristique précise du spectre, comme la quasi-dégénérescence des sous-niveaux  $|m|$  et son caractère "universel". Dans le paragraphe suivant, nous présentons une approche analytique simple du même problème qui, elle, ne peut pas donner avec une aussi grande précision les positions des niveaux d'énergie, mais permet en revanche de comprendre l'origine d'un tel phénomène.

### II.2. MODELE APPROCHE SIMPLE

Dans la gamme des champs électriques à laquelle nous nous intéressons, les déplacements Stark sont suffisamment grands pour que tous les niveaux  $|n\ell m\rangle$  avec  $n$  fixé et  $\ell \geq 2$  soient mélangés par l'interaction Stark, mais suffisamment petits pour que les niveaux S et P restent loin de l'"éventail" des autres niveaux Stark équidistants. En d'autres termes, pour les niveaux S et P, l'interaction Stark est plus faible que la perturbation due au coeur; pour les autres niveaux de  $\ell \geq 2$ , c'est l'inverse qui est vrai.



Dans une approche perturbative à l'ordre le plus bas, on obtient les niveaux d'énergie en diagonalisant le hamiltonien Stark de l'équation (II.1) dans le sous-espace  $\xi'_m$  sous-tendu par la base hydrogénoïde "tronquée"  $\{ |n\ell m\rangle, n, m \text{ fixés } \ell \geq 2 \}$ . Ce sous-espace, quand  $m = 0, 1$ , n'est pas un sous-espace de la représentation irréductible du groupe de symétrie  $O(4)$ , puisqu'il exclut les niveaux  $|\ell=0, m=0\rangle$  et  $|\ell=1, m=0\rangle$  pour  $\xi'_0$ , et  $|\ell=1, m=1\rangle$  pour  $\xi'_1$ . Les résultats bien connus sur l'effet Stark de l'atome d'hydrogène, qui résultent de simples arguments basés sur la symétrie  $O(4)$  ne sont donc pas valables dans notre cas. Il semble donc surprenant au premier abord que les niveaux Stark observés expérimentalement pour les faibles valeurs de  $|m|$  soient équidistants, ressemblant tout de même aux niveaux Stark de l'hydrogène et pas des autres atomes.

Nous pouvons comprendre ce résultat en faisant la remarque suivante:  $\xi'_m$  ne diffère de l'espace complet  $\xi_m$  (sous-tendu par les vecteurs  $|n\ell m\rangle, n, m \text{ fixés}, \ell = 0, 1, \dots, n-1$ ) que par un très faible nombre d'états de base. Si  $n$  est grand, les caractéristiques de l'espace ne sont que peu modifiées lorsqu'on passe de  $\xi_m$  à  $\xi'_m$ . Cet argument peut être rendu plus quantitatif: en effet, il est facile de diagonaliser un hamiltonien  $H_S$  dans le sous-espace complet  $\xi_m$ . On montre dans l'appendice I que les énergies propres  $E$  de  $H_S$  dans  $\xi'_m$  sont solutions de l'équation suivante:

$$\det \left[ Q (E - H_S)^{-1} Q \right] = 0 \quad (\text{II.2})$$

où  $Q$  est l'opérateur de projection sur l'espace complémentaire de  $\xi'_m$  dans  $\xi_m$ , c'est-à-dire sur les états exclus de l'espace  $\xi'_m$  (les états  $S$  et  $P$  dans notre problème). L'équation (II.2) est particulièrement simple quand le nombre des états exclus est faible, ce qui est bien notre cas.

Commençons par résoudre l'équation (II.2) pour  $m = 1$ . Dans ce cas, il n'y a qu'un état  $|n\ell = 1, m = 1\rangle$  noté  $|nP1\rangle$  qui est exclu de l'espace de diagonalisation. L'équation (II.2) devient alors:

$$\langle nP1 | \frac{1}{E - H_S} | nP1 \rangle = 0 \quad (\text{II.3})$$

On introduit alors la relation de fermeture sur les états Stark  $|nk, m=1\rangle$  dans le sous-espace  $(n, m=1)$ . L'équation (II.3) devient alors:

$$\sum_{k_1=-(n-2)}^{n-2} \frac{|\langle n k_1 1 | n P 1 \rangle|^2}{E' - k_1} = 0 \quad (\text{II.4})$$

(le symbole  $\Sigma'$  signifie que  $k_1$  varie par sauts de 2 unités).  $E'$  est un paramètre sans dimension proportionnel à l'énergie, plus précisément:

$$E' = \left[ E/Ry + \frac{1}{n^2} \right] \frac{F_0}{3n} \quad (\text{II.5})$$

Pour les niveaux Stark hydrogénoïdes non perturbés, nous avons, d'après l'équation (I.86) (jusqu'au premier ordre) :

$$E' = k$$

Le produit scalaire entre un état "sphérique"  $|n\ell m\rangle$  et un état "parabolique"  $|nk m\rangle$  est donné par un coefficient de Clebsch-Gordan [30]:

$$\langle n\ell m | nk m \rangle = \langle \frac{1}{2}(n-1), \frac{1}{2}(n-1), \frac{1}{2}(m-k), \frac{1}{2}(m+k) | km \rangle \quad (\text{II.6})$$

Pour  $\ell=0$  et  $\ell=1$ , cette expression devient [30] :

$$\left\{ \begin{array}{l} \langle n P 1 | n k 1 \rangle = (-1)^{(n-k)/2} \left[ 3(n^2 - k^2)/2n(n^2 - 1) \right]^{1/2} \\ \langle n P 0 | n k 0 \rangle = (-1)^{(n-k+1)/2} k \left[ 3/n(n^2 - 1) \right]^{1/2} \\ \langle n S 0 | n k 0 \rangle = (-1)^{(n-k-1)/2} n^{-1/2} \end{array} \right. \quad (\text{II.7})$$

A partir des équations (II.4) et (II.7), un calcul simple (utilisant le fait que:  $E'1 = n-1$  et  $E'k_1 = 0$ ) donne l'équation suivante pour  $E'$ :

$$\sum_{k_1=-(n-2)}^{n-2} \frac{1}{E' - k_1} = - \frac{(n-1)E'}{n^2 - E'^2} \quad (\text{II.8})$$

Les solutions de cette équation peuvent être graphiquement déterminées à partir de l'intersection des courbes  $f_1(E')$  et  $g(E')$  correspondant respectivement aux premier et second membres de l'équation (II.8), et que l'on montre sur la figure (II.2a) dans le cas  $n \gg 1$  (avec  $n$  impair).  $f_1(E')$  a des singularités qui correspondent aux énergies Stark hydrogénoïdes non perturbées  $E' = k_1$ ;  $g(E')$ , loin de ses asymptotes, peut être approché par  $-E'/n$ . Si nous nous intéressons essentiellement au centre du spectre ( $|E'| < n/2$ ),  $g(E')$  est proche de 0 et  $f_1(E')$  peut être assimilé à:

$$f_1(E') = \sum_{-\infty}^{+\infty} \frac{1}{E' - k_1} = \frac{\pi}{2} \cotg \left[ \frac{\pi E'}{2} + \frac{n\pi}{2} \right] \quad (\text{II.9})$$

Les courbes  $f_1$  et  $g$  se coupent très près de l'axe  $E'$ , soit  $f_1(E') \approx 0$ . On obtient les points d'intersection proches des milieux  $A_k$  des intervalles entre deux asymptotes, c'est-à-dire deux énergies Stark consécutives  $|m| = 1$ : L'"exclusion" de l'état P de l'espace à l'intérieur duquel nous cherchons les vecteurs propres entraîne un déplacement général des énergies vers le milieu  $A_k$  des intervalles énergétiques non perturbés, et nous obtenons bien ainsi de nouveau un spectre de niveaux équidistants. En outre, les points  $A_k$  se trouvent coïncider avec la position des niveaux Stark  $|m| = 2$ . Notre simple modèle explique donc la quasi dégénérescence entre les niveaux  $|m| = 1$  et  $|m| = 2$  observée dans les spectres microonde. Ce résultat est indépendant de la position exacte du niveau P, il est vrai tant que le niveau P reste loin de la multiplicité  $l \geq 2$ .

Considérons maintenant le cas  $m = 0$ . Il nous faut alors exclure deux états de la base Stark, les états  $|nS0\rangle$  et  $|nP0\rangle$ , et l'équation (II.2) devient:

$$\langle nS0 | (E - H_S)^{-1} | nS0 \rangle \langle nP0 | (E - H_S)^{-1} | nP0 \rangle - |\langle nS0 | (E - H_S)^{-1} | nP0 \rangle|^2 = 0 \quad (\text{II.10})$$

qui, en tenant compte de (II.7) et en utilisant le paramètre sans dimension  $E'$ , peut se mettre sous la forme:

$$\left[ \sum'' \frac{1}{E' - k_0} \right] \left[ \sum'' \frac{k^2}{E' - k_0} \right] - \left[ \sum'' \frac{k}{E' - k_0} \right]^2 = 0 \quad (\text{II.11})$$

la somme sur  $k_0$  notée  $\Sigma''$  s'étendant de  $-(n-1)$  à  $(n-1)$  par pas de deux unités. Comme  $\Sigma'' k_0 = 0$ , on peut voir facilement que:

$$\sum'' \frac{k^2}{E' - k_0} = E' \cdot \sum'' \frac{k_0}{E' - k_0}.$$

Le premier membre de l'équation (II.11) se factorise alors, et on obtient l'équation:

$$\sum'' \frac{k_0}{E' - k_0} = 0 \quad (\text{II.12})$$

qui peut aussi s'écrire :

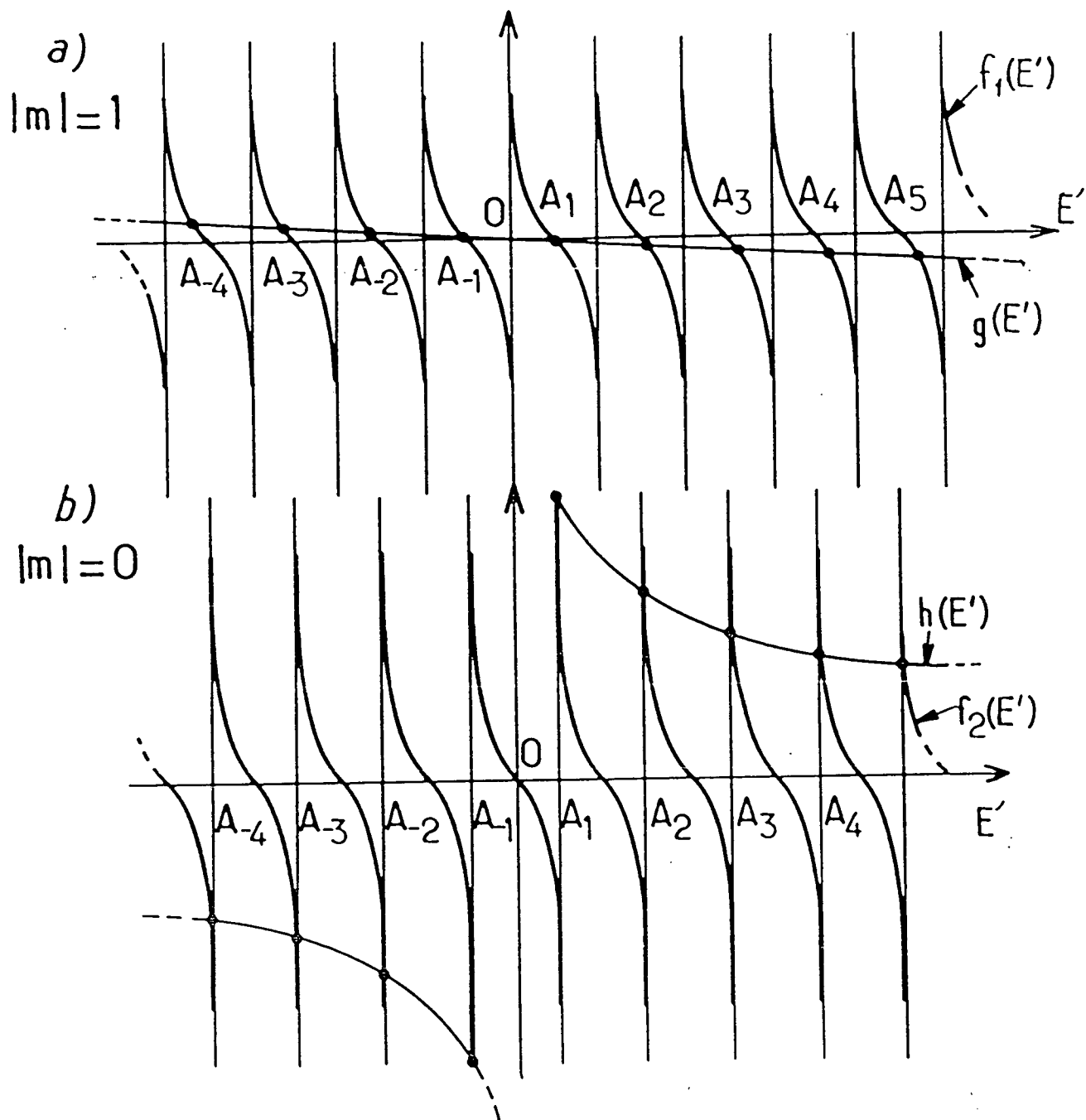
$$\sum'' \frac{1}{E' - k_0} = \frac{n}{E'} \quad (\text{II.13})$$

Soit  $f_2(E')$  et  $k(E')$  respectivement les premier et deuxième membres de l'équation (II.13).  $f_2$  est similaire à  $f_1$  (somme d'hyperboles) mais décalée: les singularités sont maintenant situées en  $E' = k_0 = k_1 - 1$ , qui sont les abscisses des points  $A_k$  de la figure II-2a et correspondent aux énergies Stark  $m=0$  non perturbées. La figure II-2b donne les courbes représentatives de  $f_2$  et  $h$  en fonction de  $E'$ , dont les intersections donnent les valeurs de  $E'$  solutions de l'équation (II.13). Dans le centre du spectre  $E' \approx 0$ ,  $h(E')$  est grand: les intersections cherchées se trouvent proches des asymptotes verticales de la fonction  $f_2$ , c'est-à-dire peu différentes des énergies non perturbées. Ainsi donc, l'exclusion simultanée des états  $|nS0\rangle$  et  $|nP0\rangle$  ne modifie que très légèrement les énergies au centre du spectre, à la différence du cas  $|m|=0$ . Les niveaux  $m=0$  sont alors quasi-dégénérés avec les niveaux  $|m|=1$  décalés et avec les niveaux  $|m|=2$  non déplacés. On peut se faire une image grossière de ce phénomène en disant qu'en excluant deux états de la base Stark, on a décalé les énergies deux fois de la moitié d'un intervalle non perturbé, et qu'on retrouve donc le spectre initial.

Notre méthode donne aussi une expression approchée pour les valeurs de  $E'$  solution de (II.8) et (II.13) sous la forme d'un développement en puissances de  $1/n$ . Il faut utiliser pour cela l'expression approchée (II.9) pour  $f_1$ , et une expression similaire pour  $f_2$  valable au centre du spectre:

$$f_2(E') \approx \sum_{-\infty}^{+\infty} \frac{1}{E' - k_0} = \frac{\pi}{2} \operatorname{tg} \left[ \frac{\pi E'}{2} + \frac{n\pi}{2} \right] \quad (\text{II.14})$$

et développer cette fonction au voisinage des points  $A_k$  (soit  $E' \approx k_0$ ,  $k_0$  étant pair si  $n$  est pair, impair si  $n$  est impair). On obtient:



$$E' \approx k_0 \left[ 1 + \frac{4}{\pi^2 n} \right] \quad \text{pour } |m| = 1 \quad (\text{II.15})$$

$$E' \approx k_0 \left[ 1 + \frac{1}{n} \right] \quad \text{pour } m = 0 \quad (\text{II.16})$$

Si on revient à des unités plus physiques, on arrive à un écart énergétique égal à  $0,8k_0$  (MHz/(V/cm)) entre les niveaux  $|m| = 2$  et  $|m| = 1$ , et égal à  $1,1k_0$  MHz/(V/cm) entre les niveaux  $|m| = 1$  et  $m = 0$ . Ces écarts dépendent seulement de  $k_0$  et pas de  $n$  à cet ordre d'approximation. Pour un champ de quelques V/cm, cela donne un écart inférieur à la largeur expérimentale, c'est-à-dire inobservable; cela donne aussi le bon ordre de grandeur des levées de dégénérescence observées dans les spectres optiques et microonde lorsqu'on augmente le champ électrostatique (cf. chapitre IV).

## Partie expérimentale

## CHAPITRE III

PREPARATION D'UN ETAT DE RYDBERG DE FAIBLE  
MOMENT ANGULAIRE

La première étape d'une étude expérimentale d'un état de Rydberg est sa préparation. Nous allons présenter dans ce chapitre l'excitation optique en échelons d'un état de Rydberg par laser continu et par laser pulsé. Les lasers pulsés ont une grande puissance crête, une gamme très large de longueurs d'ondes accessibles à accorder, mais ont malheureusement une faible résolution spectrale par rapport aux lasers continus. Pour les expériences de spectroscopie optique de haute résolution, il faut avoir des lasers de faible largeur spectrale.

III.1. PREPARATION DES ATOMES DE RYDBERG DU SODIUM PAR LASER CONTINUIII.1.1. Excitation

Le schéma expérimental et le schéma d'excitation sont respectivement présentés sur la figure III-1 et la figure III-2.

Nous utilisons un jet thermique d'atomes de sodium en chauffant le four à 300°C [±]. Les lasers 1, 2, 3 résonnent successivement avec les transitions  $3S \rightarrow 3P$ ,  $3P \rightarrow 3D$ ,  $3D \rightarrow n\ell$ . Le laser 1 est un laser continu à colorant (rhodamine 6G) fonctionnant en multimode, dont le faisceau est envoyé colinéairement au jet afin de couvrir la plus grande partie possible de la largeur Doppler de la transition  $3S \rightarrow 3P$ . Les lasers 2 et 3 sont deux diodes lasers fonctionnant en régime monomode. Leurs faisceaux sont perpendiculaires au jet. Ils excitent donc toutes les classes de vitesses. Les diodes lasers sont décrites en détail dans le prochain paragraphe. La méthode de mise à résonance des 3 échelons est décrite dans le paragraphe III.1.3.



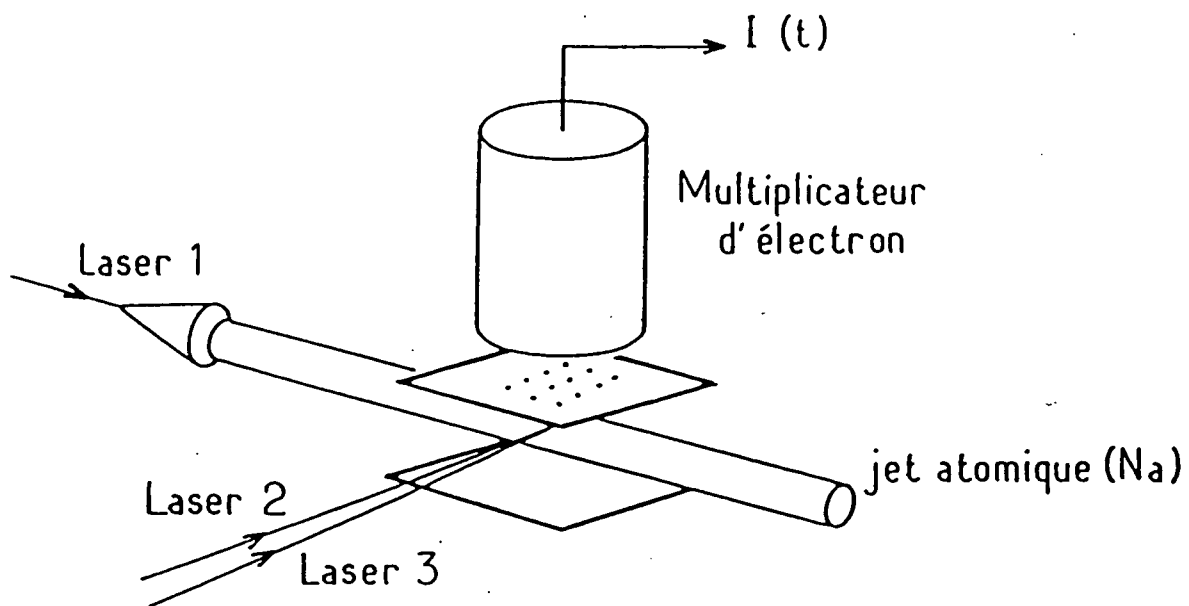


Fig.III-1 Schéma expérimental (Na)

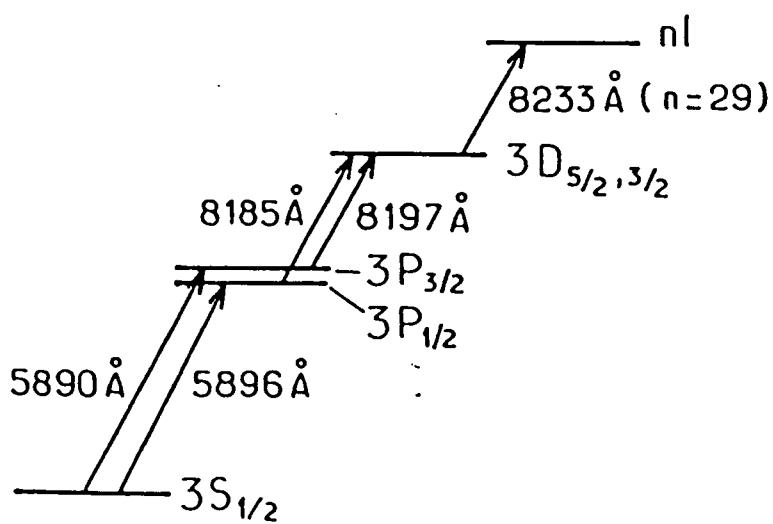


Fig.III-2 Schéma d'excitation (Na)

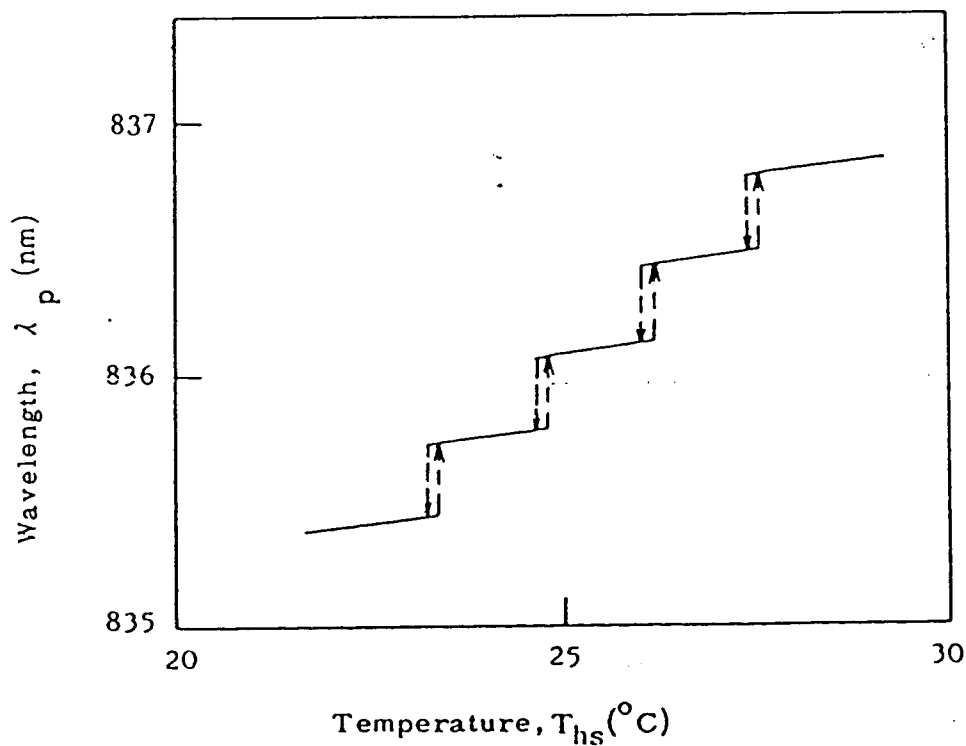
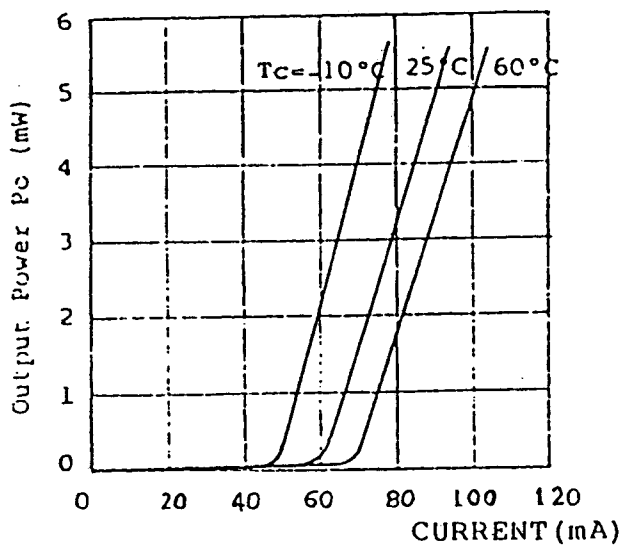
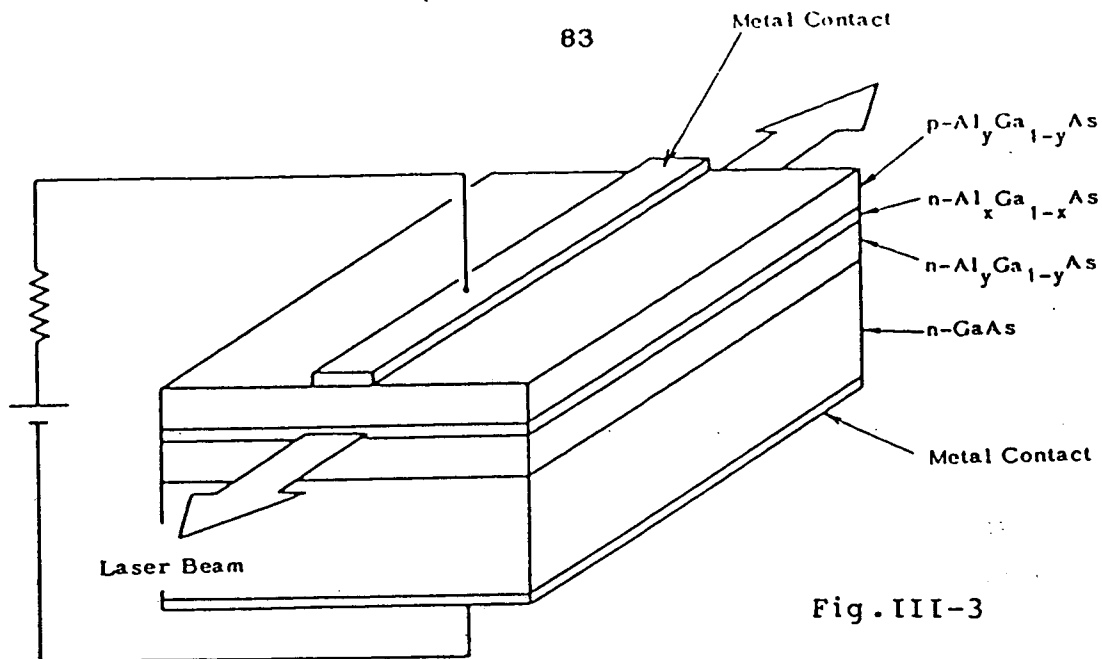
### III.1.2. Diodes lasers

#### Description générale

Les diodes lasers que nous avons employées (Hitachi HLP 1400) utilisent comme milieu actif une structure formée de différentes couches de semiconducteurs GaAs et GaAlAs (double hétérostructure: voir fig. III-3). L'injection d'un courant provoque une émission de lumière infrarouge ( $\lambda \sim 0,8\mu$ ) confinée dans la couche médiane de GaAs (GaAlAs a un indice inférieur à GaAs: la couche centrale se comporte donc comme un guide d'onde d'épaisseur  $0,1\mu\text{m}$  environ et d'une largeur de quelques dizaines de  $\mu\text{m}$ ). Les faces extrêmes du cristal de longueur  $300\mu\text{m}$  sont polies et forment les miroirs de la cavité laser. L'une est traitée de façon à avoir un fort coefficient de réflexion, l'autre est non traitée (coefficient de transmission  $T \approx 30\%$ ). Comme le montre la courbe de la figure III-4, on obtient un effet laser au-dessus d'un courant seuil de l'ordre de  $60\text{mA}$  à température ambiante, et une puissance de sortie de quelques mW pour des courants de l'ordre de  $100\text{mA}$ . Le faisceau de sortie est fortement divergent, à cause des faibles dimensions du milieu actif.

A cause de la faible longueur de la cavité, les modes longitudinaux sont très espacés ( $\Delta\lambda \sim 3,4\text{\AA}$  autour de  $850\text{nm}$ ). La diode lase généralement sur un ou deux modes, dont la fréquence est déterminée par la température de la diode et le courant d'injection. La figure III-5 donne, à titre d'exemple, les longueurs d'ondes émises par une diode laser pour un courant donné en fonction de la température.

On constate l'existence de plages de fonctionnement monomode, sur lesquelles on peut faire varier continûment la longueur d'onde en fonction de la température (au taux approximatif de  $2,5\text{\AA}/^\circ\text{C}$ ) séparées par des zones de fonctionnement bimode, ou monomode avec hystérésis. Il en résulte que seulement quelques fenêtres de longueur d'onde peuvent être balayées par une variation de température. Lorsqu'on fait en outre varier le courant, ces fenêtres se déplacent, mais généralement l'ensemble du spectre compris entre deux longueurs d'onde données n'est pas couvert par une diode laser donnée. Pour obtenir une couverture totale du spectre, il faut soit disposer de plusieurs diodes lasers (dont les fenêtres de fonctionnement sont décalées les unes par rapport aux autres), soit utiliser la diode laser (avec des traitements antireflet aux deux extrémités) dans une cavité extérieure [41][42].



Cet inconvénient des diodes lasers ne nous gêne pas pour nos expériences, car une diode laser donnée permet d'exciter un nombre suffisamment important de niveaux de Rydberg, même si elle ne permet pas de les exciter tous.

Les diodes lasers présentent un certain nombre d'avantages : facilité de manipulation (pas d'alignement optique, simplicité de l'alimentation électrique), et néanmoins caractéristiques d'émissions intéressantes (quelques mW accordables en fréquence sur une largeur de quelques dizaines de MHz), faible coût. Elles ont aussi des inconvénients: leur puissance limitée (mais les progrès de la technologie sont rapides dans ce domaine), leur fragilité (vis-à-vis des variations brutales de l'alimentation, mêmes très brèves, des tensions électrostatiques, des pollutions de la face de sortie), ainsi que les problèmes de saut de mode exposés plus haut. En résumé, les diodes lasers s'avèrent être des sources lumineuses pratiques, dans le rouge et le proche IR, concurrentes des lasers à colorant, pour un bon nombre d'applications en physique atomique et moléculaire.

#### Dispositif expérimental

Il comprend (voir fig. III-6) :

- un support de diode laser
- une alimentation de courant
- une régulation de température

La diode laser est fixée sur un support en cuivre de faible masse, dont la température est mesurée par une thermistance, posée sur un dispositif à effet Peltier chargé de chauffer ou refroidir le système, selon le point de fonctionnement choisi. L'ensemble est posé sur un bloc de cuivre jouant le rôle de thermostat. Une lentille asphérique de courte focale (23mm) et de grande ouverture permet d'obtenir un faisceau parallèle. Un boîtier étanche protège l'ensemble des pollutions extérieures. Toutes les faces optiques traversées par le faisceau sont traitées antireflet, car la stabilité du fonctionnement monomode est fortement affectée par la moindre lumière réfléchie sur la diode. Pour la même raison, un diaphragme extérieur écrante toutes les lumières externes.

L'alimentation en courant (100mA sous quelques volts) est assurée par une simple batterie au plomb 6v filtrée par un filtre passe bas (on s'affranchit ainsi des variations intempestives du secteur) et bien isolée des parasites extérieurs, munie d'un système potentiométrique et d'un limiteur

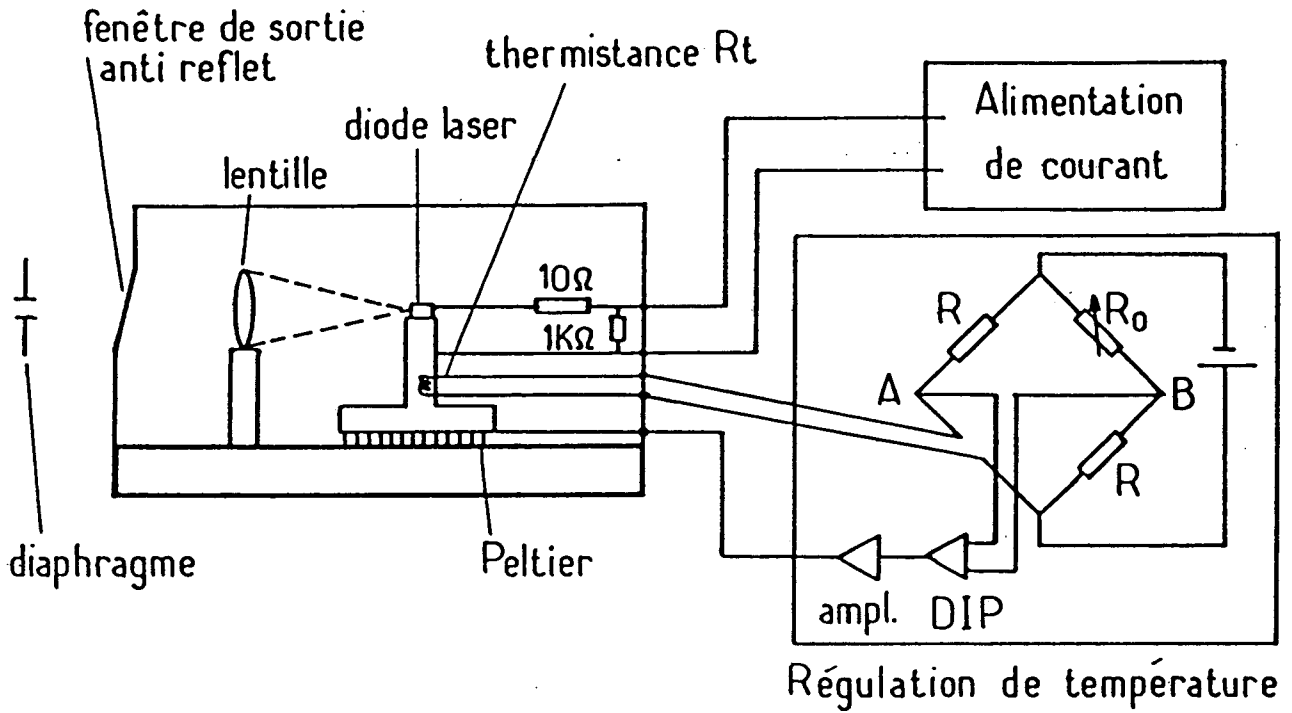


Fig.III-6 Dispositif à diode laser

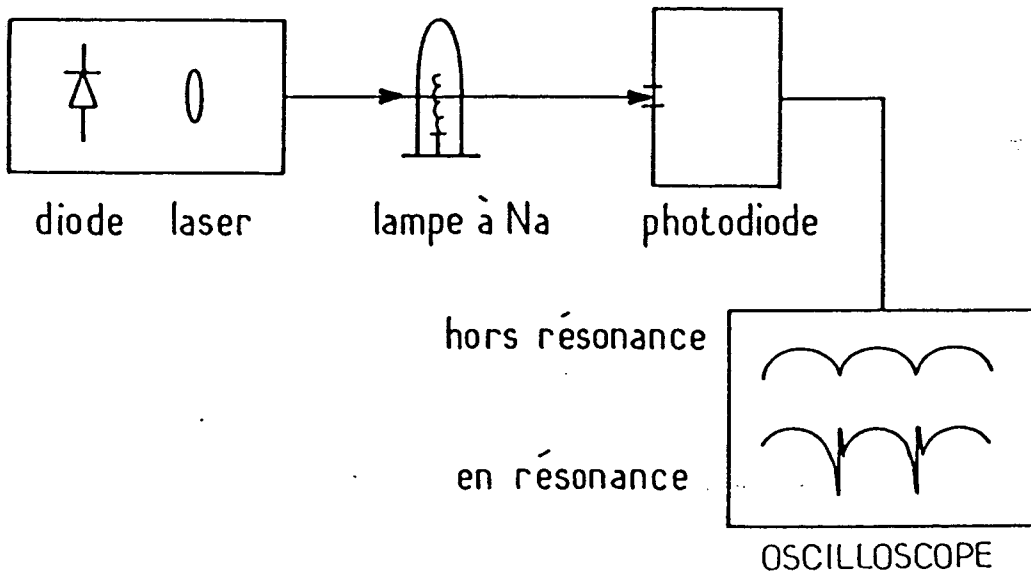


Fig.III-7

de courant. On dispose une résistance de  $1k\Omega$  aux bornes de la diode laser pour éviter que des tensions électrostatiques ne s'accumulent entre anode et cathode lorsque la diode n'est pas reliée à son alimentation. Enfin, on peut faire varier finement le courant d'injection en appliquant sur la diode laser, à travers une résistance de  $5k\Omega$ , une tension variable extérieure de quelques volts, qui peut être éventuellement pilotée par ordinateur grâce à un convertisseur analogique-digital. On obtient ainsi une variation de la fréquence d'émission de faible amplitude et très bien reproductible (de l'ordre de  $1,9\text{GHz}/\text{mA}$  dans notre dispositif).

La régulation de température est assurée par le dispositif de la figure III-6. On compare dans un pont de Wheatstone la résistance de la thermistance  $R_t$  proche de la diode laser avec une résistance de référence  $R_0$  ayant un coefficient de température extrêmement faible. La tension aux bornes A et B du pont constitue le signal d'erreur de la boucle d'asservissement qui est ensuite traitée par un système proportionnel-différentiel-intégral (DIP) dont le gain et les fréquences de coupure sont ajustables. La sortie est envoyée sur la fonction Peltier par l'intermédiaire d'un ampli de puissance. On obtient une stabilité de l'ordre de  $0,001^\circ\text{C}$  au niveau de la diode (estimée par le jitter de fréquence résiduelle de la diode laser) avec une très bonne stabilité à long terme. On fait varier le point de fonctionnement, donc la température en faisant varier la résistance de référence  $R_0$ .

### III.1.3. Mise à résonance des lasers

#### 1) Premier échelon $3S \rightarrow 3P$

Comme cette transition est dans le domaine visible, la résonance s'obtient facilement en observant la fluorescence le long du jet atomique.

#### 2) Deuxième échelon $3P \rightarrow 3D$

Cette transition est réalisée par une diode laser IR. Nous utilisons le montage de la figure III-7 pour accorder la diode laser sur la transition  $3P \rightarrow 3D$ . Le faisceau de la diode laser est envoyé sur une lampe à sodium chauffée. Il traverse la lampe et est détecté sur une photodiode. Le signal de la photodiode est envoyé dans un oscilloscope. Quand la diode laser est hors résonance, on a un signal variant périodiquement dans le temps à la fréquence double du secteur. Lorsque la diode laser est accordée à résonance en réglant la résistance et le courant d'injection, on a un signal de dispersion se superposant au signal hors résonance au noeud d'une

périodicité (voir fig. III-7). Ce signal s'interprète de la manière suivante: le chauffage périodique du filament crée une différence de population entre 3P et 3D. Au moment où la lampe vient d'être éteinte ou éclairée, il y a de l'absorption ou de l'amplification périodique d'un faisceau résonnant sur la transition 3P → 3D qui donne justement le signal de résonance (fig. III-7) de forme dispersive.

### 3) Troisième échelon 3D → nℓ

La résonance de cet échelon s'obtient avec le signal d'ionisation des états de Rydberg  $|n\ell\rangle$  qui sera décrit dans la détection des états de Rydberg (§ III. 1. 4).

#### III. 1. 4. Détection

Nous utilisons la technique de l'ionisation par champ électrostatique [32][43] pour détecter les états de Rydberg. Une tension électrique est appliquée entre deux plaques en cuivre parallèles formant condensateur. Ceci crée un champ électrostatique qui sert à ioniser des atomes de Rydberg. La plaque du côté du multiplicateur d'électrons est percée de petits trous permettant le passage des électrons et leur détection par un multiplicateur d'électrons.

Le calcul classique montre que les atomes de Rydberg dans un état  $|n,\ell\rangle$  s'ionisent dans un champ électrostatique  $F(n,\ell) \approx 3 \cdot 10^8/n^4 \text{V/cm}$ . Pour détecter sélectivement des atomes de Rydberg de différentes valeurs de  $n$ , on applique entre les 2 plaques du condensateur de détection une tension électrique pulsée. Comme les atomes de sodium sont excités en permanence par les lasers continus, on a intérêt à les détecter avec un taux de répétition du pulse de champ correspondant au temps de vol sous les trous de la plaque (la distance 1,5 cm correspond au temps de vol  $\tau=15\mu\text{s}$  et au taux de répétition  $1/\tau=60\text{kHz}$ ). Nous utilisons dans notre montage un pulse de 10kHz montant linéairement en temps (voir fig. III-8) qui permet de détecter 15% des atomes excités. Les états de Rydberg de nombre quantique principal différent sont ionisés à différents instants avec cette rampe linéaire.

Un boxcar est utilisé pour moyenner le signal de courant d'ionisation  $I(t)$  qui est proportionnel à la population d'un niveau de Rydberg donné. Dans les expériences où on réalise des transitions microonde entre deux états de Rydberg, nous pouvons placer la porte du boxcar de façon à ne détecter qu'un seul des deux états.

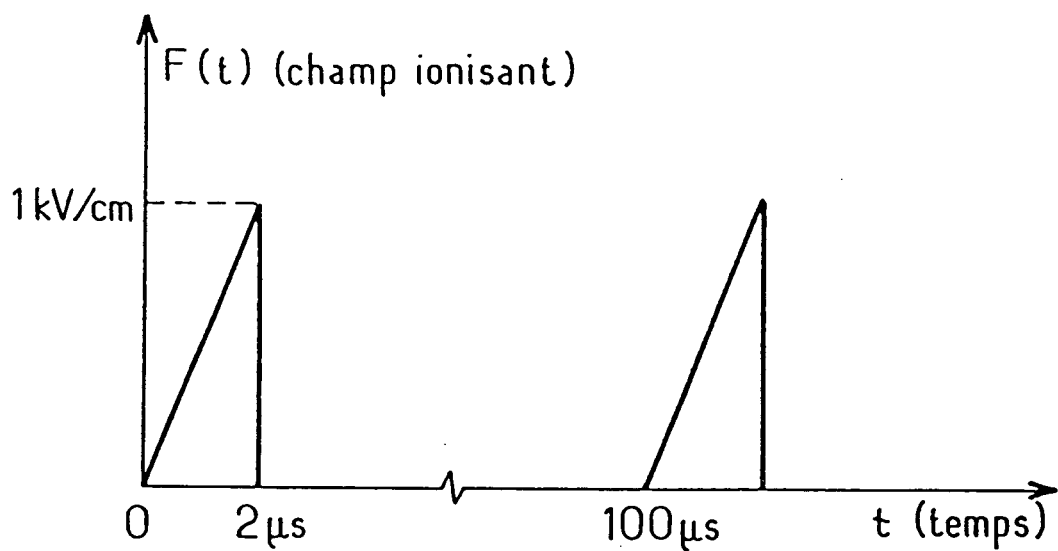


Fig. III-8

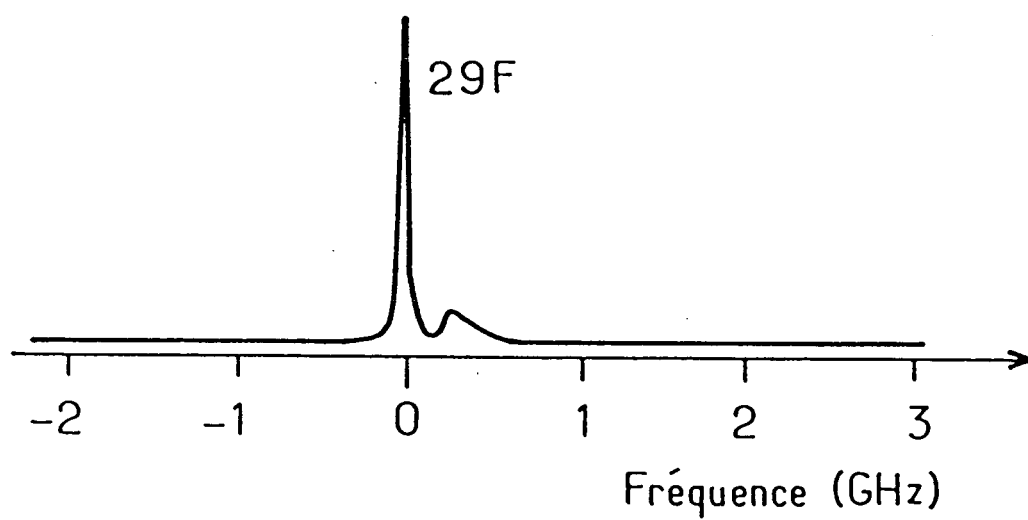


Fig. III-9



Le faisceau du laser à colorant est coupée pendant le pulse de détection par un modulateur électro-optique pour réduire le bruit créé par la lumière parasite intense.

### III. 1. 5. Signal d'ionisation des atomes de Rydberg

Nous enregistrons le signal d'ionisation en fonction de la fréquence du laser 3 (diode laser) qui est balayée en faisant varier légèrement son courant d'injection. Le signal d'ionisation sortant du boxcar est enregistré sur un enregistreur XY (table traçante) en fonction du courant dans la diode. Comme la variation de courant est faible, on peut s'arranger pour que la fréquence de la diode laser soit loin d'une région de saut de mode et varie linéairement avec le courant. L'axe de fréquence est calibré de la manière suivante: Le spectre d'excitation est enregistré avec le laser 2 accordé successivement sur les transitions  $3P_{3/2} \rightarrow 3D_{5/2}$  et  $3P_{3/2} \rightarrow 3D_{3/2}$ . Deux spectres semblables sont obtenus mais décalés l'un de l'autre. La séparation entre les raies analogues dans ces 2 spectres est égale à l'intervalle de structure fine dans l'état 3D de 1523MHz [45]. Cela permet de calibrer la variation en fréquence de la diode laser avec son courant. On trouve une variation de 1,9GHz/mA.

Nous montrons sur la figure III-9 un spectre d'excitation qui représente des états de Rydberg: le grand pic est le niveau 29F, le petit pic est le mélange des niveaux 29G, 29H, etc. Ces raies de  $|\Delta l| \neq 1$  sont permises par la présence d'un faible champ électrostatique parasite de l'ordre de 50mV/cm. On voit ainsi qu'une bonne homogénéité du champ électrostatique est exigée dans cette expérience utilisant des lasers continus de faible largeur spectrale. La largeur à mi-hauteur du grand pic est de 80MHz environ.

D'après les règles de sélection dipolaire électrique, le laser 3 peut peupler des atomes de l'état 3D à nP et à nF. Malheureusement, dû à une interférence destructive entre les oscillations des fonctions d'ondes radiales 3D et nP, l'élément de matrice  $\langle nP | r | 3D \rangle$  a une valeur presque nulle:  $R_{29P,3D} \approx 7 \times 10^{-4} a_0$  où  $a_0$  est le rayon de Bohr, au lieu de  $R_{29F,3D} \approx -9,5 \times 10^{-2} a_0$ . La série des états de Rydberg nP n'est donc pas efficacement peuplée par ce chemin d'excitation. Au contraire, la série des états nF est normalement couplée à l'état 3D. Les niveaux de nP ne peuvent être excités qu'en présence d'un champ électrostatique ( $\geq 50V/cm$ ) qui mélange fortement l'état F et l'état P.

Force d'oscillateur  
( $3D \rightarrow nP$  dans le sodium)

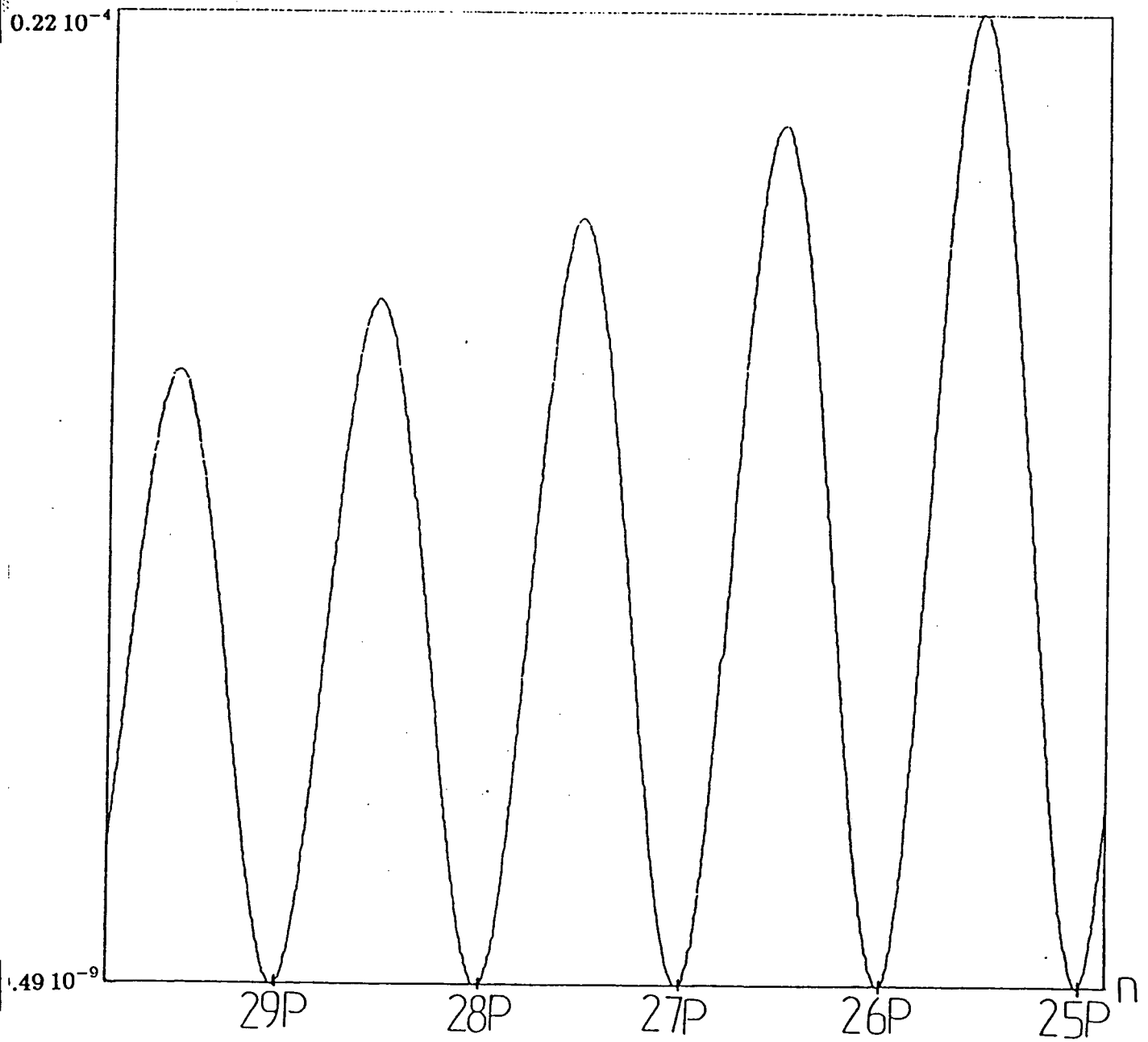


Fig. III-10

Nous avons calculé la force d'oscillateur de la transition  $3D \rightarrow nP$  en utilisant une formule analytique supposant que la variable  $n$  est continue. Nous remarquons que les états de Rydberg  $nP$  ( $n=29-\delta\rho$ ,  $28-\delta\rho$ ,  $27-\delta\rho$ ,  $26-\delta\rho$ ,  $25-\delta\rho$ , avec  $\delta\rho = 0,855$ ) tombent près des minimums de la force d'oscillateur (voir fig. III-10).

### III.2. PREPARATION DES ATOMES DE RYDBERG DU LITHIUM PAR LASER PULSE

Le schéma expérimental et le schéma d'excitation sont présentés sur les figures III-11 et III-12. Le jet atomique de lithium est issu d'un four à une température de  $400^\circ\text{C}$  à  $500^\circ\text{C}$ , ce qui correspond à une vitesse moyenne des atomes du jet de:

$$\bar{v} = \sqrt{\frac{9\pi}{8} \frac{kT}{m}} = 1,5 \cdot 10^3 \text{ m/s}$$

(contre  $850 \text{ m/s}$  pour le sodium).

#### III.2.1. Excitation

Trois lasers sont utilisés pour préparer depuis le niveau fondamental  $2S$  les états de Rydberg  $n\ell$  (voir fig. III-12). Ces lasers sont des lasers à colorant pompés par un laser YAG doublé en fréquence par un cristal ADP. Le YAG doublé à une longueur d'onde de  $530\text{nm}$  a une puissance de  $30\text{MW}$ . Il émet à un taux de répétition de  $10\text{Hz}$ , et la durée de chaque pulse est de  $12\text{ns}$ . Le laser 1, qui excite les atomes de l'état  $2S$  à  $2P$ , est un laser à colorant de type "Hänsch" [44] fonctionnant avec l'"Oxazine 720". Le laser 2, excitant les atomes de l'état  $2P$  à  $3D$ , utilise une combinaison de Rhodamine B et de Rhodamine 640. Il est également de type "Hänsch". Ces deux transitions s'effectuent entre états peu excités, ont de grandes forces d'oscillateur, et sont faciles à saturer. Seulement  $15\%$  de la puissance du laser à YAG est utilisé pour pomper chacun de ces deux lasers. Le 3ème échelon d'excitation de  $3D$  vers un état de Rydberg  $|n\ell\rangle$  a une force d'oscillateur bien plus faible. Le laser 3 est un laser à colorant "Quantel" (TDL III) pompé par  $70\%$  de la puissance du laser YAG. Il fonctionne avec du LDS821 (Exciton) et émet dans le proche infra-rouge

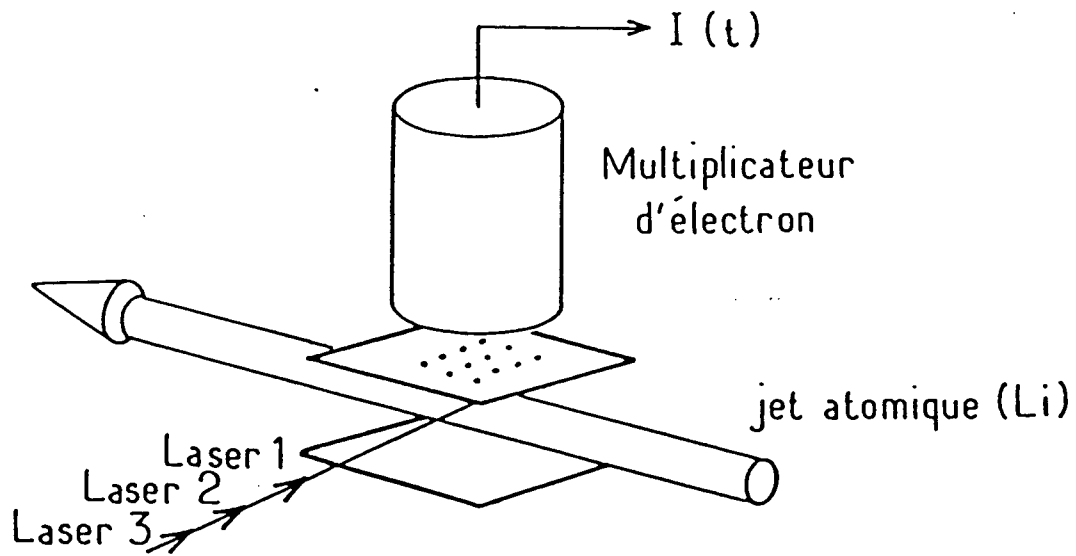


Fig. III-11 Schéma expérimental (Li)

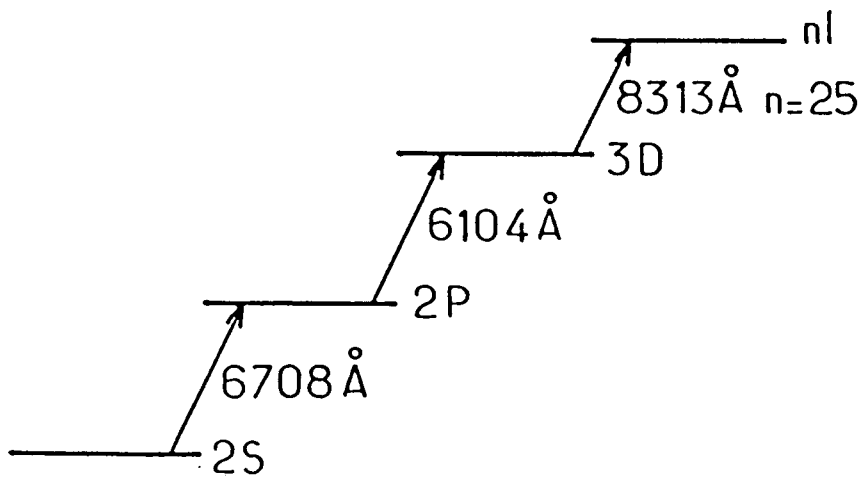


Fig. III-12 Schéma d'excitation (Li)

(7500–8500Å). La puissance crête est de 200kW. La largeur spectrale est de 2 à 3GHz, ce qui est suffisant pour peupler efficacement le niveau, sans saturer la transition  $3D \rightarrow n\ell$ . La fréquence du laser est contrôlée par la rotation du réseau qui est commandée par un moteur pas à pas. Nous faisons se superposer les trois faisceaux lasers en utilisant une lame séparatrice à 50% pour les deux faisceaux visibles et un miroir dichroïque pour les faisceaux visibles (réfléchis) et le faisceau IR (transmis).

La mise à résonance des trois échelons d'excitation est faite par le processus suivant :

Nous envoyons les faisceaux des lasers 1 et 2 séparément sur un spectromètre de précision 0,1Å (Jobin-Yvon) et nous accordons leurs longueurs d'onde à 6708,4Å et 6104,0Å respectivement. Comme les lasers 1 et 2 ont une grande largeur spectrale de l'ordre de 100GHz (beaucoup plus grande que la précision du spectromètre). Ce réglage est suffisant et l'on peut assurer à ce moment que les lasers 1, 2 excitent les atomes de  $2S$  à  $2P$ , puis  $2P$  à  $3D$ . On accorde ensuite le laser 3 sur une résonance  $3D \rightarrow n\ell$  et l'on peut observer le signal d'ionisation par champ d'un état de Rydberg. Sur ce signal tout peut être optimisé: les fréquences des trois lasers, les alignements optiques, etc.

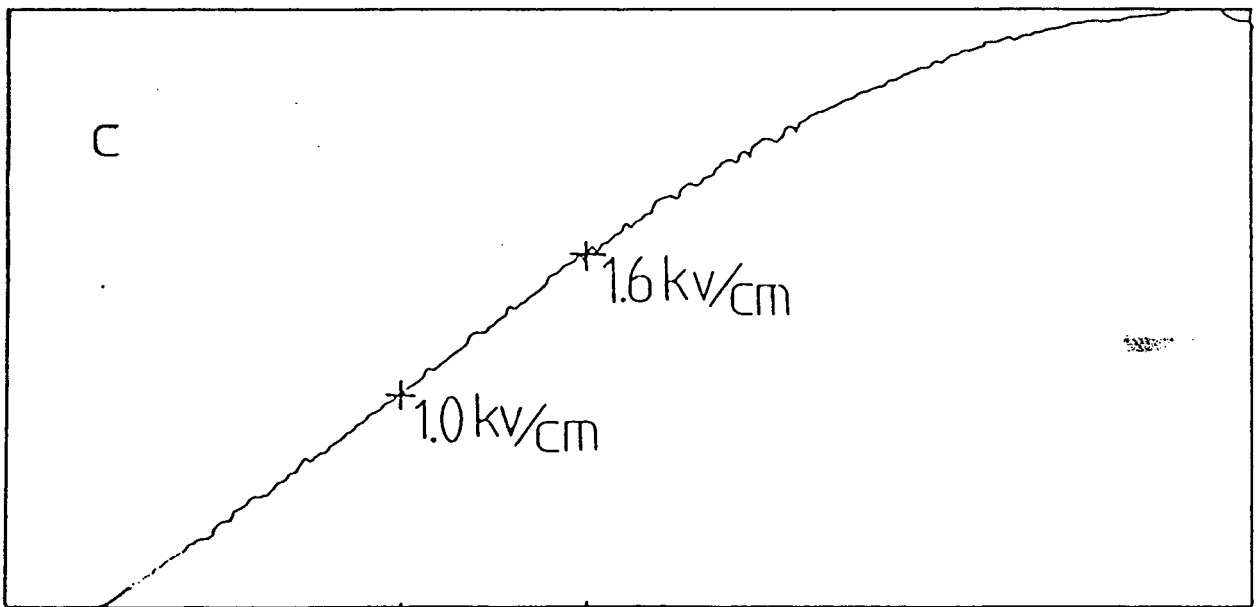
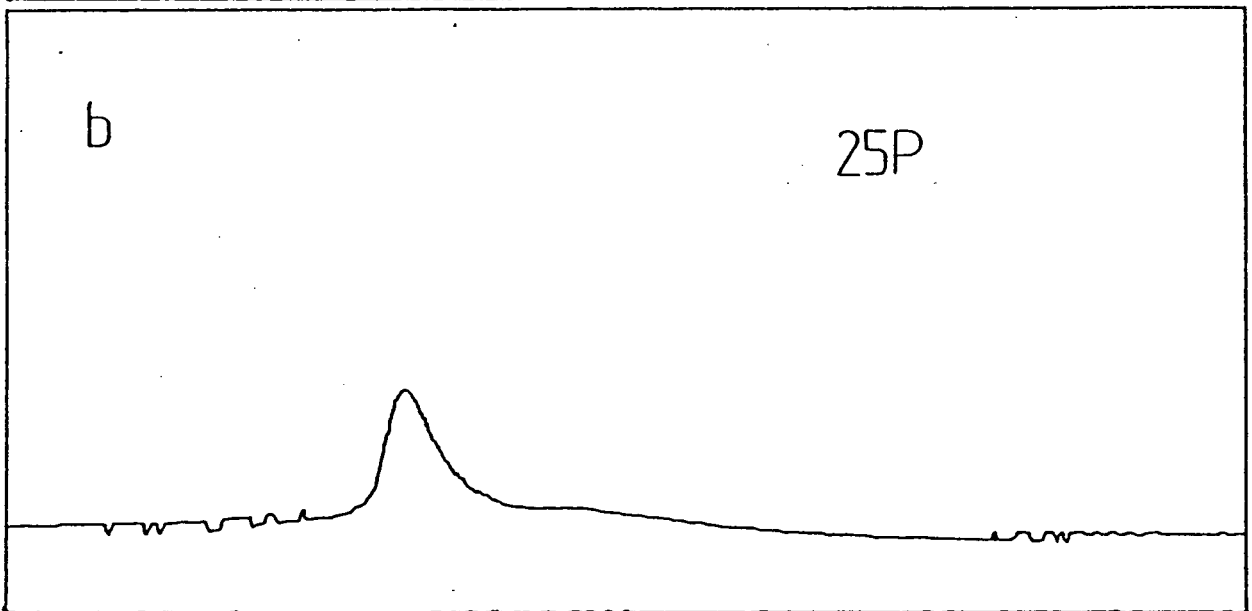
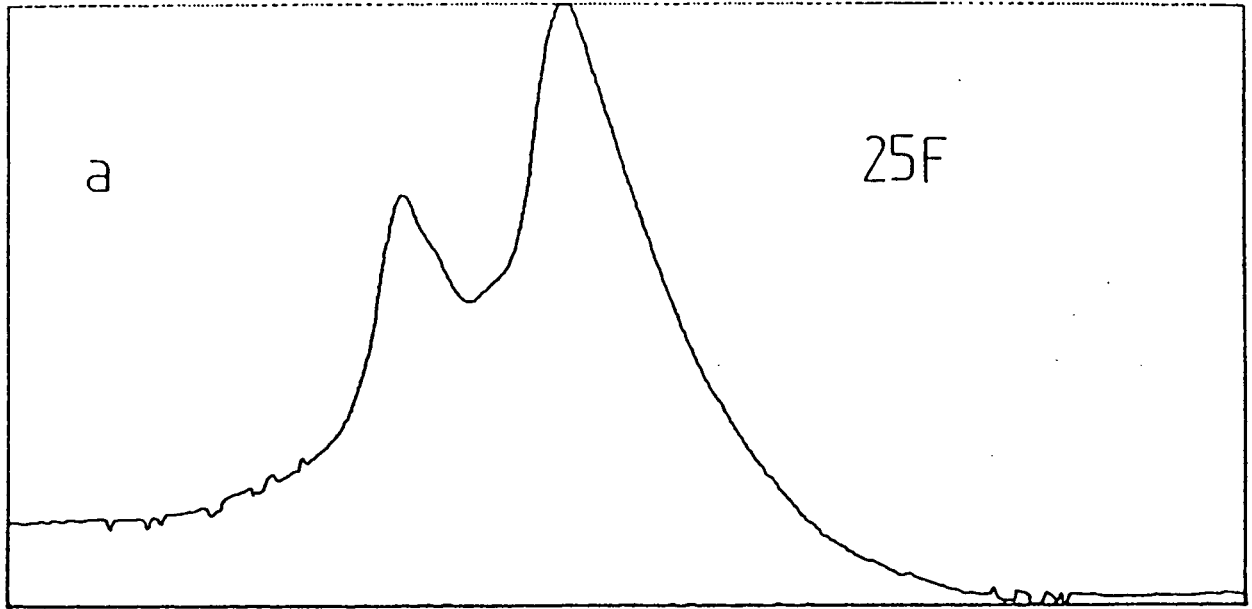
### III. 2. 2. Détection

La méthode de détection est la même que dans le cas des lasers continus, c'est-à-dire la technique d'ionisation par champ électrostatique. La génération du pulse ionisant utilise une électronique différente puisqu'il s'agit de générer des pulses de plus forte tension (jusqu'à environ 4000V) à un plus faible taux de répétition (10Hz).

### III. 2. 3. Signal d'ionisation des atomes de Rydberg

Le signal d'ionisation des atomes de Rydberg peut être présenté (1) soit en fonction du temps, c'est le signal temporel; (2) soit en fonction de la fréquence du laser du dernier échelon. Dans ce dernier cas, on présente généralement l'aire du signal d'ionisation en fonction de la fréquence sous forme d'un spectre d'ionisation.

Sur la figure III-13, nous montrons le signal d'ionisation temporel de l'état  $25F$  (fig.III-13a) et de  $25P$  (fig.III-13b) ainsi que la rampe ionisante (fig.III-13c). cette figure appelle les remarques suivantes:



TEMPS

Fig. III-13

(1) Le signal d'ionisation du niveau 25F est beaucoup plus grand que celui de 25P. Car la force d'oscillateur  $3d-nl$  est 35 fois plus grande pour 25F que pour 25P.

(2) La structure des signaux d'ionisation de 25F et 25P est intéressante. Le niveau 25P s'ionise dans un champ de 1kV/cm, le signal d'ionisation de 25F présente deux pics: 1kV/cm et le 2ème dans un champ plus fort 1,6kV/cm. Ce phénomène s'explique de la manière suivante:

Il existe deux mécanismes d'ionisation correspondant à des passages adiabatiques ou rapides aux anticroisements du diagramme des niveaux Stark [49]. Les niveaux Stark de faible valeur de  $|m|$  ( $|m| = 0, 1$ ) sont fortement perturbés par l'interaction avec le coeur et se repoussent fortement aux anticroisements. Les niveaux Stark de grande valeur de  $|m|$  sont, eux, pratiquement hydrogénoïdes et présentent donc des "quasi-croisements" (le diagramme Stark de l'hydrogène présente uniquement des croisements). Pour le niveau 25P (ne comportant que des sous-niveaux de faible valeur de  $|m|$ ), on aura alors passage adiabatique et ionisation dans un champ  $3 \times 10^8 / n^4$  (V/cm) soit 0,83kV/cm (valeur expérimentale  $\sim 1$ kV/cm). Pour le niveau 25F, on aura passage adiabatique pour  $|m| = 0, 1$  et ionisation dans le même champ de 0,83kV/cm, et passage rapide pour  $|m| = 2, 3$ , et ionisation analogue à celle de l'hydrogène (cf. fig. I. 10) dans un champ dont la valeur théorique [17] est 1,45kV/cm (valeur expérimentale 1,6kV/cm).

La figure III-14 montre les spectres d'ionisation des états de Rydberg. La figure III-14a présente le spectre obtenu en balayant le laser IR de -300GHz à +300GHz autour de la fréquence de la transition  $3D \rightarrow 25F$ . Le grand pic à droite correspond à l'état 25F, le petit correspond à l'état 25P. Le rapport entre l'aire de ces deux raies est de l'ordre de 30, la différence de fréquence est de 15GHz.

Pour montrer plus clairement les signaux 25P et 25F, nous présentons sur la figure III-15b le spectre local de l'état de Rydberg  $n=25$ . La fréquence du laser IR est balayée finement de -30GHz à +30GHz en atténuant le laser IR

Le niveau 25P est peu excité, la largeur du pic 25F est de 2,2GHz, ce qui correspond à la largeur du laser IR. La raie large à droite de la figure III-15b représente le signal d'ionisation des niveaux 25G, 25H, etc, qui sont excités en présence du champ électrostatique parasite (de l'ordre de 5V/cm). Ce signal ressemble beaucoup au signal d'ionisation des atomes de Rydberg du sodium sur la figure III-9. Les diverses raies sont ici plus larges que pour le sodium car le laser pulsé IR est plus large en fréquence que les diodes lasers (2,2GHz au lieu de 40MHz).



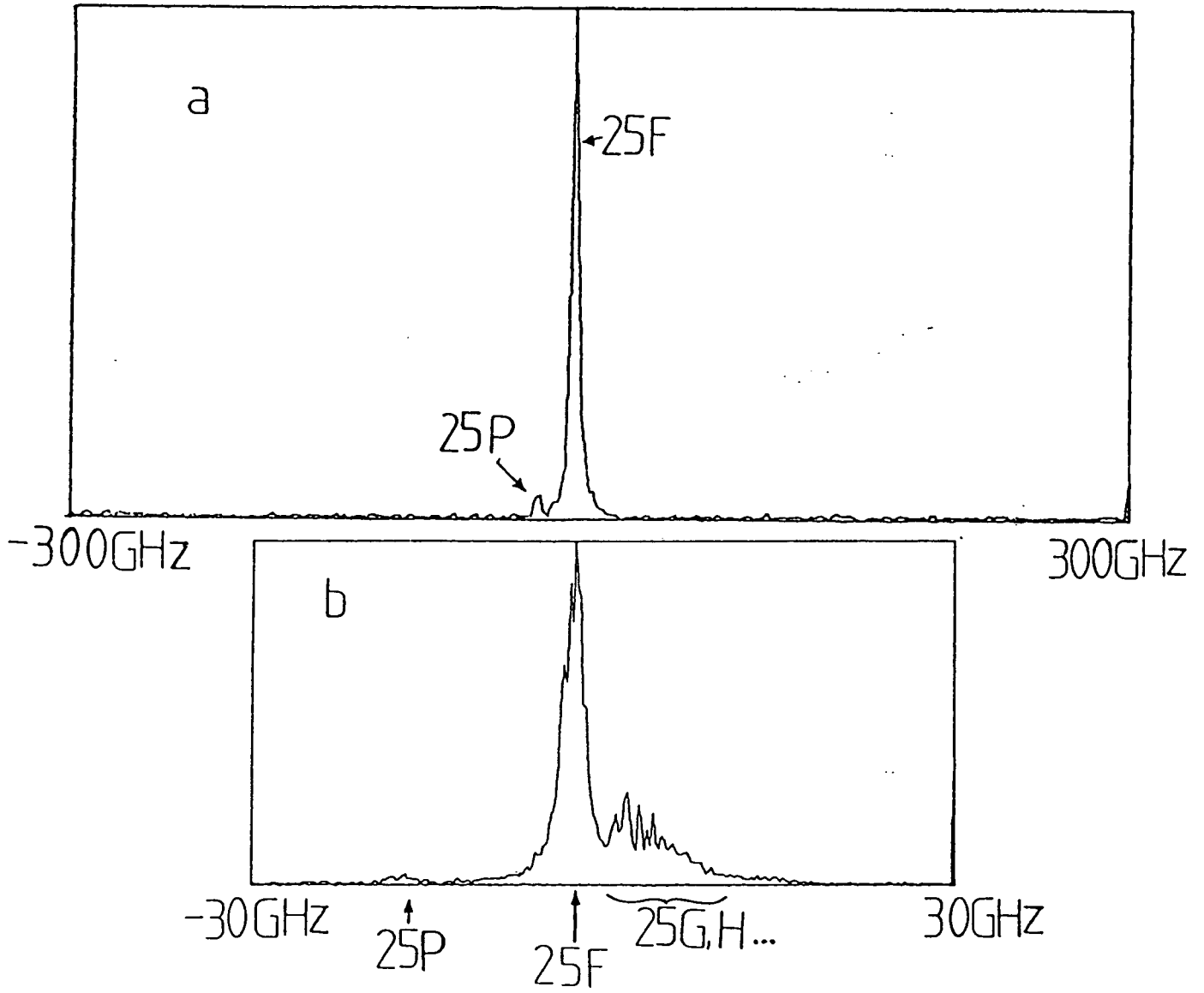


Fig. III-14

## CHAPITRE IV

## ETUDE EXPERIMENTALE DE L'EFFET STARK DES ATOMES DE RYDBERG

De nombreuses études expérimentales et théoriques de l'effet Stark des atomes de Rydberg ont été effectuées pour toutes les valeurs du champ électrostatique depuis des valeurs toutes petites, jusqu'à celles qui permettent d'ioniser les atomes [31][38]. L'effet Stark des atomes alcalins donne beaucoup d'informations sur les propriétés physiques des atomes: défaut quantique, force d'oscillateur, présence de croisement et d'anticroisement dans le diagramme Stark. Dans ce chapitre IV, nous allons étudier l'effet Stark des atomes de Rydberg alcalins dans deux régimes différents:

- (a) En champ Stark faible sur les atomes de sodium avec les lasers continus de haute résolution ( $F \leq 20$  V/cm).
- (b) En champ Stark relativement plus fort sur des atomes de lithium avec les lasers pulsés ( $F \sim 200$  V/cm, proche de la région Inter- $n$ - mixing)

Cette dernière étude nous sera très utile pour comprendre la façon dont on peut préparer des états de Rydberg circulaires.

IV.1. MONTAGE EXPERIMENTAL

Par rapport au montage qui nous a permis de préparer des atomes de Rydberg de  $\ell$  bas, nous avons ajouté un condensateur multiplaques avant la zone de détection le long du jet atomique et nous avons translaté les faisceaux lasers de manière à exciter les atomes à l'intérieur du condensateur multiplaques (voir fig.IV-1). Nous avons ainsi séparé la région d'excitation et celle de détection.

Le condensateur multiplaques est constitué de 16 plaques en cuivre, dont 14 sont percées en leur centre d'un trou de 2,5cm de diamètre. Ces plaques sont régulièrement espacées de 3mm. L'ensemble a une hauteur totale de 5cm. Chaque plaque est de longueur 6cm, de largeur 4cm et d'épaisseur 1mm. Entre deux plaques consécutives, une liaison électrique est faite par une résistance de 3,3M $\Omega$ . Ce système nous permet de répartir

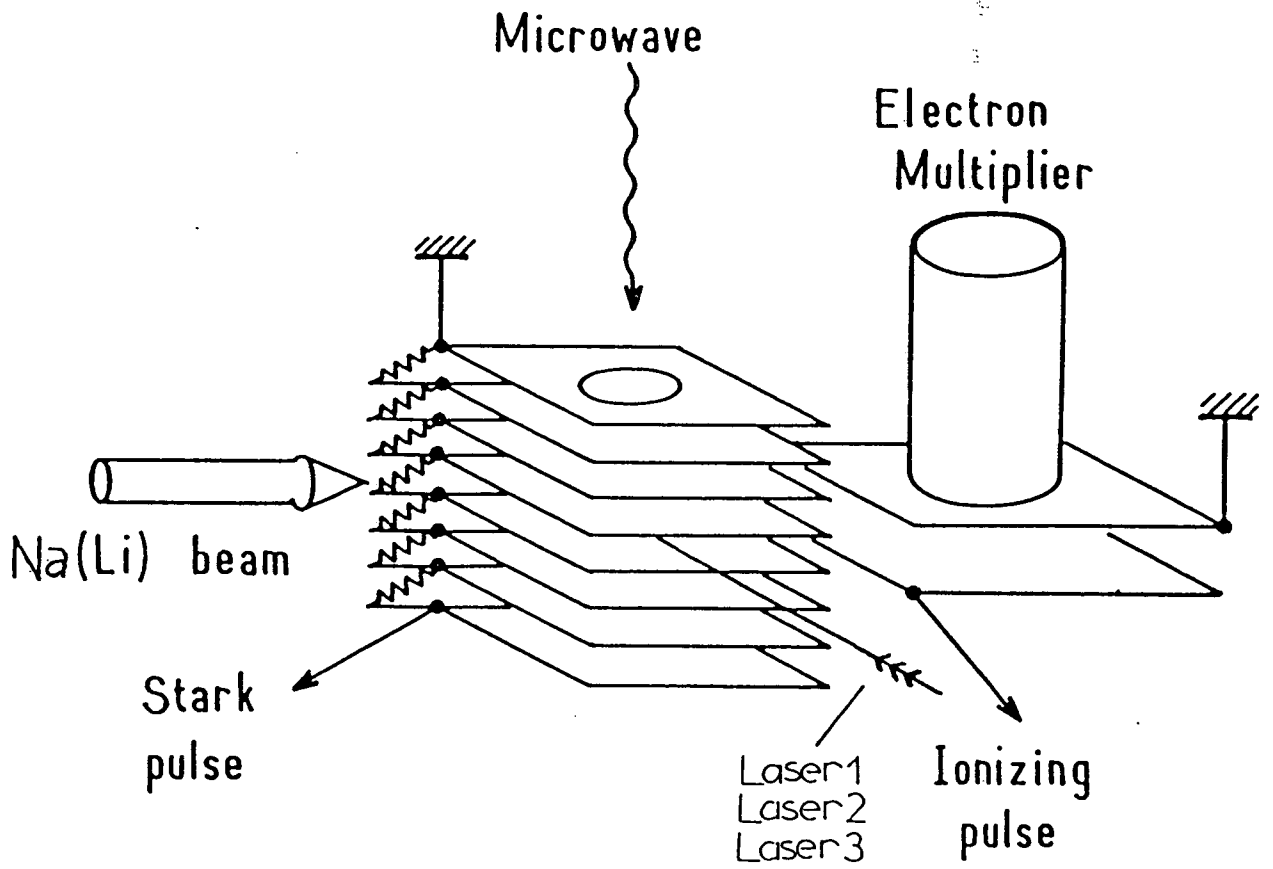


Fig. IV-1

régulièrement les tensions électriques appliquées aux 2 extrémités, ce qui crée un champ électrostatique très homogène. Les avantages du système vont être décrits plus tard (chapitre V.3). Les atomes sont excités à l'intérieur du condensateur multiplaques en présence d'un champ Stark homogène.

Notons qu'il existe entre les deux expériences que nous avons faites, sodium et lithium, une petite différence du point de vue de l'excitation. Dans le cas du lithium, les 3 faisceaux lasers sont colinéaires et perpendiculaires au jet. Dans le cas du sodium, le laser à colorant est colinéaire au jet et les faisceaux des 2 diodes lasers sont parallèles entre eux et perpendiculaires au jet. Ils sont focalisés par une lentille au point d'excitation où ils se croisent en faisant un angle très petit. La "Microonde" indiquée sur la figure IV-1 est utilisée uniquement dans le cas du sodium pour effectuer les "spectres Stark microonde".

## IV. 2. RESULTAT SUR LE SODIUM AVEC 3 LASERS CONTINUS

### IV. 2. 1. Spectre Stark optique

Les deux diodes lasers des 2ème et 3ème échelons nous donnent une haute résolution spectrale et une grande probabilité d'excitation (toute la puissance sur un seul mode). Une telle technique nous permet de peupler sélectivement et efficacement des sous-niveaux isolés  $|m, n_1\rangle$  dont la dégénérescence est levée par un champ électrostatique très faible et qui seraient indistinguables avec une excitation de laser pulsé.

Par la même méthode d'enregistrement que celle décrite dans la préparation d'un état de Rydberg de  $l$  bas, et en appliquant différentes valeurs du champ Stark au condensateur multiplaques, nous avons enregistré les spectres Stark, qui sont montrés sur la figure IV-2. Nous avons la configuration des polarisations des lasers suivante :  $\sigma$  pour le laser 1,  $\pi$  pour le laser 2 et le laser 3 par rapport à la direction du champ Stark. Les populations théoriques des niveaux  $|m| = 0, 1, 2, 3$  sont respectivement de 23%, 68%, 2% et 0%.

Pour le champ  $F = 2,1$  V/cm, le spectre est composé de 26 raies avec des distances entre raies presque égales. Un doublet isolé issu de l'état P, ayant un déplacement Stark quadratique, est aussi apparent. La largeur de raie, de l'ordre de 40MHz, est due à l'élargissement Doppler résiduel et à l'instabilité de fréquence de la diode laser. Quand le champ Stark  $F$  est augmenté à 3,2 V/cm et 6,0 V/cm, le groupe des raies

équidistantes se mélange avec le doublet isolé, on observe 27 raies équidistantes (la 1ère raie reste un doublet, et certaines raies sont très faibles autour de la position 29D).

Si on considère seulement "l'éventail" des raies équidistantes provenant de l'état  $nF$ , le spectre Stark ressemble au premier abord au spectre Stark purement hydrogénéoïde, dont les énergies dans un champ  $F$  sont données par la formule (I.86) bien connue qui se réécrit comme:

$$E(n, k, m) = -\frac{1}{2n^2} + \frac{3}{2} n k F \quad \text{en unités atomiques (IV.1)}$$

où  $k = n_1 - n_2$  ( $n_1, n_2 = 0, \dots, n - |m| - 1$ ).  $k$  peut varier de  $-(n-1-m)$  à  $(n-1-m)$  par pas de deux. Cela est corroboré par le fait que l'intervalle entre des raies Stark expérimentales équidistantes correspond avec une bonne approximation à l'intervalle d'énergie calculé à partir de l'équation (IV.1) entre niveaux Stark consécutifs ayant la même valeur de  $m$ :  $3nF$ .

Selon l'équation (IV.1), les niveaux ( $k=-(n-1-m) \dots (n-1-m)$ ) pour  $m'=m+1$  se placent exactement au milieu des intervalles entre les niveaux de la série de  $m$ . Comme dans notre expérience, les sous-niveaux de  $|m| = 0$  et  $1$  sont principalement peuplés, le nombre des raies enregistré devrait être doublé et l'intervalle d'énergie divisé par deux. Les spectres de la figure IV-2 sont donc en fin de compte fortement non hydrogénéoïdes bien que quelques caractéristiques typiquement hydrogénéoïdes subsistent: nous observons en même temps des niveaux Stark ayant des déplacements d'énergie proche de la valeur calculée à partir de la formule (IV.1) (pour  $|m|$  pair) et une dégénérescence inattendue, à l'intérieur de la largeur de raie expérimentale, entre les sous-niveaux de  $|m| = 0$  et  $|m| = 1$ .

En fait, les sous-niveaux  $|m| = 0$  et  $1$  ne sont pas strictement dégénérés. La figure IV-3 donne une partie du spectre Stark en présence d'un champ relativement plus fort de 20,5 V/cm: nous pouvons observer des doublets, avec une séparation d'énergie de 180MHz environ. En supposant une variation linéaire de l'écart  $m=0$  et  $|m| = 1$ , les raies des 2 extrêmes sont décalées respectivement par moins de 50MHz, 30MHz, 20MHz dans les 3 enregistrements de la figure IV-2 avec  $F = 6, 0, 3, 2, 2, 1V/cm$ , qui sont bien inobservables. Il faut souligner que cette dégénérescence ne peut pas être considérée comme "accidentelle" parce qu'elle existe pour toutes les raies Stark. L'écart entre sous-niveaux  $m=0$  et  $|m| = 1$  est plus

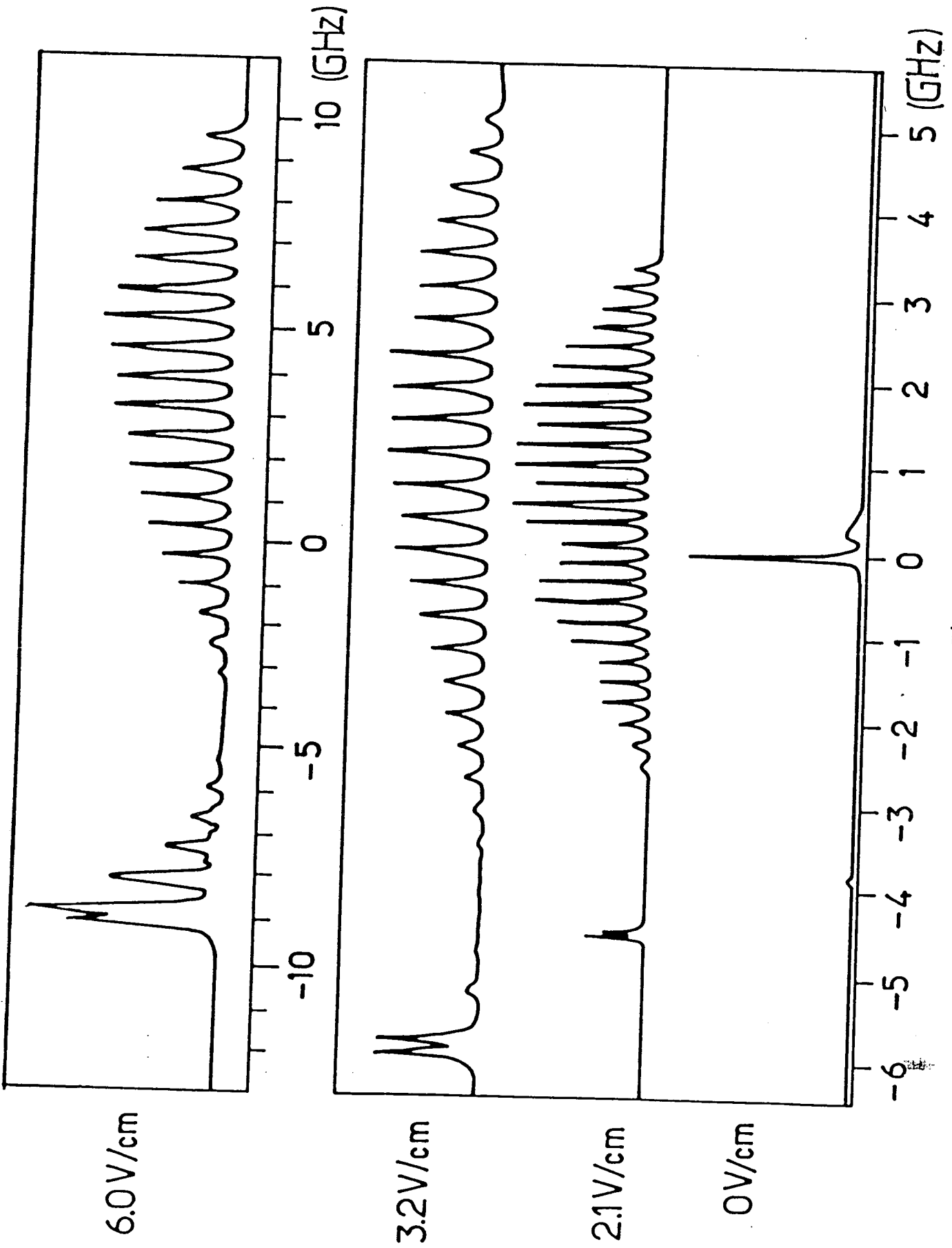


Fig. IV-2

grand pour les raies les plus déplacées (2 extrêmes). Cet effet subsiste dans un grand domaine de champ. Nous avons ainsi observé la même dégénérescence dans le lithium avec des conditions légèrement différentes qui vont être présentés dans le paragraphe IV.3. Cette caractéristique ne dépend donc pas des valeurs spéciales des défauts quantiques du sodium et apparaît être une caractéristique "universelle" des spectres Stark des atomes de Rydberg observés dans ce domaine de champ intermédiaire (voir partie théorique II).

Sur les spectres de la figure IV-2, on peut aussi observer des grandes variations des intensités distribuées sur les raies de la multiplicité Stark: pour les valeurs de champ très faibles, toutes les raies Stark équidistantes ont des hauteurs semblables avec un maximum pour les raies les plus faiblement décalées, les spectres enregistrés dans des valeurs du champ grandes révèlent un minimum de l'intensité pour des raies placées tout près de la position de l'état 29D en champ nul. Le même genre de variations d'intensité des raies a été aussi observé et expliqué dans le cas de l'effet Stark d'état de Rydberg du césium [3].

#### IV.2.2. Spectres Stark microonde

Comme nous l'avons dit plus haut, il est possible, avec notre dispositif expérimental, de peupler efficacement un sous-niveau Stark donné, même en champ faible: on peut donc réaliser des expériences de double résonance [32][33] en transférant les atomes d'un état Stark  $n=29$  peuplé par laser vers un autre état d'une multiplicité Stark voisine à l'aide d'une source microonde extérieure.

Nous avons utilisé un carnotron Thomson-CSF fonctionnant autour de 256GHz pour induire de telles transitions entre les multiplicités  $n=29$  et  $n=30$ . On balaye la fréquence du carnotron autour de la valeur de résonance en faisant varier la haute tension appliquée, et on mesure simultanément cette fréquence par la technique de mélange harmonique [33]. Quand la microonde est résonnante avec la transition atomique, il se produit une modification notable de la forme du signal d'ionisation en fonction du temps. La principale source de bruit dans une telle expérience est le rayonnement thermique, qui induit aussi des transitions depuis le niveau peuplé par laser vers tous les niveaux voisins. Nous avons réduit ce bruit en refroidissant le montage expérimental à la température de l'hélium

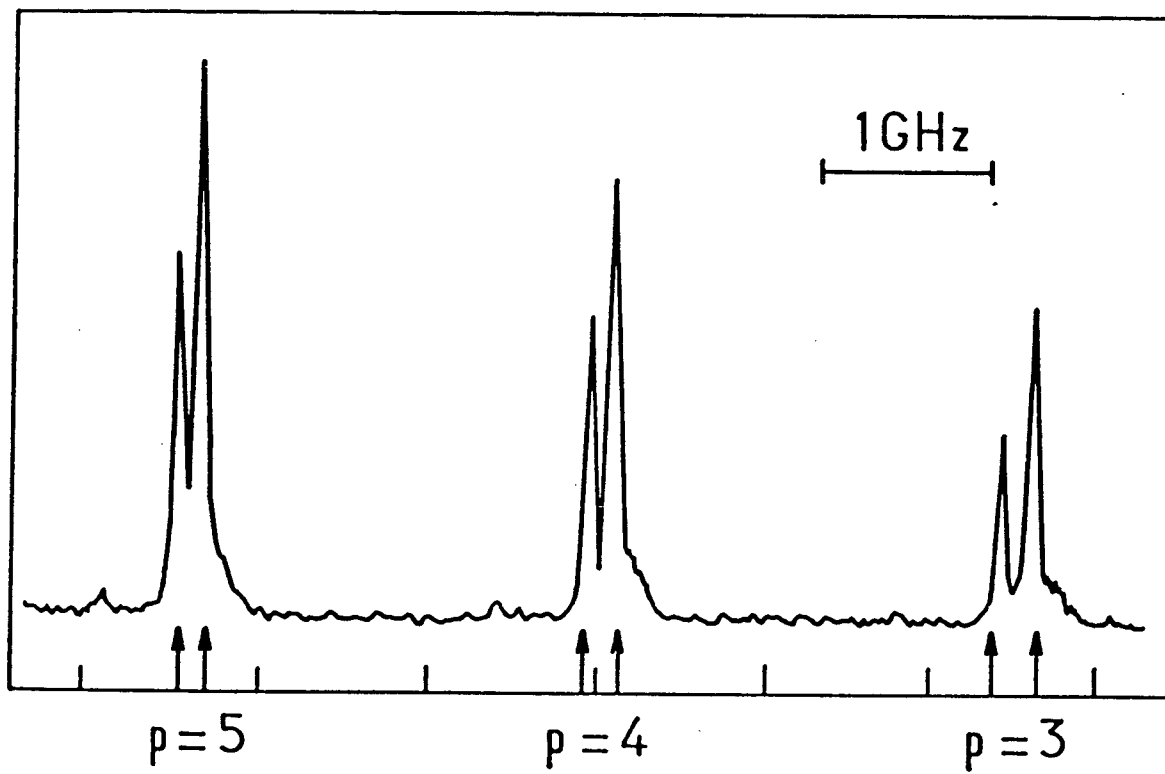


Fig. IV-3



liquide et en l'entourant de parois absorbantes pour la microonde refroidies à la même température.

Les raies les plus faciles à observer sont celles qui correspondent à des transitions entre niveaux Stark déplacés de quantités comparables dans leurs multiplicités respectives, c'est-à-dire qui ont des moments dipolaires permanents comparables: dans ce cas, les fonctions d'onde sont également décalées loin du noyau et l'élément de matrice dipolaire électrique est alors maximum.

La figure IV-4 donne la fréquence des raies de résonance observées en fonction du champ électrique  $\vec{F}$ . Les niveaux Stark sont repérés par le nombre quantique Stark  $n_1$  ( $n_1=0$  correspond à la raie la plus déplacée en direction de la limite d'ionisation,  $n_1=1/2(n-m-1)$  correspond aux raies centrales). Les fréquences de résonance microonde sont mesurées avec une précision de 10MHz, correspondant à la largeur de raie expérimentale. Les points de la figure IV-4 donnent la position des transitions observées entre les niveaux Stark centraux ( $n_1=n/2$ ) pour différentes valeurs du champ.

Les deux traits pleins de la figure IV-4 correspondent à la loi :

$$\Delta E_{\pi}(n_1, n'_1) = 3Ry \times 29 \times \frac{F}{F_0} \left[ 2(n_1 - n'_1) + 1 \right] \quad (\text{IV.2})$$

avec  $n_1 = n'_1$  et  $n_1 = n'_1 + 1$  respectivement.

La ligne pointillée correspond à la loi :

$$\Delta E_{\sigma}(n_1, n'_1) = 3Ry \times 29 \times \frac{F}{F_0} \times 2 (n_1 - n'_1) \quad (\text{IV.3})$$

avec  $n_1 = n'_1$ .

$\Delta E_{\pi}(n_1, n'_1)$  et  $\Delta E_{\sigma}(n_1, n'_1)$  sont les écarts énergétiques entre sous-niveaux Stark dans l'hydrogène (lorsque  $n \gg 1$  et  $n_1 \approx n'_1$ ) de même valeur de  $m$  pour  $\Delta E_{\pi}$  et avec  $m' = m \pm 1$  pour  $\Delta E_{\sigma}$ . On remarque immédiatement que les points expérimentaux suivent approximativement la loi (IV.2) (avec une légère variation avec  $n_1$  qui n'est pas expliquée par l'équation (IV.2)). Par contre, aucune transition n'est observée dans le sodium à une fréquence donnée, même approximativement, par l'équation (IV.3), quelle que soit la polarisation de la microonde: c'est une confirmation de nos

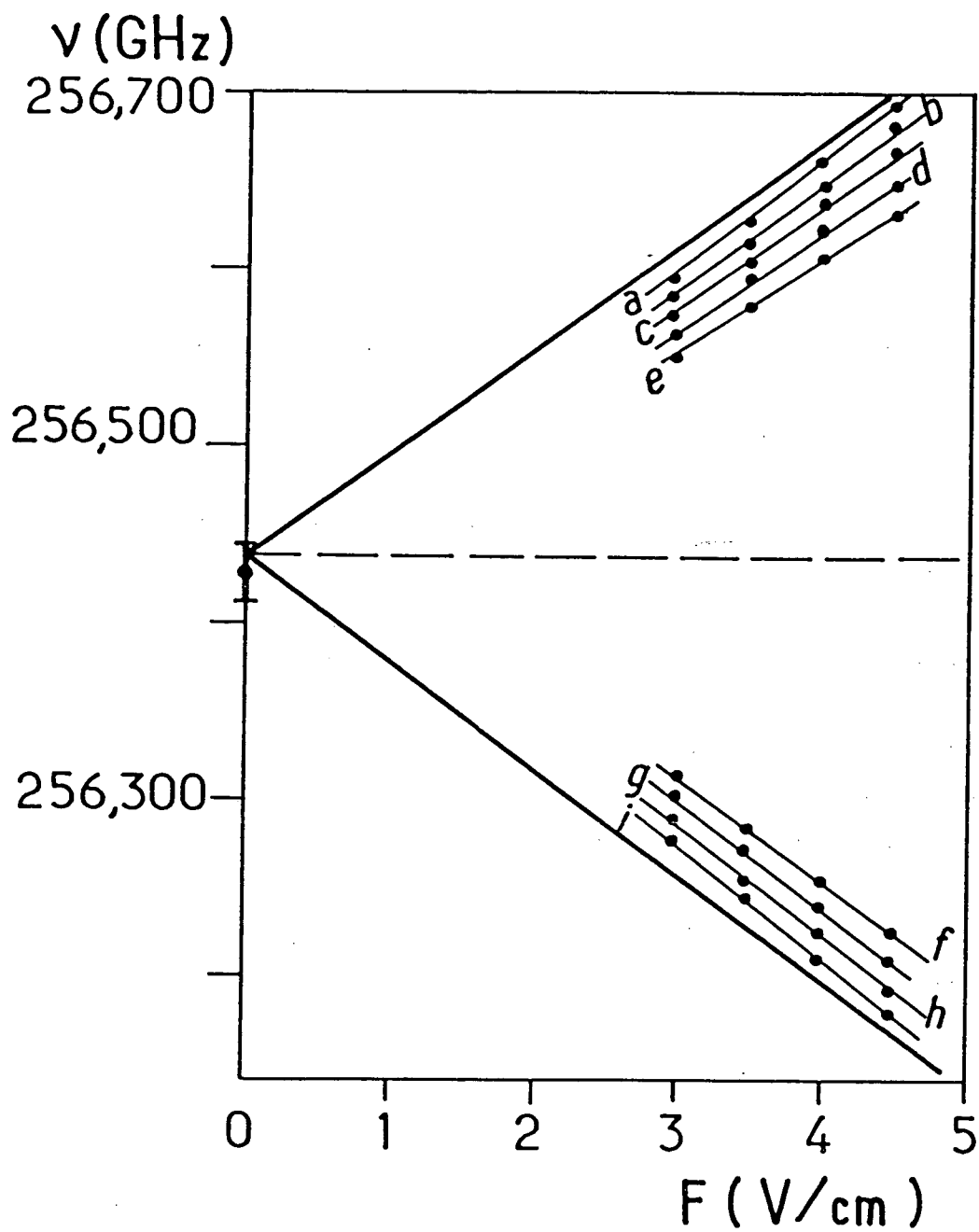


Fig. IV-4

observations sur les spectres optiques: les sous-niveaux Stark  $m=0$ ,  $|m|=1$ ,  $|m|=2$  sont quasi-dégénérés dans le sodium, contrairement à l'hydrogène.

Quand on utilise un champ électrique plus élevé, on observe une structure dans les raies microondes due aux différentes valeurs de  $m$  des niveaux initiaux et finaux (transitions  $0 \rightarrow 0$ ,  $0 \rightarrow 1$ ,  $1 \rightarrow 0$ ,  $1 \rightarrow 1$  et  $1 \rightarrow 2$  entre les niveaux  $n=29$  et  $n=30$ ). Dans un champ de  $10\text{V/cm}$ , la levée de dégénérescence est de l'ordre de  $100\text{MHz}$  pour la transition  $n_1=10 \rightarrow n_1'=10$ . Notre dispositif expérimental, comprenant un cornet suivi par un polariseur microonde placé à quelques centimètres de la région d'interaction, à l'extérieur de la chambre à vide, ne nous permet pas de séparer sans ambiguïté les transitions  $\sigma$  et  $\pi$ , à cause des réflexions internes multiples à l'intérieur de l'enceinte à vide, qui dépolarisent complètement la microonde. Nous avons aussi mesuré les transitions microondes en utilisant une cavité microonde Fabry-Perot semi-confocale [33] dont l'axe est parallèle au champ électrostatique. Dans ce cas, seules les transitions  $\sigma$  sont autorisées: les fréquences observées suivent bien la loi de l'équation (IV.2) et non celle de l'équation (IV.3).

En conclusion de cette série d'observations expérimentales, les spectres tant optiques que microondes ont révélé le caractère non hydrogénoïde de l'effet Stark linéaire du sodium: les niveaux  $|m|=1$  sont quasi-dégénérés avec les niveaux  $m=0$  et  $|m|=2$  et cela dans une large gamme de valeurs du champ électrostatique. Ce phénomène s'explique par la résolution numérique et aussi par un modèle approché simple (voir chapitre II).

### IV.3. RESULTAT SUR LE LITHIUM AVEC 3 LASERS PULSES

Nous avons aussi étudié l'effet Stark des états de Rydberg du lithium avec des lasers pulsés dans un champ Stark plus élevé de l'ordre de  $200\text{V/cm}$  pour les niveaux de  $n=20$  et  $n=25$ . Plus  $n$  est petit, plus les niveaux sont séparés des niveaux de  $n'$  voisins ( $n'=n \pm 1$ , l'écart en énergie  $\Delta E_n$  varie comme  $1/n^3$ ).

Afin d'étudier l'effet Stark en restant dans la région de inter- $\ell$ -mixing et de séparer les sous-niveaux Stark le mieux possible avec un laser de largeur  $2,2\text{GHz}$ , nous avons intérêt, dans un premier temps, à choisir  $n$  le plus bas possible. Dans notre expérience, nous avons d'abord travaillé sur  $n=20$ .

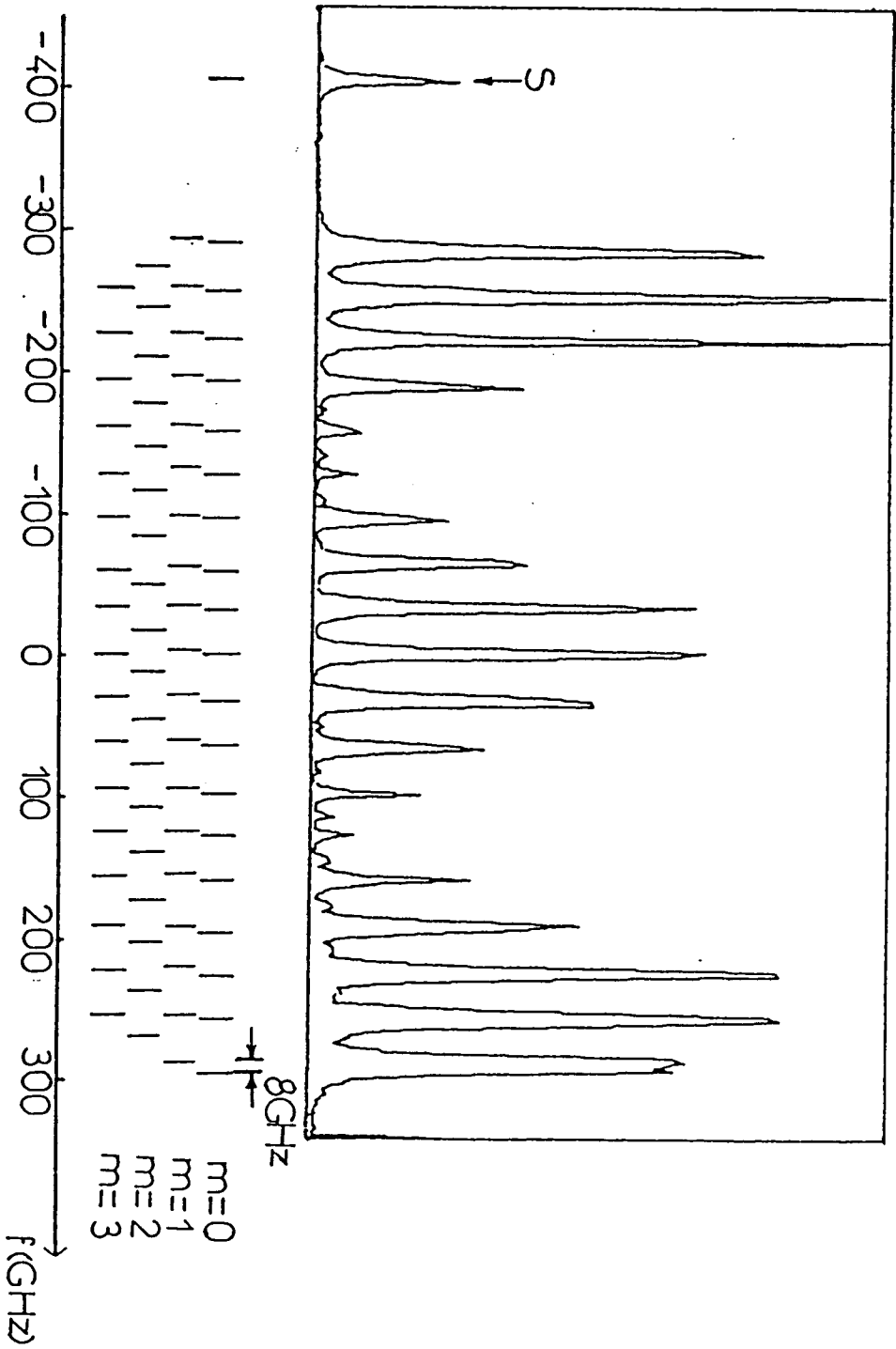


Fig. IV-5

Nous présentons sur la figure IV-5 le spectre Stark de la multiplicité  $n=20$  dans un champ Stark de 415V/cm. Les trois lasers étant de polarisation  $\pi$  par rapport à la direction du champ Stark. La fréquence du laser 3 est balayée de -450GHz à 350GHz autour de la fréquence de transition 3D-20F en champ nul. Nous montrons au-dessous du spectre Stark expérimental les positions théoriques calculées en diagonalisant l'hamiltonien sur 3 multiplicités ( $n-1, n, n+1$ ) au 2ème ordre du champ Stark. Nous avons un bon accord entre le résultat expérimental et le calcul. Le pic isolé à gauche correspond à l'état S qui se trouve être convenablement peuplé. Notons que ce niveau ne peut être peuplé en champ nul à cause des règles de sélection dipolaire  $|\Delta l| = 1$ . Cette méthode d'excitation de l'état S, qui utilise 3 lasers polarisés  $\pi$  en présence d'un champ électrostatique, nous servira dans les expériences de spectroscopie Rydberg pour préparer les niveaux  $nS$  et effectuer des transitions microondes S-S à 2 photons (voir Appendice III). Les 19 pics équidistants plus le pic isolé, soit 20 au total, forment la multiplicité complète de  $n=20$ . La structure en 3 bosses de l'intensité des 19 raies est aussi en bon accord avec le calcul des forces d'oscillateurs projetés sur l'état 20F.

En comparant les figures IV-5a et IV-5b, notons qu'il existe une quasidégénérescence entre la série de  $m=0$  et la série  $|m| = 1$ . Cette caractéristique "universelle" a été observée dans le sodium (voir paragraphe IV.2). Dans le lithium, seuls les états S ont des orbites pénétrantes. Ceci apparaît dans la multiplicité Stark comme un pic isolé loin de "l'éventail" Stark qui est un état "exclu" de la base tronquée  $\epsilon'_m \{n, l, m, n, m \text{ fixé}, l \geq 1\}$ . Cela décale la position de la série  $m=0$  presque d'un demi intervalle entre 2 sous-niveaux Stark consécutifs, et provoque la quasi-dégénérescence avec la série de  $|m| = 1$ .

D'après les règles de sélection, avec 3 lasers de polarisation  $\pi$ , on ne peut exciter que  $|m_l| = 0, 1$ . Du fait de la polarisation imparfaite des lasers, la série de  $|m_l| = 2$  est faiblement peuplée. Les raies de la série  $|m_l| = 2$  sont décalés d'un demi intervalle de la série  $|m_l| = 1, 0$ .

Avec 3 lasers de polarisation  $\pi$ , la série de  $|m| = 3$  n'est pas peuplée. Sur la figure IV-5b sont indiquées les positions théoriques des raies  $|m| = 3$ . Nous pouvons remarquer qu'elles sont presque dégénérées avec les séries de  $|m| = 0$  et 1, et décalées d'un demi-intervalle avec la série  $|m| = 2$ .

## CHAPITRE V

## SPECTROSCOPIE DES ETATS DE RYDBERG CIRCULAIRES

INTRODUCTION

Nous avons montré, dans la partie théorique, qu'un atome de Rydberg dans un état circulaire a certaines caractéristiques spéciales importantes intéressantes à étudier expérimentalement. Ce chapitre présente la méthode de préparation d'un état de Rydberg circulaire.

La méthode générale pour exciter optiquement un état de Rydberg par des lasers multiéchelons ne permet d'atteindre que des états  $nD$  ou  $nF$  (avec 2 ou 3 échelons). En effet chaque photon laser ne peut augmenter que d'une seule unité le moment cinétique de l'orbite ( $\Delta\ell = \pm 1$ ). Un état de Rydberg étant un état dont l'énergie est proche de la limite d'ionisation, il n'est pas possible de faire absorber des photons optiques par les atomes de Rydberg, pour continuer à augmenter la valeur de  $\ell$ , sans excéder la limite d'ionisation. FREEMAN et KLEPPNER [7] ont proposé une méthode, appelée "Stark switching", pour transférer des atomes vers des états de  $\ell$  élevés. KOCH [22] a utilisé l'excitation par laser des atomes de Rydberg dans une collision rapide pour peupler sélectivement des états de Rydberg de grand  $\ell$ . Ces méthodes ne sont cependant pas capables de produire des atomes dans l'état de  $m$  maximum ( $|m| = n-1$ ). Pour  $\ell = n-1$ ,  $|m|$  peut prendre toutes les valeurs comprises entre 0 et  $n-1$  et non uniquement  $|m| = n-1$ . KLEPPNER a pu préparer l'état  $|m| = n-1$  pour lequel  $\ell$  a forcément la valeur maximale  $n-1$  ( $\ell \geq m$  pour un état de  $m$  donné). L'expérience a été réalisée sur un jet de Li pour  $n=19$ . L'expérience se fait en effectuant entre niveaux de la multiplicité Stark d'un atome de Rydberg une série de passages adiabatiques rapides produits par un champ microonde, le champ électrique Stark variant linéairement dans le temps. Après les photons optiques de grande énergie, les photons microondes de faible énergie sont utilisés pour transférer aux atomes du moment angulaire à énergie quasi constante.

Le procédé adopté pour la préparation des atomes de lithium dans un état circulaire est le suivant. A partir d'un jet atomique de lithium, on commence par préparer en présence d'un champ électrique Stark des atomes de Rydberg de  $\ell$  petit par la méthode évoquée dans le chapitre IV: l'effet Stark décrit dans le chapitre IV est utilisé pour lever la dégénérescence de la multiplicité  $\ell$ ,  $m$  à  $n$  fixé. On induit alors, grâce à un rayonnement microonde de fréquence appropriée, une série de transitions conduisant à l'état circulaire. Chaque transition de la série correspond à une résonance à un photon microonde qui transfère les atomes du sous-niveau  $|m| = l$ ,  $n_1=0$  au sous-niveau  $|m| = l+1$ ,  $n_1=0$ . Ce processus s'arrête lorsque les atomes arrivent à l'état circulaire, c'est-à-dire  $|m| = n-1$ . Le champ Stark est choisi de façon à bien séparer les sous-niveaux Stark en restant dans la zone de inter- $\ell$ -mixing tout en évitant que des anticroisements entre sous-niveaux de  $n$  différents (inter- $n$ -mixing) ne viennent embrouiller la situation. Typiquement pour  $n=25$ , le champ électrique est de l'ordre de 200V/cm ce qui correspond à un écart entre sous-niveaux Stark de  $\sim 10$ GHz.

Dans notre expérience, nous avons utilisé cette méthode pour la préparation des états circulaires. Le montage expérimental sera décrit en détail plus loin dans ce mémoire. Nous avons choisi de préparer des atomes de lithium dans des états circulaires parce que le lithium est l'alcalin le plus léger. Il a un nombre d'électrons de 3, et a des caractéristiques proches de celles de l'hydrogène. En particulier, seuls les niveaux S ont des orbites pénétrantes. Nous verrons plus loin en quoi cette caractéristique facilite la préparation des états circulaires. Nous avons choisi d'exciter les niveaux  $n=24$  et  $n=25$  dans la mesure où il s'agit des niveaux les plus bas, et donc les plus faciles à préparer, pour lesquels nous possédions une source microonde capable d'introduire une transition entre circulaires (transition  $n=25$   $|m| = 24$  vers  $n=24$   $|m| = 23$  à 447GHz).

#### V. 1. PRINCIPE DE LA PREPARATION DES ETATS CIRCULAIRES DANS LE CAS DE L'HYDROGENE

Dans ce paragraphe, nous allons présenter théoriquement le principe de préparation des états circulaires de l'hydrogène, puis nous extrapolerons au cas des alcalins dans le paragraphe suivant.

$|m| = 0 \ 1 \ 2 \ 3 \ 4 \ 5 \ 6 \ 7 \ 8 \ 9 \ 10 \ 11 \ 12 \ 13 \ 14 \ 15 \ 16 \ 17 \ 18 \ 19 \ 20 \ 21 \ 22 \ 23 \ 24$

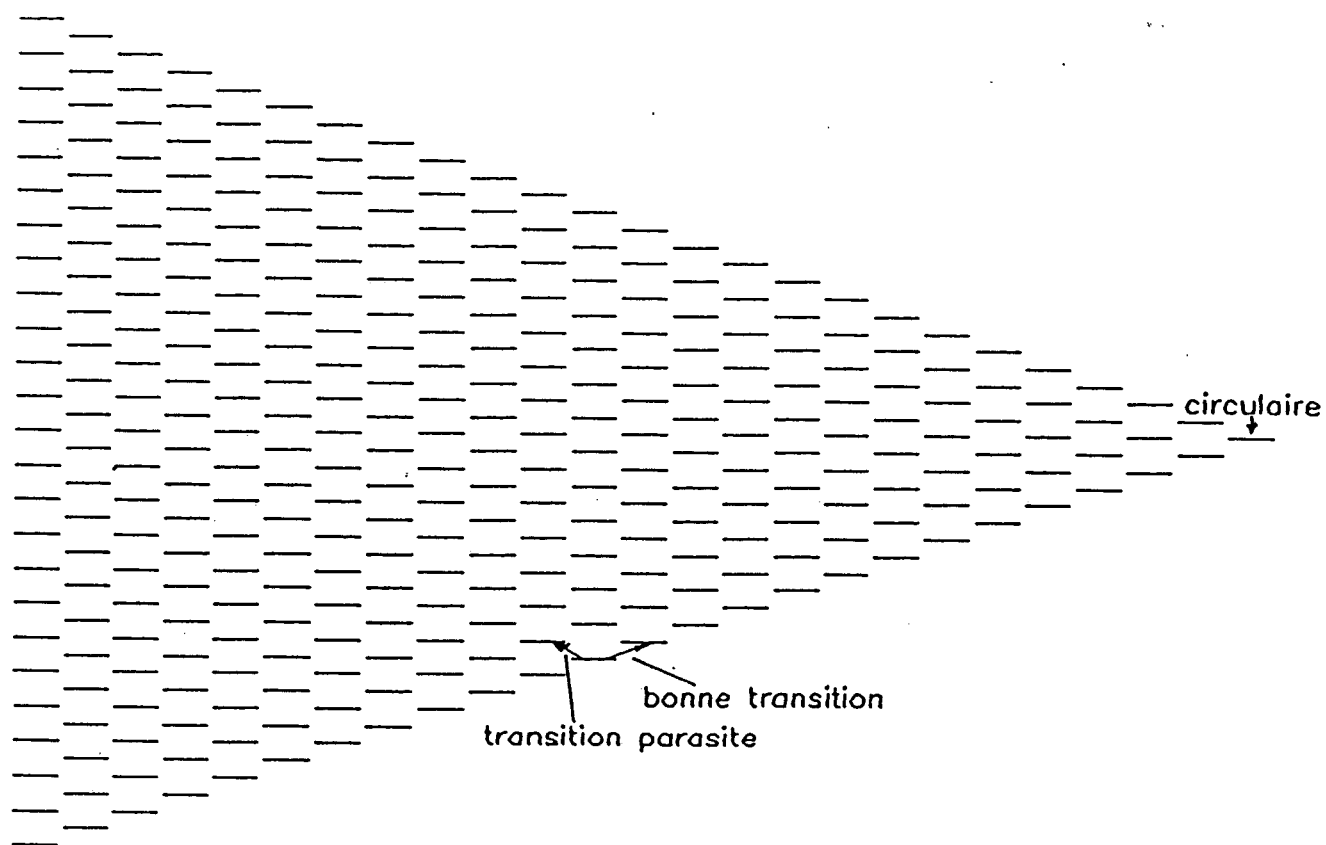


Fig.V-1 Spectre Stark de l'hydrogene

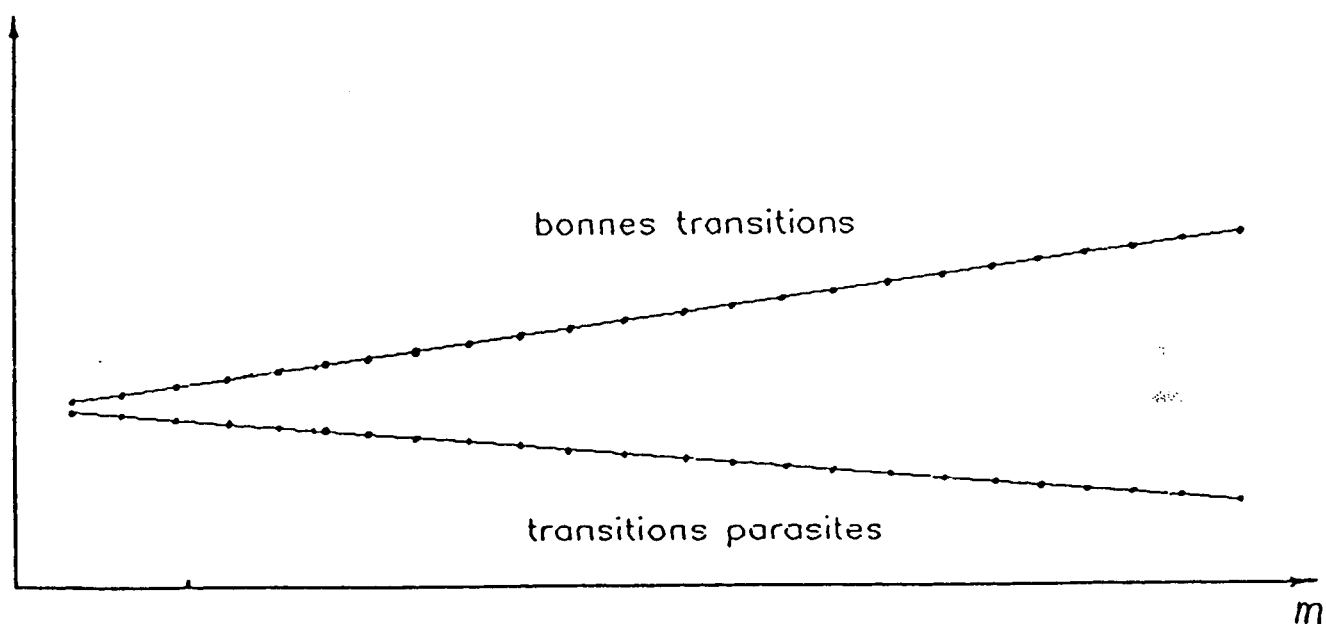


Fig.V-2 Frequence de transition en fonction de  $m$



### V.1.1. Effet Stark de l'hydrogène

Le problème d'un atome d'hydrogène plongé dans un champ électrostatique uniforme faible est résolu analytiquement par la théorie des perturbations. La symétrie de révolution est brisée. Les sous-niveaux  $l, m$  à  $n$  fixé (dégénérés dans le cas d'atome isolé) sont levés. L'expression analytique de l'énergie en présence d'un champ électrique est donné dans la formule (I.86).

La figure V-1 présente l'énergie des sous-niveaux Stark ( $n, n_1, m$ ) pour un champ Stark de 194V/cm et pour  $n=25, |m| = 0, 1, \dots, 24$ . Sur cette figure, nous voyons que pour un  $|m|$  donné (pour une colonne), nous avons  $n - |m|$  sous-niveaux. Le sous-niveau  $|m| = 24$  est l'état circulaire. Si un atome d'hydrogène est placé initialement dans le sous-niveau  $|m| = 0, n_1 = 0$  (1er niveau inférieur à gauche), il peut atteindre l'état circulaire après avoir effectué les 24 transitions indiquées par la flèche "bonne transition" dont chacune correspond à une augmentation de  $\Delta |m| = 1$ : transitions  $|n_1=0, |m| = i \rangle \rightarrow |n_1=0, |m| = i+1 \rangle$ . Il existe aussi des transitions qui font diminuer la valeur de  $|m|$  et sont indiquées par la flèche "transition parasite". Nous montrons sur la figure V-2 les fréquences des "bonnes transitions" et des "transitions parasites". On voit que les deux types de transition sont bien séparés en fréquence grâce au terme d'énergie au 2ème ordre des perturbations (c'est-à-dire l'effet Stark quadratique). La fréquence des "bonnes transitions"

$$\Delta E_D = E(n_1=0, m+1) - E(n_1=0, m) = \frac{3}{2} nF - \frac{3}{8} n^4 F^2 (n-3) + \frac{3}{2} n^4 F^2 |m| \quad (V.1)$$

croît linéairement avec  $|m|$ . Celle des "transitions parasites" décroît :

$$\Delta E_P = E(n_1=1, m) - E(n_1=0, m+1) = \frac{3}{2} nF - \frac{3}{8} n^4 F^2 (n-1) - \frac{3}{4} n^4 F^2 |m| \quad (V.2)$$

### V.1.2. Passage adiabatique rapide (P.A.R.)

Lorsque les atomes de Rydberg se trouvent dans le sous-niveau  $m=0, n_1=0$ , nous envoyons sur ceux-ci un champ de microonde à une fréquence accordée à la transition de  $m=0, n_1=0$  à  $|m| = 1, n_1=0$ . En faisant décroître convenablement le champ Stark, toutes les "bonnes transitions" entrent successivement à résonance. Une série de passages

adiabatiques rapides (P.A.R.) est ainsi effectuée. Les atomes de Rydberg passent de l'état  $m=0, n_1=0$  à l'état circulaire  $|m|=n-1, n_1=0$ . Nous donnons dans ce paragraphe l'expression de la probabilité de transition au cours de l'un de ces P.A.R.

Supposons qu'à un instant donné pendant la série des P.A.R. seuls  $|m, n_1=0\rangle$  et  $|m+1, n_1=0\rangle$  sont significativement peuplés. Dans ce cas, la probabilité d'une transition adiabatique entre ces niveaux est [34][23]

$$P_m = 1 - \exp \left[ - \frac{1}{2} \pi |V_m|^2 / \hbar \frac{dW}{dt} \right] \quad (V.3)$$

où  $W$  est la différence d'énergie entre les deux niveaux en absence du champ microonde et  $V_m$  est l'élément de matrice du champ oscillant. Dans le modèle de "l'atome habillé",  $V_m$  est l'écart de niveau à l'anticroisement. Plus concrètement:

$$V_m = \langle n, n_1=0, m+1 | e \vec{E} \cdot \vec{R} | n, n_1=0, m \rangle = eER \quad (V.4)$$

$$\text{avec } R^2 = \frac{9}{4} n^2 a_0^2 (m+1)(n-m-1) \text{ (voir appendice II)}$$

$$\text{et } W = \frac{3}{2} nF. \text{ On a donc :}$$

$$\frac{dW}{dt} = \frac{3}{2} n \frac{dF}{dt} \quad (V.5)$$

D'après la formule (V.3), une grande valeur de  $V_m$  (c'est-à-dire un champ microonde élevé) et une petite valeur de  $dW/dt$  (c'est-à-dire variation lente du champ Stark) se traduisent par une probabilité  $P_m$  très proche de l'unité. La valeur maximum de  $V_m$  est limitée par l'augmentation de la fréquence de Rabi qui croît comme la racine carrée de la puissance de microonde.

Nous allons maintenant déterminer de manière plus précise la valeur des différents paramètres expérimentaux utiles pour préparer les atomes circulaires  $n=25$ .

### V.1.3. Ordre de grandeur des paramètres expérimentaux utiles pour préparer des atomes circulaires $n \sim 25$

#### - champ Stark

Le premier anticroisement entre la multiplicité Stark  $n$  et celle de  $(n+1)$  se produit pour un champ Stark  $1/3n^5$  en unité atomique. Ce

champ correspond au début de la région de inter- $n$ -mixing. Comme nous voulons bien séparer les sous-niveaux Stark tout en restant dans la région de inter- $\ell$ -mixing, il faut choisir une valeur du champ Stark proche mais inférieure à la valeur du premier anticroisement, par exemple  $0,9(1/3n^5)$ . Pour  $n=25$ , nous aurons typiquement:

$$\begin{aligned} F_S &= 0,9 \frac{1}{3n^5} \\ &= 195 \text{ V/cm} \end{aligned} \quad (\text{V.6})$$

- variation temporelle du champ Stark

La figure V-2 présente la fréquence des transitions successives de la série P.A.R. Celle-ci croît linéairement avec  $|m|$ . Soit  $\Delta$  l'augmentation relative de la fréquence entre la première transition ( $m=0$  à  $|m|=1$ ) et la dernière transition ( $|m|=n-2$  à  $|m|=n-1$ ), on a:

$$\Delta = \left[ \Delta E_D(|m|=n-2 \rightarrow |m|=n-1) - \Delta E_D(m=0 \rightarrow |m|=1) \right] \Big/ \frac{3}{2} nF$$

$$\Delta = n^3(n-2)F \quad (\text{V-7})$$

$\Delta$  croît en  $n^4$ , pour  $n=19$ ,  $\Delta = 1,7\%$  (le cas de KLEPPNER [21]). Pour  $n=25$ ,  $\Delta=1,1\%$ . La décroissance du champ Stark doit donc être de l'ordre de cette valeur.

- la puissance convenable de la source microonde

Calculons  $P_m$  (formule V.3) pour le niveau  $n=25$ , pour la transition  $|m|=2 \rightarrow |m|=3$ , pour un champ Stark  $F = 194\text{V/cm}$  dont la variation temporelle est  $(dF/dt)/F = 1,3\%/5\mu\text{s}$ , et pour un flux de microonde de  $\phi=50\mu\text{w}/4\text{cm}^2$ . La fréquence de Rabi est alors  $\omega_R=22\text{MHz}$ . Comme  $(1/\hbar)(d\omega/dt) = 24(\text{MHz})^2$ , la probabilité  $P_m$  de transfert adiabatique est très proche de l'unité:

$$P_m = 1 - \exp \left[ -\frac{1}{2} \pi \omega_R^2 \Big/ \frac{1}{\hbar} \frac{d\omega}{dt} \right] = 1 - 1,7 \cdot 10^{-4} \quad (\text{V.8})$$

En choisissant correctement les paramètres expérimentaux, il est donc possible de préparer des états circulaires de  $n=25$  avec une efficacité de l'ordre de 100%. C'est ce que nous ferons plus loin.

## V.2. PRINCIPE DE LA PREPARATION DES ETATS CIRCULAIRES. GENERALISATION AU CAS D'UN ALCALIN

Un atome alcalin, à la différence d'un atome d'hydrogène, a un coeur non ponctuel. Nous allons, dans ce paragraphe, généraliser la méthode de préparation des états circulaires aux atomes alcalins.

### V.2.1. Effet Stark de l'alcalin

Les énergies des sous-niveaux Stark alcalins peuvent se calculer numériquement (cf. paragraphe II.1). La figure V-3 représente les niveaux Stark du lithium pour  $n=25$ ,  $|m| = 0, \dots, 24$ ,  $F=194\text{V/cm}$ . Notons que les sous-niveaux de la colonne  $|m| = 0$  ne sont pas placés régulièrement. Pour  $m \geq 2$ , les défauts quantiques sont très faibles et les diagrammes d'énergie Stark sont hydrogénoïdes. La figure V-4 représente les fréquences des transitions  $|m| = 0$  vers  $|m| = 1$  et  $|m| = 1$  vers  $|m| = 2$  qui sont loin de la prédiction hydrogénoïde. Pour les différents alcalins, plus l'atome est léger (moins les orbites sont "pénétrantes"), plus les caractéristiques sont proches de celles de l'hydrogène.

Pour faire la série de P.A.R. pour une fréquence de microonde fixée, il faut que les fréquences des différentes "bonnes transitions" varient de façon monotone. La figure V-4 montre que pour des alcalins légers comme le lithium, il faut partir de  $|m| \geq 2$ . Par contre, pour des alcalins lourds comme le césium, il serait préférable de partir de  $|m| \geq 3$ .

L'excitation optique des niveaux de Rydberg du lithium en trois échelons permet d'atteindre facilement  $|m| = 2$  ou  $|m| = 3$ . Pour les autres alcalins, l'excitation optique se fait généralement en deux échelons et il peut y avoir intérêt à utiliser deux sources microonde dont l'une servirait à induire la première transition de la série de P.A.R.

### V.2.2. Préparation de l'état $|m=2, n_1=0\rangle$ du lithium

Nous allons nous restreindre au cas du lithium. La série de P.A.R. commence à partir de  $m \geq 2$ ,  $n_1 = 0$ . Nous allons voir comment peupler efficacement cet état et choisir la meilleure configuration de polarisation pour les trois lasers excitateurs.

Lors de l'excitation laser en échelons, on a pour chaque échelon élémentaire d'excitation laser:

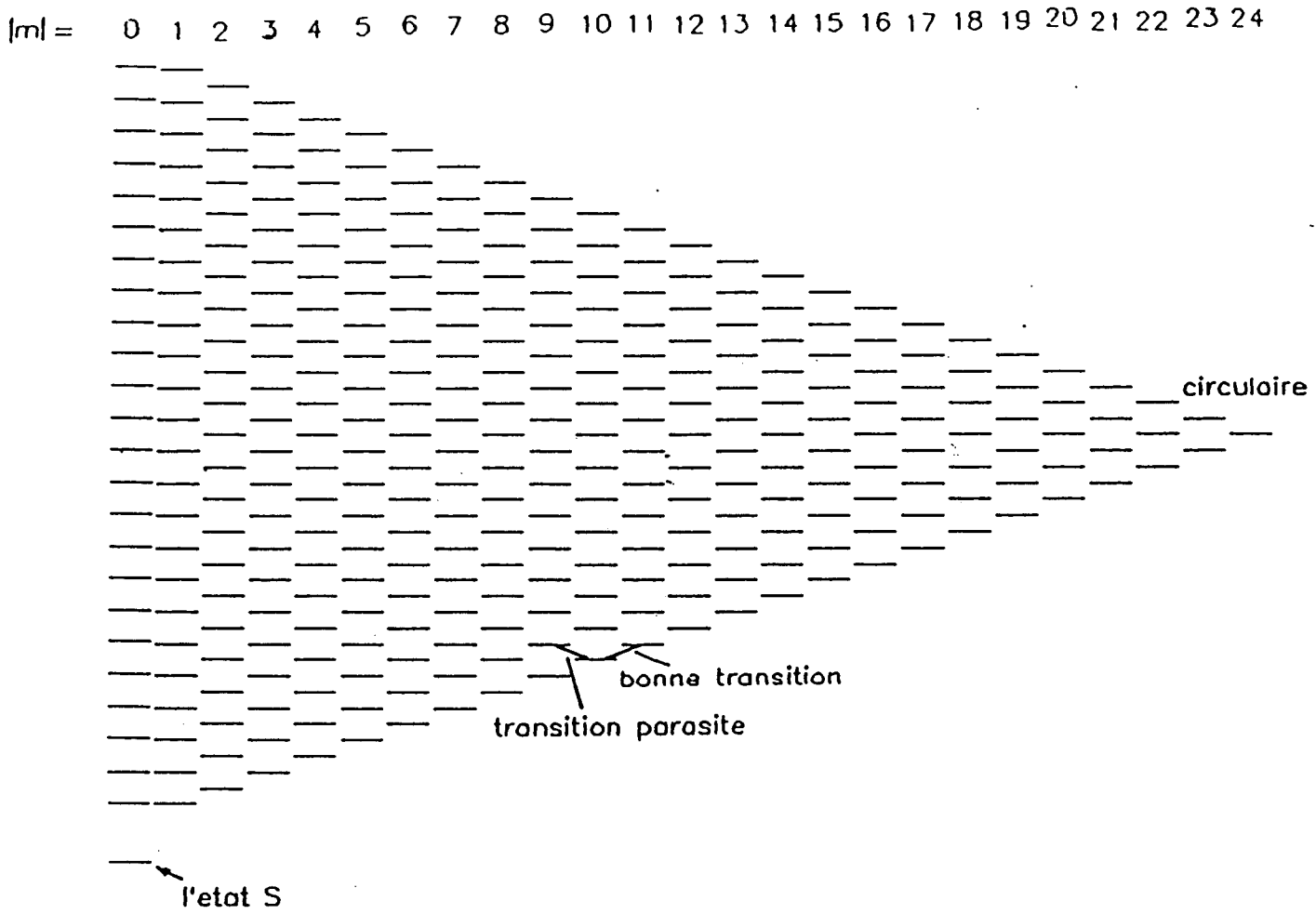


Fig.V-3 Spectre Stark du lithium

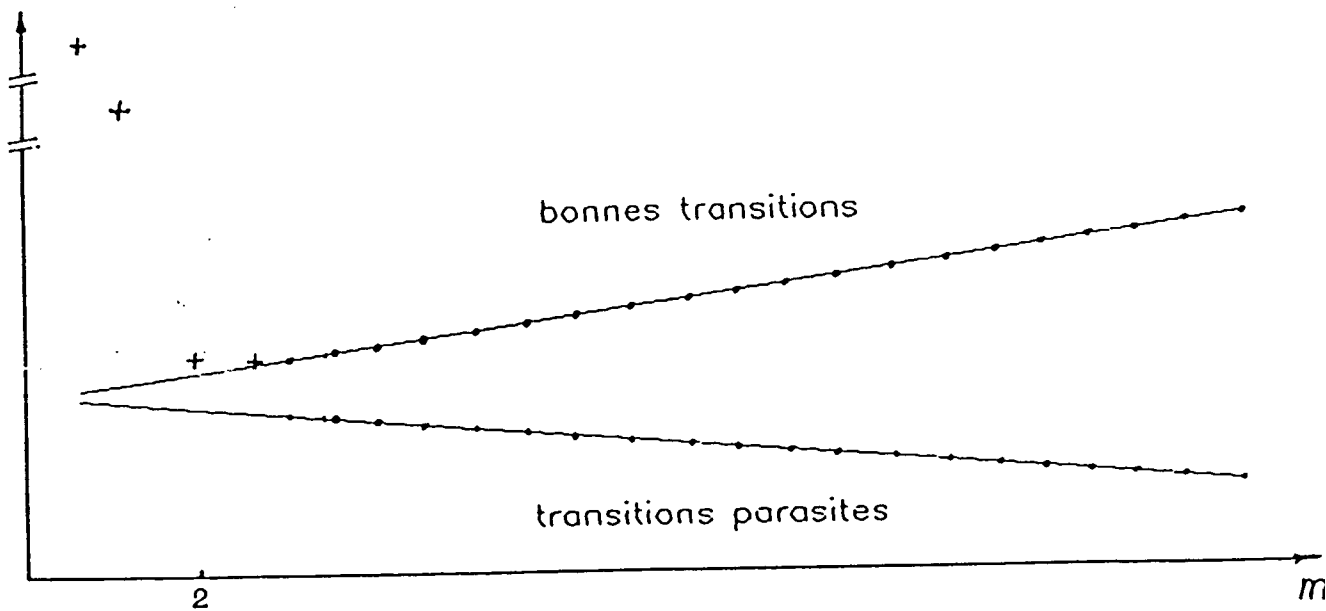


Fig.V-4 Frequence de transition en fonction de m

$$J_{\text{final}} = J_{\text{initial}} \pm 1 \quad (\text{V.9})$$

et  $m_{J_{\text{final}}} = m_{J_{\text{initial}}} + (0, \pm 1)$

$J_{\text{initial}}$  (final) et  $m_{J_{\text{initial}}}$  (final) représentent le module et la composante sur l'axe de quantification du moment cinétique total  $\vec{J} = \vec{L} + \vec{S}$  du niveau Initial (final).

De manière plus précise :

- i) Si les 3 faisceaux laser sont polarisés linéairement le long de la direction du champ Stark (polarisation  $\pi, \pi, \pi$ ), on a pour chaque échelon  $m_{J_{\text{initial}}} = m_{J_{\text{final}}}$ . L'état final est alors  $m_J = \pm 1/2$ . Comme  $m_J = m_\ell + m_S$ , on a donc  $m_\ell = 0$  et  $m_\ell = 1$ .
- ii) Si les 3 polarisations sont circulaires (polarisation  $\sigma^+, \sigma^+, \sigma^+$ ), on a pour chaque échelon  $m_{J_{\text{final}}} = m_{J_{\text{initial}}} + 1$ . L'état final correspond alors à  $m_J = 5/2, 7/2$ .  $m_\ell$  peut alors être égal à 2 ou 3 ( $m_\ell = 4$  est exclu puisque l'on a  $L=3$  ou 1. Partant d'un niveau S de  $L=0$ , on ne peut en 3 échelons qu'atteindre aux niveaux P ( $L=1$ ) ou F ( $L=3$ )).

Il existe encore d'autres possibilités de polarisation comme  $\pi\pi\sigma$ ,  $\pi\sigma\sigma$ ... etc, dans lesquelles le nombre de valeurs possibles de  $m_\ell$  est plus grand. Dans ces cas, on prépare une combinaison de  $m_\ell$  parmi les sept valeurs possibles  $m_\ell = 0, \pm 1, \pm 2, \pm 3$ .

Nous savons qu'en présence d'un champ électrique Stark, un état de Rydberg de  $|m_\ell|$  donné se décompose en un peigne de  $(n - |m_\ell|)$  raies. Calculons le poids de ces différentes raies. Soit  $f_{if}$  la force d'oscillateur entre le niveau de départ 3d du dernier échelon et un sous-niveau Stark:

$$f_{if} \sim |\langle f | R | i \rangle|^2 \quad (\text{V.10})$$

où  $|i\rangle = |3, D, m'\rangle$  dans la base sphérique

et  $|f\rangle = |n, n_1, m_\ell\rangle$  dans la base parabolique.

On peut projeter  $|f\rangle$  sur la base sphérique:

$$|f\rangle = \sum_{\ell=m_\ell}^{n-1} \alpha_\ell \begin{matrix} n, n_1, m_\ell \\ \ell \end{matrix} |n, \ell, m_\ell\rangle \quad (\text{V.11})$$

D'après la règle de sélection  $L_{\text{final}} = L_{\text{initial}} \pm 1$ , on a :

$$f_{if} \sim |\alpha_P(n_1) \langle nF m_\ell | R | 3D m' \rangle + \alpha_P(n_1) \langle nP m_\ell | R | 3D m' \rangle|^2$$

Nous avons vu dans le chapitre III que  $|\langle nF | R | 3d \rangle|^2$  est 35 fois plus grand que  $|\langle nP | R | 3D \rangle|^2$ . La projection sur  $|nF\rangle$  domine et :

$$f_{if} \sim |\alpha_P(n_1) \langle nF m_\ell | R | 3D m' \rangle|^2 \quad (\text{V.12})$$

On remarque que le poids des différentes raies du spectre, qui est proportionnel à  $f_{if}$ , dépend de l'indice  $n_1$  du sous-niveau Stark sélectionné par le laser IR, et de  $m_\ell$  et  $m'$  qui sont liés aux polarisations des lasers.

Nous avons étudié l'allure des spectres Stark correspondant à diverses combinaisons des polarisations des 3 lasers:  $\pi\pi\pi$ ,  $\pi\pi\sigma$ ,  $\pi\sigma\sigma$ ,  $\sigma\sigma\pi$ ,  $\sigma\sigma\sigma$  et  $\sigma^+\sigma^+\sigma^+$ . Les spectres Stark de  $\pi\pi\pi$ ,  $\pi\sigma\sigma$ ,  $\sigma^+\sigma^+\sigma^+$  sont présentés respectivement sur les figures V-5a,b,c, le système d'acquisition est à chaque fois le même et l'on a  $n=20$  et  $F=415\text{V/cm}$ .

Malgré leurs apparentes complexités, ces spectres se révèlent être la superposition de 2 séries de pics, dont la position et la dépendance différente en fonction de  $n_1$  permet la distinction et l'identification. La figure V-6 représente l'allure des spectres théoriques correspondant à  $|m| = 0, 1, 2, 3$ .

Ces spectres sont obtenus par la méthode suivante : on calcule tous les éléments de matrice de l'hamiltonien d'un atome de lithium en présence d'un champ Stark, puis on diagonalise cette matrice. Les valeurs propres obtenues sont les énergies des sous-niveaux Stark. Chaque vecteur propre est projeté sur l'espace des états  $nF$  en champ nul. Le carré du module de cette projection  $|\alpha_F(n_1)|^2$  est la quantité cherchée. On remarque que les séries  $|m| = 0$  et  $|m| = 1$  ont 3 "bosses". La série  $|m| = 0$  contient une raie isolée qui correspond à l'état  $nS$ . La série  $|m| = 2$  a 2 "bosses". La série  $|m| = 3$  est la plus simple et n'a qu'une seule "bosse" ayant une forme en "cloche".

Il est possible de comparer les spectres Stark expérimentaux et théoriques.

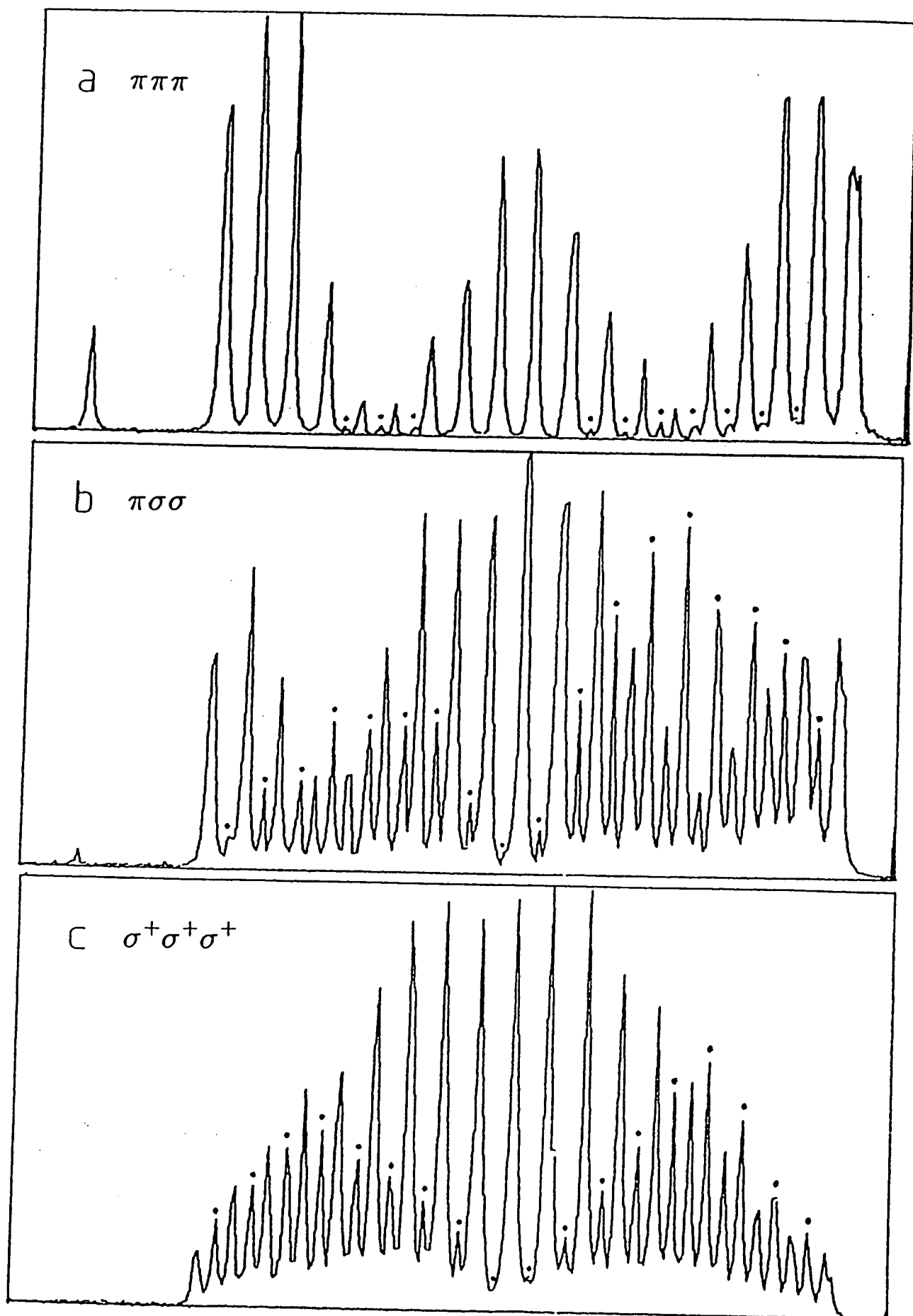


Fig. V-5



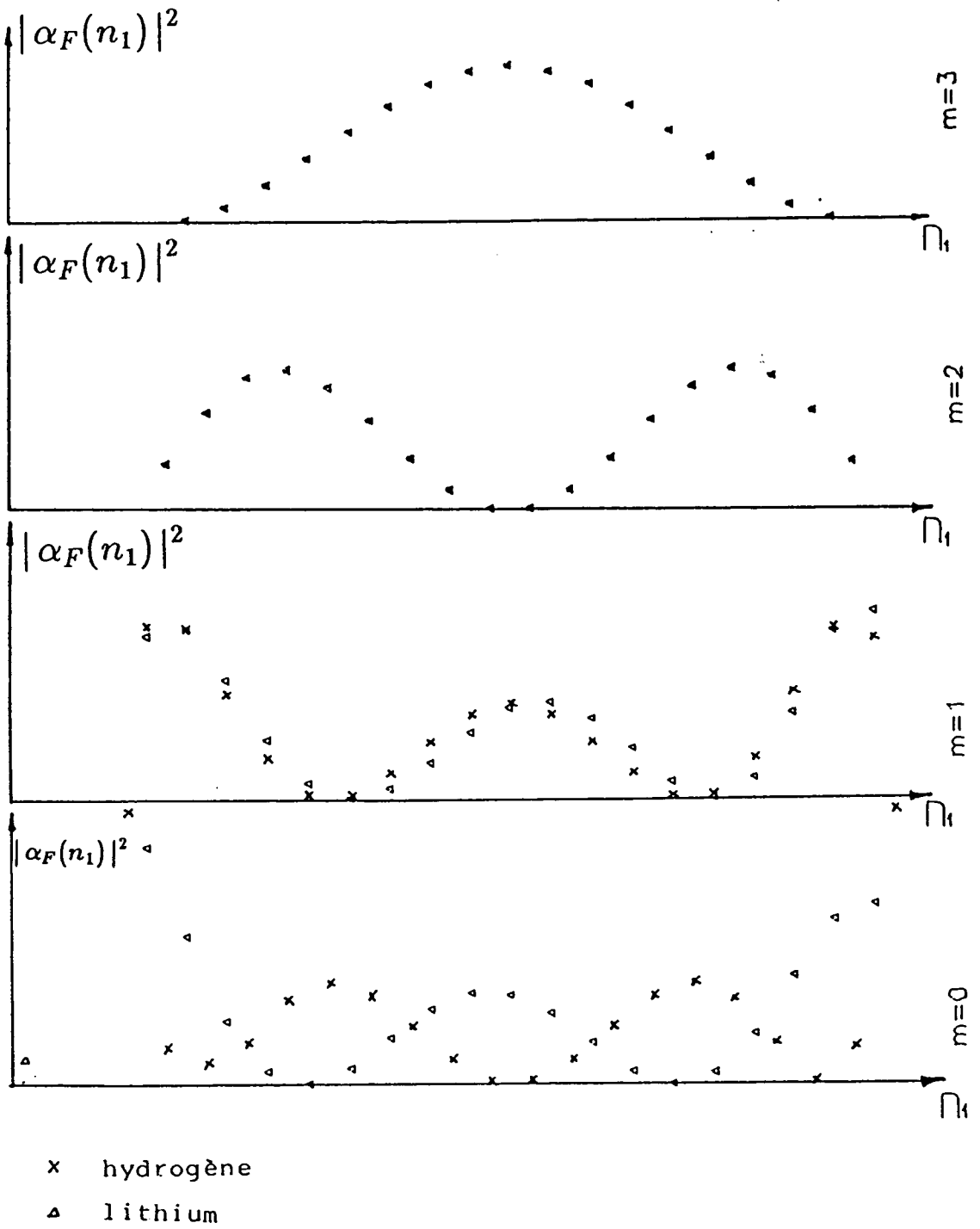


Fig.V-6

- (1) Sur la figure V-5a (polarisation  $\pi\pi\pi$ ) on observe les 2 séries  $|m| = 0$  et  $|m| = 1$  qui sont quasi-dégénérés en énergie et qui ont la même structure en intensité. Une série parasite correspondant à  $|m| = 2$  apparaît également. Elle est due aux polarisations imparfaites  $\pi\pi\pi$ . Cette configuration est la meilleure pour préparer l'état  $nS$ .
- (2) Sur la figure V-5b (polarisation  $\pi\sigma\sigma$ ) apparaissent 2 séries de pic, la série  $|m| = 2$  et les séries  $|m| = 0, 1, 3$  qui sont quasi-dégénérées entre elles. Les pics de la série  $|m| = 2$  ont une structure d'intensité en 2 "bosses" et sont marqués par les petits ronds.
- (3) La figure V-5c (polarisations  $\sigma^+\sigma^+\sigma^+$ ) présente un beau spectre particulièrement intéressant. Il existe seulement 2 séries de pics correspondant à  $m_l = 2$  ("forme à 2 bosses") et  $m_l = 3$  ("forme en cloche"), plus une série parasite de  $|m_l| = 0, 1$  due aux polarisations imparfaites de  $\sigma^+\sigma^+\sigma^+$ . Cette configuration est choisie pour préparer le plus efficacement le sous-niveau de départ du P.A.R. vers l'état circulaire  $m_l=2, n_1=0$ . Les raisons de ce choix sont les suivantes:
- l'intensité du pic  $m_l=2, n_1=0$  est maximum en comparant aux autres configurations.
  - le contraste en intensité est maximum par rapport aux pics voisins des séries de  $m_l=3$ , et  $m_l=0, 1$ .
  - En tournant le polariseur (un rhomboïdre) de  $\pi/2$ , on passe de 3 photons  $\sigma^+$  à 3 photons  $\sigma^-$ , ce qui permet d'exciter séparément  $m_l=2$  et  $m_l=-2$ . On peut ainsi atteindre séparément avec la série de P.A.R. les niveaux circulaires droits:  $m_l=+(n-1)$  et circulaires gauches:  $m_l=-(n-1)$ . Ce qui pourrait être intéressant pour les études expérimentales ultérieures.

### V.2.3. Ordre de grandeur des paramètres expérimentaux

Ils sont les mêmes que pour l'hydrogène (§ V.1.3.) car pour  $m \geq 2$  les "bonnes transitions" ont des fréquences quasi-hydrogénoïdes (voir fig. V-4).

### V. 3. MONTAGE EXPERIMENTAL

Pour préparer les atomes circulaires, nous avons utilisé une version légèrement modifiée du montage qui avait permis d'étudier l'effet Stark du lithium (voir figure IV-1).

Pour faire interagir les atomes de Rydberg préparés à l'intérieur du multiplaque, avec une microonde dont la fréquence est de l'ordre de 9 à 10GHz, un cornet microonde est placé au-dessus du multiplaque, la plaque supérieure du multiplaque étant remplacée par une grille transparente à la microonde: la direction de la grille étant orthogonale à la polarisation de la microonde. Notons, pour être précis, que le cornet est constitué d'une transition câble coaxial-guide d'onde bande X: 8 à 12GHz.

La plaque inférieure du multiplaque est percée d'un trou de 5mm de diamètre permettant de faire passer les lasers. Il est possible ainsi de préparer les atomes avec des lasers de polarisation  $\pi$ ,  $\sigma$  ou  $\sigma^\pm$ , par rapport à la direction du champ électrique Stark (axe du multiplaque). Cette plaque est également peinte en noir à l'aide de peinture "aquadag" afin d'absorber la microonde et d'éviter les ondes stationnaires.

Ce condensateur a certains avantages :

1. Comme l'excitation des états de Rydberg et la série de P.A.R. se passent au centre du condensateur multiplaque, on a toujours un champ Stark assez homogène car les trous et la grille sont à une grande distance du centre (2,5cm).
2. Le cylindre de diamètre 2,5cm constitué des 14 plaques du multiplaque forme une sorte de guide pour la microonde bande X. Comme la distance entre 2 plaques consécutives, 2mm, est très inférieure à  $\lambda/2$  ( $\lambda$ , longueur d'onde de microonde  $\sim 3$ cm), la microonde ne peut se propager en dehors du cylindre. Cette coupure évite que des transitions microondes inutiles et nuisibles se produisent en dehors du centre du multiplaque, dans une région de l'espace où le champ Stark n'a pas la "bonne" valeur. Pour éliminer complètement ces transitions parasites, la microonde est coupée par un modulateur à diode pin 7 microsecondes après l'excitation optique. Cette précaution s'est avérée inutile dans la plupart des cas.

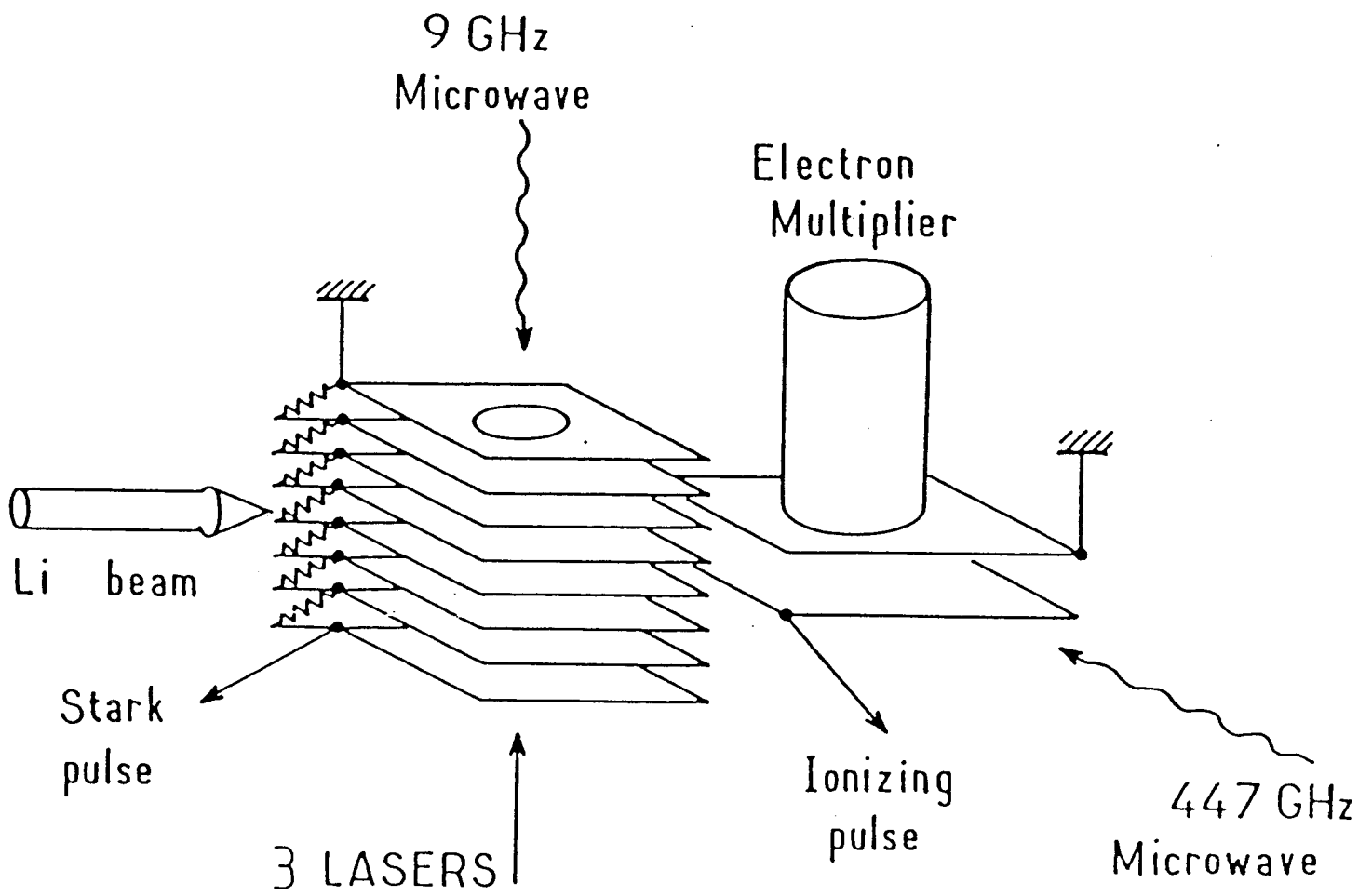


Fig.V-7

Les résistances de  $3,3\text{M}\Omega$  du montage initial ont été remplacées par des résistances de  $2,2\text{K}\Omega$  permettant d'appliquer un champ Stark variant dans le temps plus rapidement. Un pulse électrique de  $\sim 1000\text{V}$  est appliqué sur le multiplaque. Ce pulse décroît après l'excitation optique avec une variation relative de  $1,3\%$  en  $5$  microsecondes (un peu plus grande que la variation des fréquences du P.A.R.). Ce temps de  $5\mu\text{s}$  correspond approximativement au temps de vol dans le multiplaque.

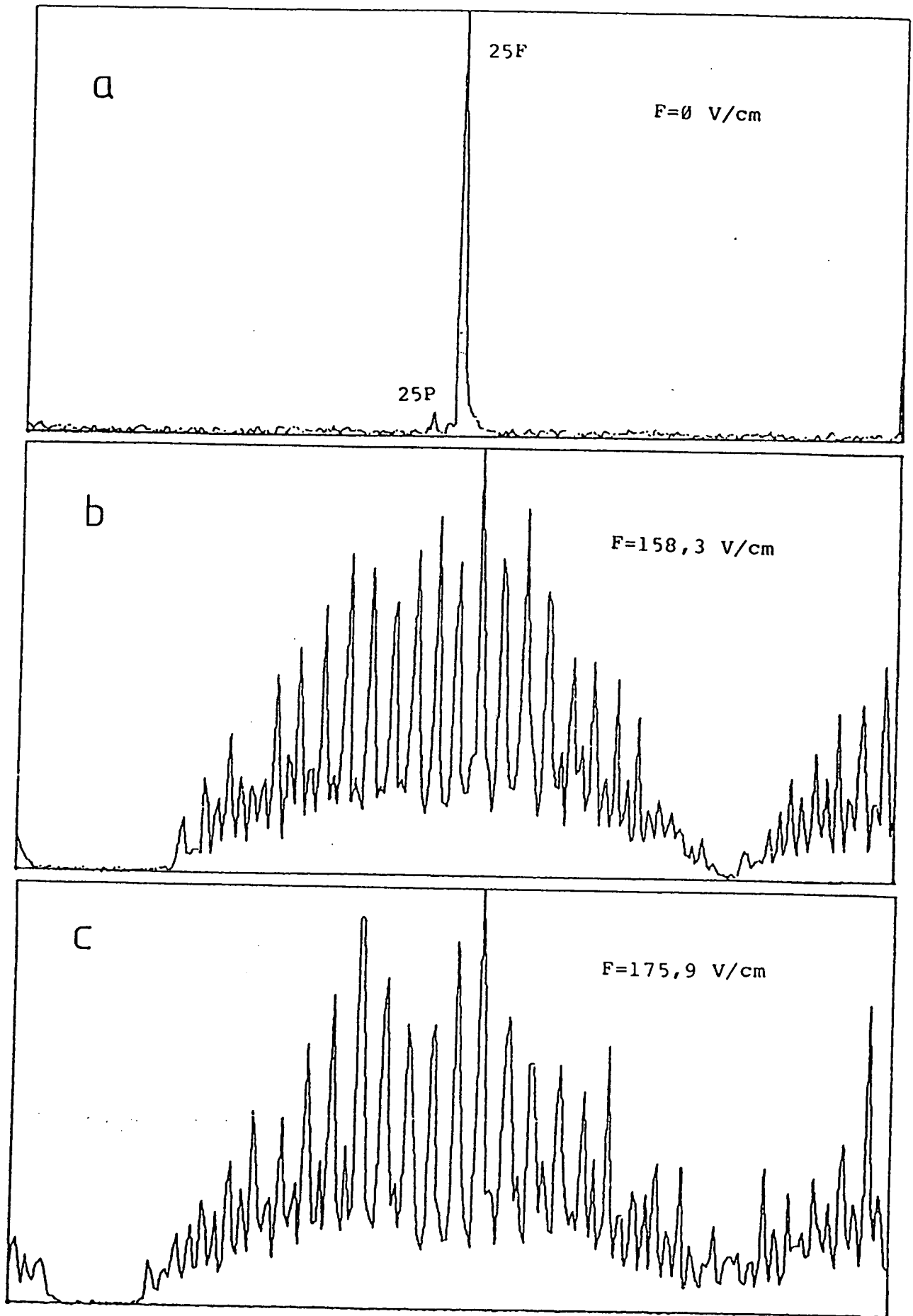
#### V.4. MISE EN EVIDENCE D'UN ETAT CIRCULAIRE

##### V.4.1. Préparation de l'état $|m=2, n_1=0\rangle$

Pour atteindre l'état circulaire de  $|m| = n-1$  maximum, on peut partir soit de l'état  $|m=3, n_1=0\rangle$  (état de  $|m|$  maximum avec 3 échelons d'excitation optique), soit de l'état  $|m=2, n_1=0\rangle$ , comme point de départ de la série de P.A.R. Nous sommes en fait partis de  $m=2$  pour deux raisons: (1) comme nous l'avons vu plus haut, la série  $|m| = 3$  est en quasi-dégénérescence avec les séries  $|m| = 0, 1$ . Avec un laser de  $2\text{GHz}$  de largeur spectrale, il n'est pas possible d'exciter  $|m=3, n_1=0\rangle$  sélectivement; (2) de plus, la force d'oscillateur de la transition vers  $|m=3, n_1=0\rangle$  est très, très faible ( $2 \cdot 10^{-3}$ ), dix fois plus faible que celle correspondante pour  $|m=2, n_1=0\rangle$  ( $2 \cdot 10^{-2}$ ). Le défaut quantique de  $nD$  étant très petit  $\delta_{nD}=0.002$ , la fonction d'onde  $|m=2, n_1=0\rangle$  est quasi-hydrogénoïde et ce niveau est un bon point de départ pour la série de P.A.R. (voir V.2).

Nous présentons sur les figures V-8a,b,c,d,e une série de spectres Stark  $n=25$  obtenus avec trois lasers polarisés  $\sigma^+$  pour des valeurs croissantes du champ Stark. Ces spectres montrent le passage de la région de inter- $l$ -mixing à celle de inter- $n$ -mixing, en augmentant le champ Stark.

La figure V-8a représente le signal de Rydberg 25F et 25P en champ nul. De la figure V-8b à la figure V-8d la valeur du champ Stark augmente et la multiplicité s'étale de plus en plus. Notons que l'intensité du sous-niveau  $|m=2, n_1=0\rangle$  qui nous intéresse augmente avec le champ. La multiplicité  $n=25$  reste séparée de la multiplicité  $n=26$  pour un champ Stark inférieur au champ où aura lieu le premier anticroisement entre la multiplicité  $n$  et celle de  $(n+1)$ . Ce champ  $1/3n^5$  en u.a. est de  $175,5\text{V/cm}$  pour  $n=25$ . Les valeurs du champ des figures V-8c et d sont supérieures à cette valeur. On voit que la multiplicité  $n=25$  est fortement



-300GHz

Fig.V-8 a,b,c

300GHz

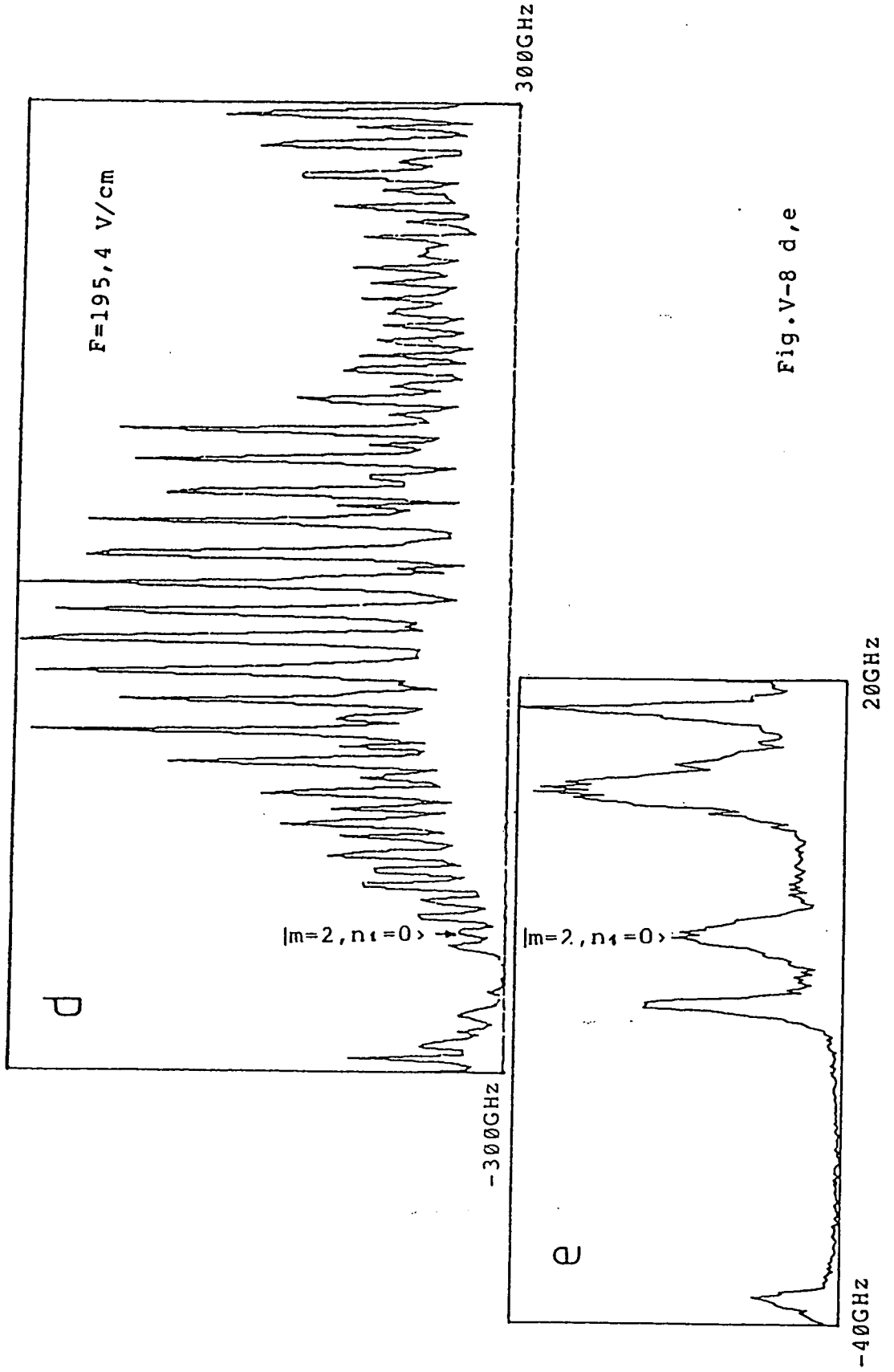


Fig.V-8 d,e

mélangée avec la multiplicité  $n=26$ . Le champ Stark de la figure V-8d correspond à  $0,9F_{\text{anti}}$  avec  $n=24$ . Il nous est possible de bien séparer les sous-niveaux Stark de la multiplicité  $n=25$  de ceux de la multiplicité  $n=24$  et l'on peut facilement identifier le sous-niveau  $|m=2, n_1=0\rangle$ . Sur la figure V-8e, nous avons représenté le détail du spectre Stark de la figure V-8d autour du sous-niveau  $|m=2, n_1=0\rangle$ .

### Récapitulation des conditions

Pour peupler le plus efficacement possible le sous-niveau Stark  $|n, m=2, n_1=0\rangle$ , nous utilisons:

- Trois lasers de polarisation  $\sigma^+$ . Ceci est réalisé à l'aide d'un rhomboèdre. Les lasers excitent seulement les séries  $m=2$  et  $m=3$ .
- La valeur du champ Stark est choisie égale à  $0,9F_{\text{anti}}$  ( $F_{\text{anti}} = 1/3n^5$  u.a. est le point où il aura lieu le 1er anticroisement entre la multiplicité de  $n$  et celle de  $n+1$ ).
- La variation relative du champ Stark  $\Delta F/F$  est de  $\alpha(\Delta f/f)$  où  $\alpha \geq 1$  et où  $\Delta f/f$  est la variation relative de fréquence des "bonnes" transitions du P.A.R. de  $|m|$  minimum à  $|m|$  maximum :

$$\frac{\Delta f}{f} = n^3 (|m|_{\text{max}} - 3) \quad (\text{cf. fig.V-4})$$

Sur les figures V-8d,e, nous présentons le spectre Stark obtenu suivant les conditions décrites au-dessus pour  $n=25$  avec  $F=195.4\text{V/cm}$ . La figure V-8d représente le spectre Stark de toute la multiplicité  $n=25$  avec les deux séries ( $m=2,3$ ) superposés. Ce spectre est obtenu en utilisant le balayage grossier du laser Quantel. Le 2ème pic à gauche présente le sous-niveau  $|n=25, m=2, n_1=0\rangle$ . La figure V-8e présente le spectre local autour du  $|n=25, m=2, n_1=0\rangle$ , obtenu en balayant le laser Quantel suivant le mode lent de  $-40\text{GHz}$  à  $+20\text{GHz}$ . On sélectionne facilement le sous-niveau  $|m=2, m_1=0\rangle$  qui nous intéresse sur ce spectre local.



#### V.4.2. Passage adiabatique rapide (P.A.R.)

Une fois préparé le niveau  $|m=2, n_1=0\rangle$  en présence du champ Stark convenable, nous faisons interagir les atomes avec une microonde pour effectuer la série de P.A.R.

Nous utilisons un klystron (bande X, modèle X.13) émettant de 8GHz à 12GHz avec une puissance maximum de 200mW.

La fréquence de la microonde est déterminée par l'écart en fréquence entre les sous-niveaux  $|n, m+1, n_1=0\rangle$  et  $|n, m, n_1=0\rangle$  ("bonnes transitions") qui est voisin de  $3/2nF$  u.a. Dans notre cas, pour  $n=25$  et  $F=195,4V/cm$ , cette fréquence est de 9.2GHz.

La puissance que nous avons utilisée est de  $50\mu w$ . La fréquence de Rabi est alors de l'ordre de 20MHz. Cette valeur est inférieure à la variation de fréquence (100MHz) des "bonnes transitions", due à l'effet Stark du 2ème ordre (on évite ainsi les "transitions parasites"), mais reste suffisante pour que la probabilité de transition associée à chaque P.A.R. reste très proche de l'unité dans un champ Stark dont la variation relative est de 1,3% en  $5\mu s$  (voir équation V.8).

#### V.4.3. Détection des atomes circulaires par un champ ionisant

Cette technique est utilisée de manière standard pour détecter les atomes de Rydberg "ordinaires" de faible moment angulaire. Nous avons vu au paragraphe I.3.2. que les atomes circulaires s'ionisent dans un champ électrique plus fort que les autres atomes de Rydberg. Avec la rampe ionisante qu'on utilise habituellement, qui croît en un temps fini (typiquement 5 à  $10\mu s$ ), le signal d'ionisation des atomes circulaires apparaît plus tard dans le temps, ce qui nous permet de l'identifier simplement.

Il est facile de voir sur la fig. I-10 qu'en passant de  $|m=2, n_1=0\rangle$  à  $|m=n-1, n_1=0\rangle$ , on observe une modification du signal d'ionisation liée à la valeur particulièrement élevée du champ d'ionisation des états circulaires.

#### V.4.4. Signal d'ionisation expérimental d'un état circulaire

La figure V-9 montre les signaux d'ionisation obtenus expérimentalement après avoir préparé les atomes dans le niveau  $|n=25, m=2, n_1=0\rangle$  et effectué la série de P.A.R. vers l'état circulaire. La figure V-9c présente le signal d'ionisation correspondant à l'état  $|n=25, m=2, n_1=0\rangle$ . Le pic à gauche (en champ ionisant faible) correspond aux états  $|n=25, m=0$  ou  $1$ ,

gauche (en champ ionisant faible) correspond aux états  $|n=25, m=0 \text{ ou } 1, n_1=1 \text{ ou } 0\rangle$  qui ne participent pas à la série de P.A.R. Ces états sont préparés de manière parasite par le troisième laser IR qui n'est pas suffisamment fin pour résoudre la structure Stark  $n=25$  (voir fig.V-8e). Le pic à droite (en champ ionisant plus fort) présente le "vrai" état de départ  $|n=25, m=2, n_1=0\rangle$  qui s'ionise dans un champ de  $1,44\text{kV/cm}$ , en accord avec la valeur calculée par la formule hydrogénéoïde semi-empirique (voir fig.I-10). Cet accord vient de ce que les défauts quantiques sont très petits pour  $l \geq 2$  ( $\delta_D=0,047$ ).

La figure V-9a présente les signaux d'ionisation des états circulaires. On observe essentiellement 3 pics, plus un petit pic en champ ionisant faible ( $1,1\text{kV/cm}$ ) provenant de  $|n=25, m=0 \text{ ou } 1, n_1=1 \text{ ou } 0\rangle$  qui n'a pas participé à la série de P.A.R. Le pic central, parmi les trois, peut être attribué à l'état circulaire  $|n=25, m=24, n_1=0\rangle$ . Les 2 pics latéraux correspondent aux états circulaires  $|n=24, m=23\rangle$  et  $|n=26, m=25\rangle$  peuplés à partir de  $n=25$  par transfert thermique. Les valeurs du champ ionisant des 3 pics  $1,7\text{kV/cm}$ ,  $2,0\text{kV/cm}$  et  $2,4\text{kV/cm}$ , sont en bon accord avec le calcul de la théorie hydrogénéoïde (fig.I.10). Nous avons observé par ailleurs les signaux d'ionisation des circulaires  $n=24$  et  $n=26$ , en les préparant directement et nous avons vérifié qu'ils s'ionisent dans le champ correspondant aux pics latéraux  $1,7\text{kV/cm}$  et  $2,4\text{kV/cm}$ .

Le temps caractéristique  $\tau_C$  du transfert thermique du circulaire  $n=25$  au circulaire  $n=24$  est de  $62\mu\text{s}$ . Ce temps s'obtient en divisant la durée de vie spontanée:  $875\mu\text{s}$  par le nombre moyen de photons thermiques par mode:  $\bar{n} = kT/h\nu \sim 14$  à  $300^\circ\text{K}$ . Le temps caractéristique du transfert thermique est comparable avec le temps de vol des atomes ( $28\mu\text{s}$ ) entre l'excitation et la détection distante de  $5\text{cm}$  (vitesse des atomes détectés  $1780\text{m/s}$ ), ce qui explique l'importance des pics latéraux dus au champ thermique. Nous avons vérifié qu'en diminuant le délai du pulse de champ ionisant, les transferts thermiques sont réduits d'autant.

La figure V-9d représente le pulse de champ ionisant. Pendant la partie montante de celui-ci, le champ électrique croît presque linéairement avec le temps avec une pente égale à  $0,3\text{kV/cm}/\mu\text{s}$ . Cette rampe nous permet de détecter sélectivement les différents sous-niveaux Stark de  $|m|$  différents. Cette rampe démarre  $23\mu\text{s}$  après l'excitation et les atomes circulaires  $n=25$  sont détectés  $8\mu\text{s}$  plus tard.

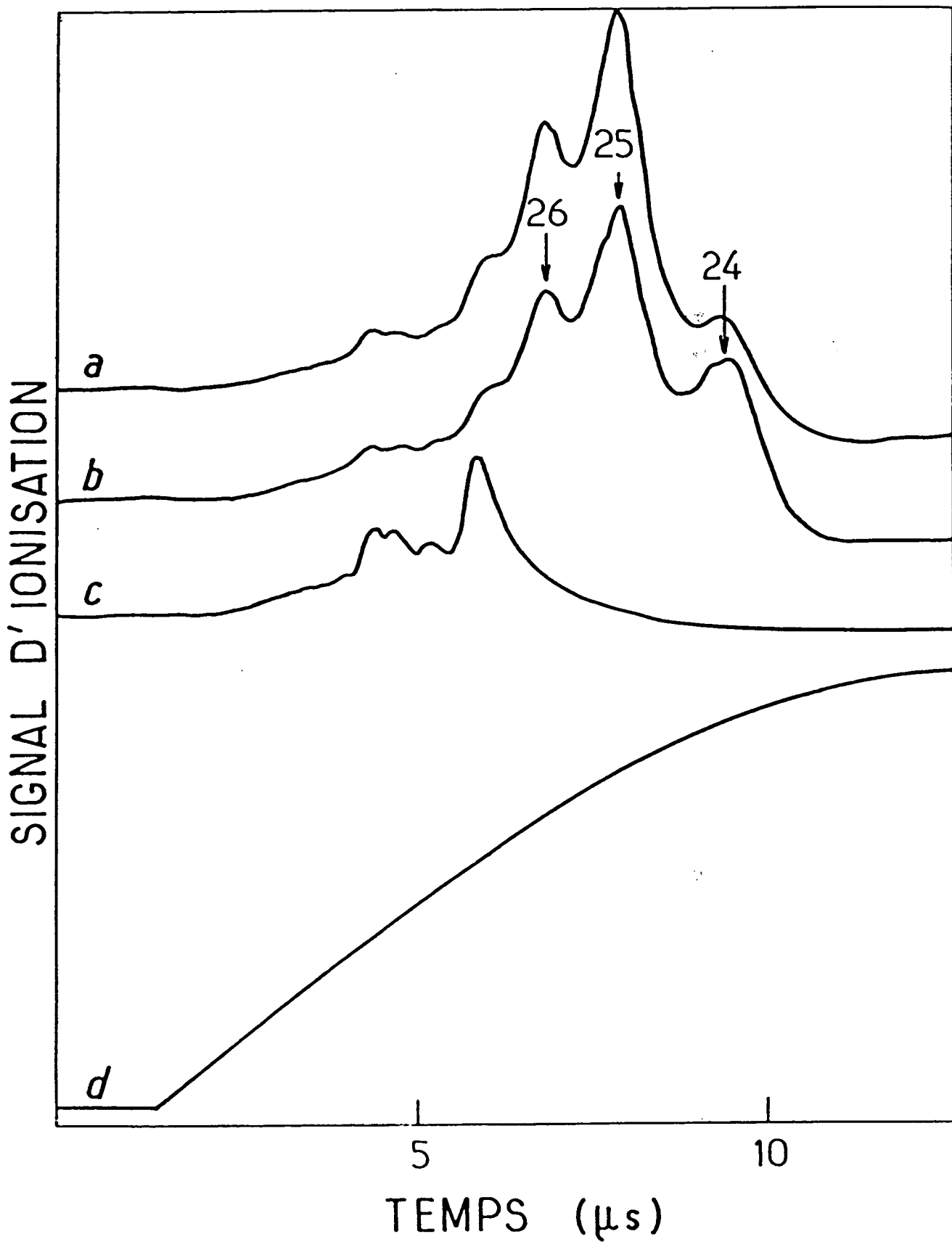


Fig.V-9

1300  
5 µs

En comparant les figures V-9a et b, on remarque que le signal d'ionisation du circulaire est notablement plus grand que celui des niveaux de faible  $\ell$ . La durée de vie d'un état circulaire ( $875\mu\text{s}$  pour  $n=25$ ) est en effet beaucoup plus longue que celle d'un état de Rydberg ordinaire ( $30\mu\text{s}$  environ). Les atomes circulaires que l'on a pu préparer sont tous susceptibles d'être détectés, ce qui n'est pas le cas des atomes de Rydberg de faible moment angulaire.

#### V. 5. TRANSITION MICROONDE ENTRE ETATS CIRCULAIRES

Après avoir préparé des atomes circulaires, nous avons cherché à effectuer des transitions entre ces états en les faisant interagir avec un champ microonde résonnant. En utilisant une microonde à  $447,749\text{GHz}$ , nous avons effectué la transition circulaire  $n=25$ , circulaire  $n=24$ . Les transitions microondes entre deux niveaux circulaires sont très fines grâce à leurs longues durées de vie. Comme elles dépendent peu des propriétés du coeur atomique, elles peuvent conduire à déterminer la constante de Rydberg en unité de fréquence.

La source microonde utilisée est un carcinotron stabilisé Thomson-CSF C006 de puissance  $10\text{mW}$ , qui émet de  $415\text{GHz}$  à  $485\text{GHz}$ . Un cornet microonde, placé en-dehors du pot à vide près de l'une des fenêtres, envoie la microonde transversalement sur les atomes du jet, dans le condensateur multiplaque et entre les plaques du condensateur de détection.

La résonance est présentée sur la figure V-9b. La population de circulaire  $n=24$  est augmentée. Nous avons également observé la transition inverse  $n=24 \rightarrow n=25$  en préparant initialement des atomes circulaires  $n=24$ .

Nous avons mesuré la variation du pic  $n=24$  en fonction de la fréquence de l'onde submillimétrique autour de  $447\text{GHz}$  et enregistré le spectre correspondant. Ce spectre est montré sur la figure V-10. On notera que la raie de résonance est fortement asymétrique avec un flanc raide sur le côté haute fréquence et une queue de largeur  $50\text{MHz}$  sur le côté basse fréquence. Cette forme est caractéristique de l'effet Stark quadratique, qui élargit de manière asymétrique les raies atomiques. Dans cette expérience préliminaire, le champ de l'onde submillimétrique, qui interagit avec les atomes partout le long du jet, excite des atomes encore perturbés par le champ de fuite relativement élevé du condensateur multiplaque. La largeur de  $50\text{MHz}$  correspond à un champ inhomogène résiduel de l'ordre de

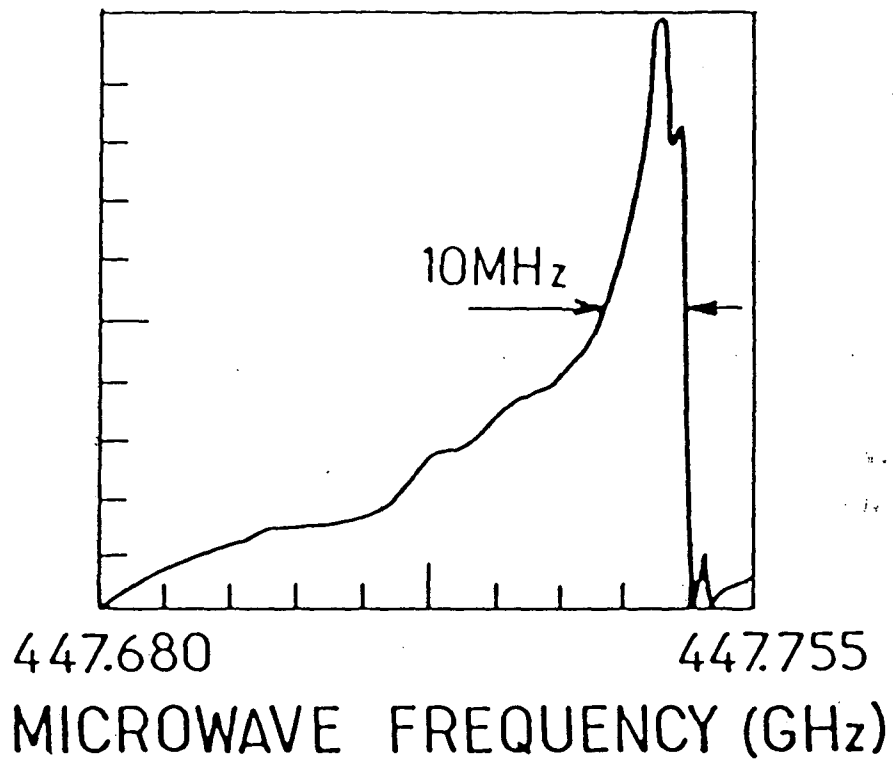


Fig.V-10

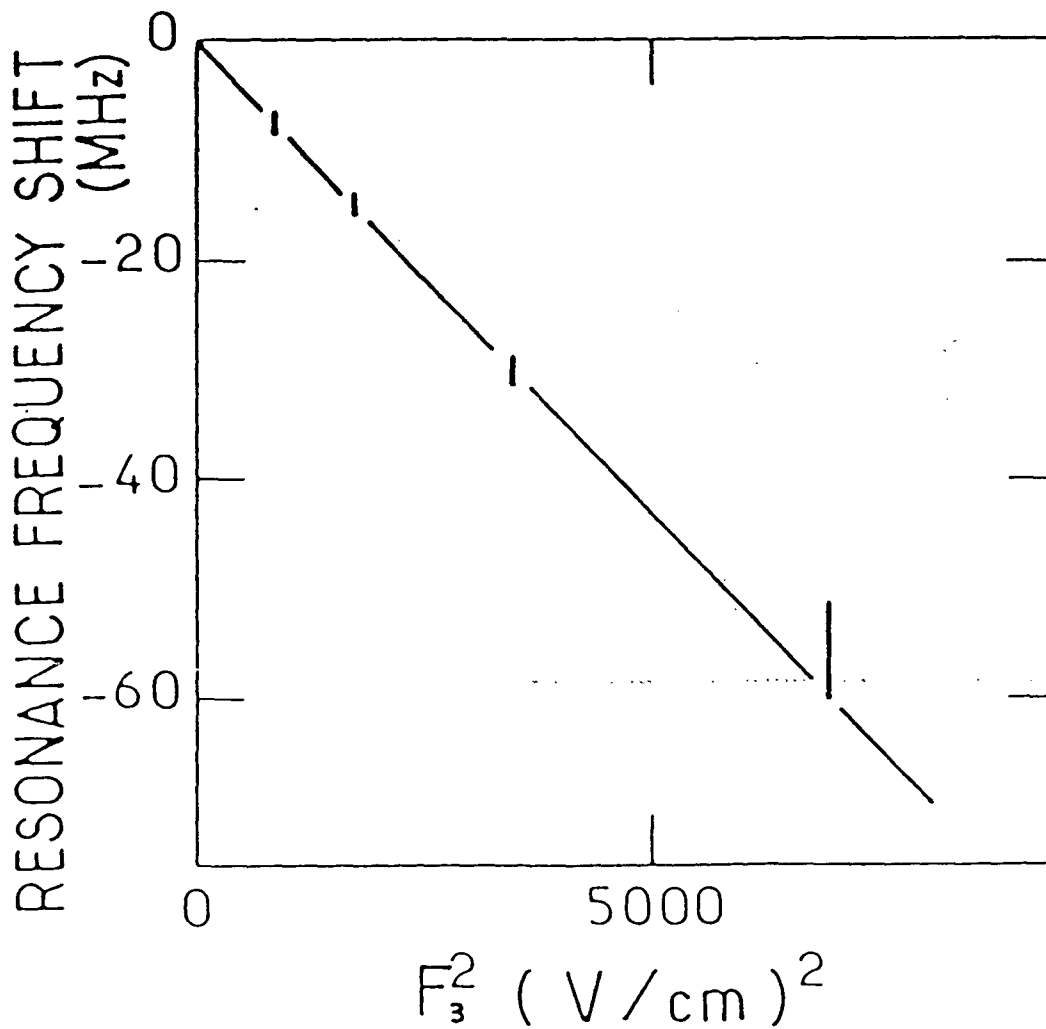


Fig.V-11

50V/cm. Le fait que l'élargissement se produise seulement vers le côté basse fréquence de la résonance est une indication claire d'un déplacement Stark purement quadratique, qui est une preuve supplémentaire du caractère circulaire de l'état que l'on a préparé initialement.

La position du flanc raide du côté haute fréquence de la raie permet de mesurer la fréquence de la transition non perturbée. Cette mesure permet de déterminer la constante de Rydberg. Nous trouvons  $\nu_{25 \rightarrow 24} = 447\,749,515\text{MHz}$ , en bon accord avec la formule  $\nu_{25 \rightarrow 24} = Ry(1/24^2 - 1/25^2) = 447\,749,028\text{MHz}$ . La constante de Rydberg du  $\text{Li}^7$ , en tenant compte de la correction due à l'effet de masse, est  $Ry = 3,289\,584\,70(1) \cdot 10^9\text{MHz}$ . La résolution présente ne nous permet pas d'observer le petit déplacement  $\delta E_n - \delta E_{n+1}$  dû aux effets de polarisation du coeur de l'ion  $\text{Li}^+$  qui sont de l'ordre du kilohertz, ni les effets relativistes.

En superposant au pulse de champ ionisant une tension continue de faible valeur variant de 0 à 50V, nous avons étudié l'effet Stark sur la transition entre états circulaires  $n=25$  et  $n=24$ . La figure V-11 montre le déplacement des fréquences mesurées en fonction du carré du champ électrique  $F_3$  appliqué sur les atomes dans le condensateur de détection. Ce déplacement varie suivant une loi linéaire en bon accord avec le déplacement Stark quadratique calculé par la formule hydrogénoïde (trait plein)  $\Delta\nu = -7.11F_3^2 \text{ (kHz/(V/cm)}^2\text{)}$ .

Cette expérience constitue une mesure préliminaire ( $10^{-6}$ ) de la constante de Rydberg en unité de fréquence. Pour progresser dans cette voie, il est essentiel de faire Interagir les atomes avec le champ microonde dont la structure de mode est bien définie, dans une région où l'amplitude des champs électriques statiques est bien contrôlée.

Une cavité microonde centimétrique accordable sur la transition circulaire-circulaire pourra être utilisée dans ce but. Le temps de vol pour traverser la cavité limitera la largeur de raie à environ 100kHz. Nous comptons refroidir la zone d'interaction à la température de l'hélium liquide pour supprimer les perturbations dues au rayonnement thermique. Pour éviter l'élargissement Stark inhomogène, le champ électrique présent dans la cavité doit être rendu inférieur à une valeur de l'ordre de 100mV/cm, ce qui n'est pas très difficile à réaliser. En fait, nous verrons au chapitre VI qu'un champ résiduel bien défini non nul est nécessaire pour conserver le caractère circulaire des atomes de Rydberg.

Lors d'une étape ultérieure de l'expérience, nous comptons utiliser la méthode de RAMSEY [35] avec deux cavités séparées de 26cm (pour la première expérience) à 2m (pour l'expérience ultime de mesure du Rydberg).

Le temps de vol entre 2 cavités distantes de 2m (vitesse thermique 1500m/s) est suffisant pour permettre de réduire la largeur de raie à sa limite naturelle (240Hz pour la transition  $n=25 \rightarrow n=24$ ) et pour mesurer la constante de Rydberg en unité de fréquence avec une précision de l'ordre de  $10^{11}$  (pointé de raie au 1/50ème de sa largeur). Une telle mesure implique des champs électriques statiques bien contrôlés de l'ordre de 10mV/cm, ce qui est réalisable.

Bien avant d'atteindre de telles précisions, les perturbations liées à la présence du coeur atomique deviennent significatives (effet de polarisation du coeur  $\sim 10^3$ Hz) et toute expérience de mesure du Rydberg devra se faire soit sur l'hydrogène, soit sur des alcalins après une étude expérimentale et théorique systématique de ces effets.

## CHAPITRE VI

COMPORTEMENT DYNAMIQUE D'UN ATOME CIRCULAIRE  
DANS UN CHAMP ELECTRIQUE FAIBLE DE DIRECTION VARIABLE

Comme nous avons pu le voir plus haut dans la partie théorique (§ I. 5) un champ électrique, même de faible amplitude, peut modifier de manière considérable les trajectoires d'électrons de fort moment angulaire et en particulier d'électrons circulaires. Dans ce chapitre, nous allons étudier expérimentalement comment un état circulaire initialement orienté dans la direction du champ électrique ( $\vec{F}$  et  $\vec{L}$  parallèles) évolue lorsque la direction du champ  $\vec{F}$  varie dans le temps et en particulier s'inverse ( $\vec{e}_z \rightarrow -\vec{e}_z$ ). Nous mettons en évidence expérimentalement les différents régimes d'évolution (lent, rapide et intermédiaire) introduits au §I.5.

VI. 1. MONTAGE EXPERIMENTAL

Pour pouvoir étudier l'évolution d'un atome circulaire dans un champ électrique de direction variable, il faut:

- i) préparer et détecter les atomes circulaires
- ii) être capable de créer dans une région de l'espace traversée par les atomes un champ électrique de direction variable.

La préparation et la détection des atomes circulaires se fait de la même manière que dans l'expérience de spectroscopie circulaire micro-onde. Le montage expérimental: jet atomique de lithium, multiplaque, microonde à 9GHz pour induire le P.A.R., condensateur de détection et multiplicateur d'électrons, est rappelé sur la figure VI-1.

Comme il est facile de faire varier la composante verticale du champ (sivant Oz) à l'intérieur du condensateur de détection, nous avons choisi de créer le champ de direction variable à l'intérieur de celui-ci, dans sa partie amont, en superposant un champ vertical variable électroniquement à un champ horizontal fixe.

Pour appliquer le champ horizontal fixe, nous avons modifié légèrement la partie amont (par rapport au jet atomique) du condensateur



de détection (voir fig. VI-1). Celle-ci est constituée de plaques de circuit imprimé (plaques veroboard) sur lesquelles sont disposées orthogonalement à l'axe du jet 13 bandes conductrices de périodicité 1/10 de pouce. Une tension de 4,06V (trois piles de 1,36V pour montre à quartz) est répartie entre ces bandes. Un champ horizontal de 1,33V/cm est ainsi appliqué.

Pour créer dans le condensateur le champ vertical variable, nous avons également modifié sa partie aval. Celle-ci est constituée de manière standard de deux plaques de cuivre dont l'une est percée d'une grille face multiplicateur d'électrons.

L'électrode du bas est reliée au pulse ionisant, son potentiel est  $V_I$ . Pendant toute la phase de préparation et d'évolution de l'état circulaire,  $V_I$  est nul. Au moment de la détection,  $V_I$  passe de 0V à  $\sim 2,5$ kV, ce qui permet d'ioniser et donc de détecter les atomes de Rydberg.

L'électrode du haut n'est plus mise à la masse comme dans l'expérience de spectroscopie circulaire microonde. Elle est reliée à un générateur de pulse rapide qui génère le pulse dit "pulse de mélange". Elle est également reliée à la masse par une résistance de 50 $\Omega$  qui a pour but d'éviter la réflexion du pulse de mélange en bout de ligne coaxiale.

Le pulse de mélange a une amplitude crête de 2,5V (ce qui correspond à un champ de 4,2V/cm). Son temps de montée est de 10ns: sa durée de 1,5 $\mu$ s. Il est généralement appliqué 3 $\mu$ s avant le début du pulse ionisant, à un instant où les atomes détectés sont dans la partie amont du condensateur de détection.

Il est possible de ralentir la montée et la descente du pulse de mélange à l'aide de condensateurs judicieusement choisis. La mesure précise de la manière dont le pulse de mélange augmente et décroît se fait à l'aide du digitaliseur de transitoires R7912 dont la bande passante est très largement suffisante (500MHz).

Afin de faire varier la composante verticale du champ vu par les atomes avant et après le pulse de mélange, une tension continue  $V_0$  est superposée à celui-ci.

Nous avons représenté sur la figure VI-2 la variation au cours du temps de la composante verticale  $F_z$  du champ électrique vu par les atomes détectés, dont la vitesse moyenne est 1850m/s. Comme les atomes se déplacent dans le jet, les différents instants correspondent à différentes positions. Nous avons choisi les échelles des figures VI-1 et VI-2, de manière à ce que les positions et les temps se correspondent pour les

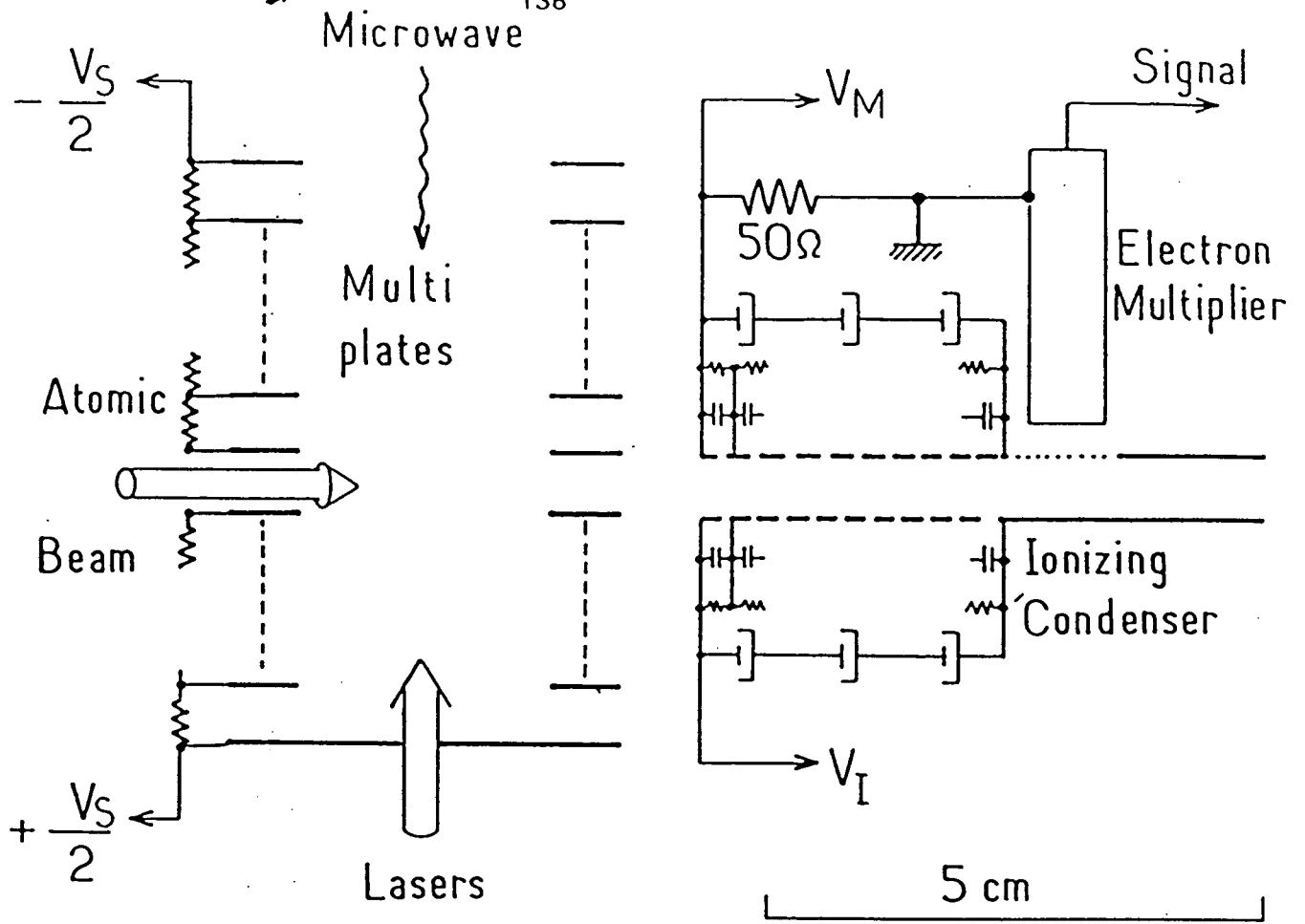


Fig. VI-1

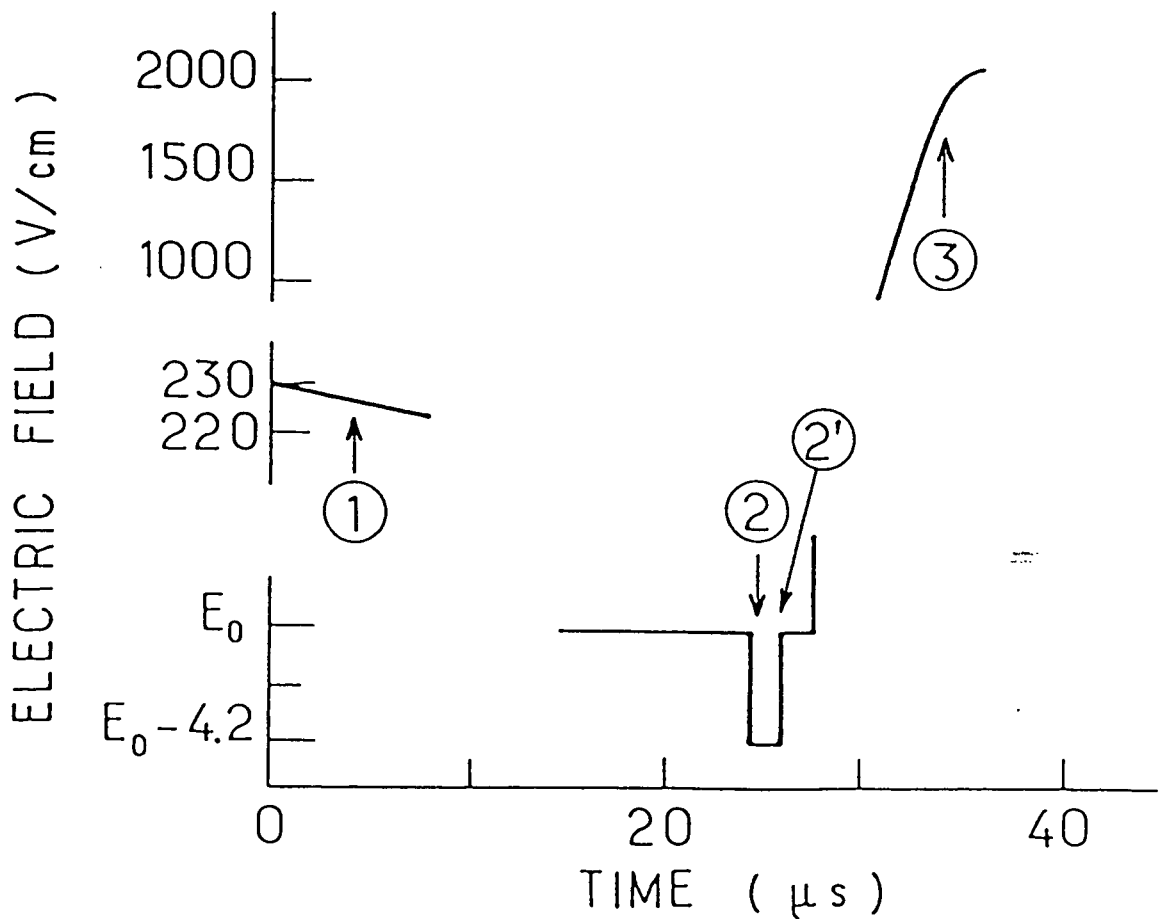


Fig. VI-2

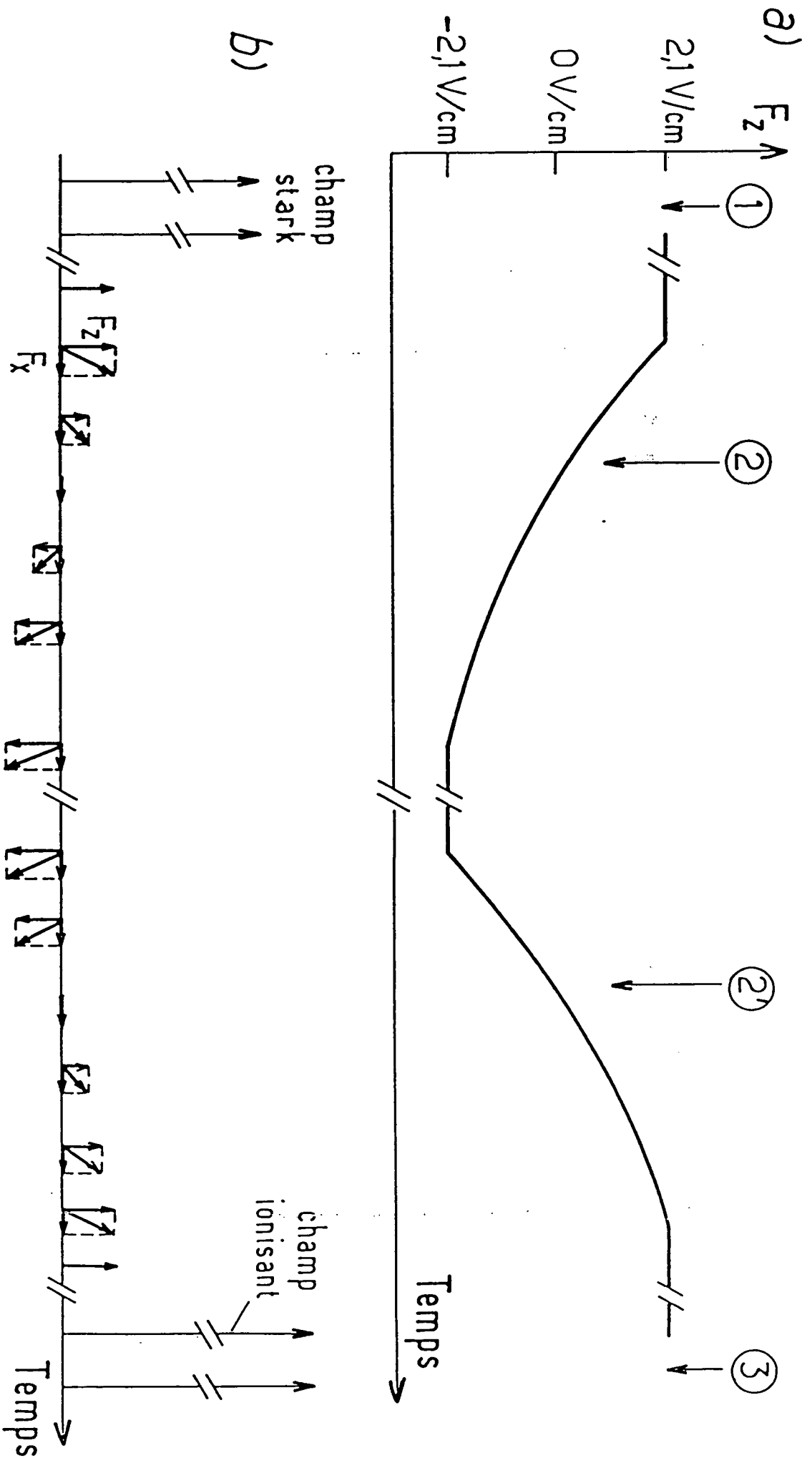


Fig. VI-3

atomes détectés. La figure VI-1 est à l'échelle 1.34 par rapport au montage expérimental réel.

En appelant  $t=0$  l'instant d'excitation des trois faisceaux lasers, la partie (1) de la figure VI-2 correspond au champ Stark de préparation des atomes circulaires. Ce processus dure une dizaine de microsecondes. 15 à 20 microsecondes après l'excitation, les atomes pénètrent dans la partie amont du condensateur de détection et voient le champ vertical  $F_z$  de faible amplitude associé à  $V_M$  ainsi qu'un champ horizontal constant  $F_x$  de 1,33V/cm. L'effet que nous étudions se produit quand le champ tourne, c'est-à-dire quand la composante verticale du champ varie en étant voisine de zéro. Suivant le choix de la composante continue  $E_0$  du champ vertical, ce passage par zéro se produit soit durant la montée et la descente du pulse  $V_M$  (2 et 2' cerclés), soit au tout début du pulse d'ionisation (3 cerclé).

Sur la figure VI-3a, nous avons présenté le détail de l'évolution de la composante verticale du champ. La figure a été tracée pour l'expérience de mise en évidence du passage entre les régimes lent et intermédiaire (§ VI.2).  $E_0$  est alors de 2,1V/cm. La composante verticale du champ passe de +2,1V/cm à -2,1V/cm (descente du pulse de mélange, 2 cerclé) en un temps variant entre 10 et 100ns. Environ 1,5 $\mu$ s plus tard, le champ remonte à +2,1V/cm (remontée du pulse de mélange 2' cerclé). Environ 1,5 $\mu$ s plus tard, le pulse d'ionisation débute et le champ devient très grand.

La figure VI-3b montre de manière schématique comment, en présence d'un champ horizontal de 1,33V/cm constant, ces divers processus se traduisent par une rotation du champ vu par l'atome.

## VI.2 ANALYSE DES RESULTATS EXPERIMENTAUX POUR UN CHAMP ELECTRIQUE DANS LES REGIMES DE VARIATION LENT ET INTERMEDIAIRE

Une première expérience a été réalisée en analysant la forme du signal d'ionisation en fonction de la vitesse de descente et de montée du pulse de mélange (2 cerclé et 2' cerclé de la figure VI-2).

Comme il n'est pas possible de faire descendre et monter le pulse du mélange en un temps inférieur à 10ns, qui correspond au régime intermédiaire pour la rotation du champ, nous nous restreindrons ici à l'étude des régimes lents et intermédiaires. La composante continue verticale du champ  $E_0$  a été fixée à 2,1V/cm ( $V_0=1,25V$ ) de manière à ce

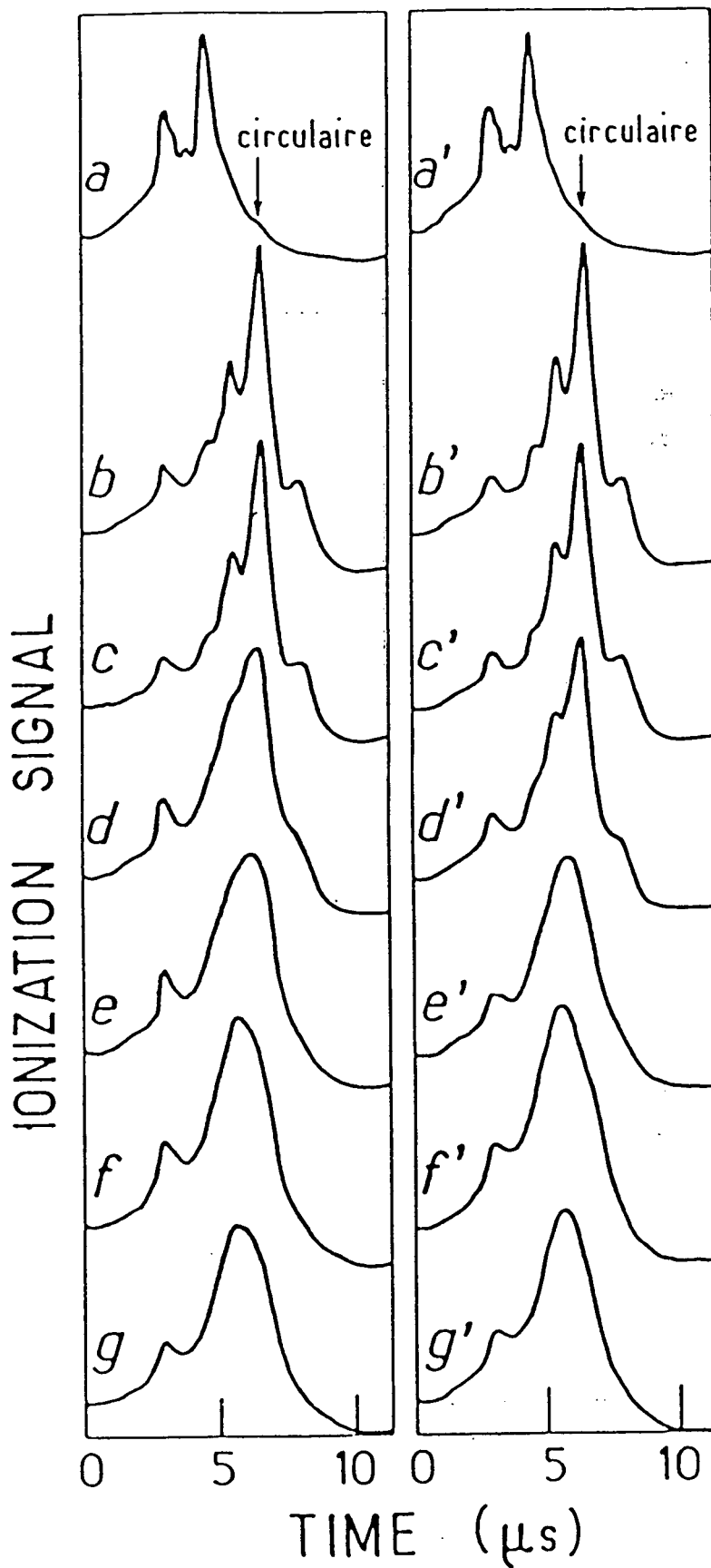


Fig. VI-4

que l'annulation de la composante verticale du champ se produise au milieu de la montée, et au milieu de la descente du pulse de mélange (voir figure VI-3a). Avant et après le pulse de mélange, le champ vertical est choisi de manière à avoir la même direction que le champ ionisant.

La figure VI-4 présente les différents signaux d'ionisation de l'état de Rydberg  $n=25$  du lithium.

La figure VI-4a correspond au cas où la microonde à 9GHz n'est pas présente. Le pic principal correspond, comme dans le cas de l'expérience de spectroscopie microonde circulaire (fig.V-9c), au niveau de départ du P.A.R.  $n=25$ ,  $m_l=2$ ,  $n_1=0$ . Quand la microonde à 9GHz est présente (fig. VI-4b), le signal d'ionisation du circulaire  $n=25$ ,  $m_l=24$  apparaît. Le pic central correspond au pic d'ionisation du circulaire, les deux pics latéraux aux signaux issus des circulaires  $n=24$  pics en champ fort (temps long) et  $n=26$  pics en champ plus faible (temps court).

Comparé à la courbe correspondante obtenue lors de l'expérience de spectroscopie circulaire (§V.4), on notera une légère dégradation du signal, c'est-à-dire une légère augmentation relative des pics latéraux  $n=24$  et  $n=26$ . Pour pouvoir faire interagir les atomes circulaires avec le pulse de mélange, la distance entre l'excitation (condensateur multiplaque) et la détection (partie aval du condensateur de détection) a été augmentée (de 5cm à 6,5cm) et le temps de couplage des atomes circulaires avec le champ thermique est passé de  $28\mu s$  à  $35\mu s$ . Les transferts thermiques sont plus importants ici, ce qui explique la dégradation du signal.

Les figures VI-4c (c'), d (d'), e (e'), f (f'), g (g') présentent les signaux d'ionisation des atomes circulaires en présence du pulse de mélange pour différentes valeurs de la vitesse de descente (120, 220, 270, 330, 700V/cm/ $\mu s$  respectivement) et de remontée (100, 140, 150, 160, 200V/cm/ $\mu s$  respectivement).

Au champ électrique horizontal généré par les piles se superpose la composante horizontale des champs parasites (champ de fuite du condensateur multiplaque et du multiplicateur d'électrons, et potentiel de contact) qui sont mal connus, mais dont l'ordre de grandeur a pu être évalué à  $\sim 300\text{mV/cm}$ , lors d'une expérience de contrôle dans laquelle le champ horizontal de 1,33V/cm appliqué avait été supprimé. Nous avons tenu compte de l'effet possible de ces champs en effectuant l'expérience pour les deux orientations possibles de la composante horizontale du champ électrique. Les résultats correspondent aux deux séries de courbe abc... et

a'b'c'... (champ horizontal suivant  $\vec{e}_x$  et  $-\vec{e}_x$  respectivement. On n'observe aucune différence notable entre deux séries de courbes.

Lorsque la vitesse de descente (et de remontée) est faible (régime de rotation lente), l'atome circulaire est capable de suivre adiabatiquement la direction du champ électrique et après les deux demi-rotations:  $\vec{e}_z \rightarrow -\vec{e}_z$  suivi 1,5 $\mu$ s plus tard de  $-\vec{e}_z \rightarrow \vec{e}_z$ , de se retrouver dans l'état circulaire initial. La forme du signal d'ionisation est inchangée. C'est ce que l'on observe sur la figure VI-4 en c et c'.

Si la vitesse de rotation augmente, la forme de l'orbite électronique se trouve modifiée après la première demi-rotation. L'atome perd son caractère circulaire ainsi que son orientation le long du champ électrique.

L'état circulaire orienté  $|m| = \ell = n-1$  étant l'état dont le seuil d'ionisation en champ électrique est le plus élevé (voir fig. I-10), on observe, lorsque la rotation du champ électrique s'effectue rapidement, une modification du signal d'ionisation (fig. VI-4d, e, f, g et e', f', g'). Le pic central caractéristique du circulaire disparaît et l'ionisation se fait en champ plus faible (temps plus court), sur une gamme relativement large de valeur du champ électrique (ionisation pour différentes valeurs du champ, des différents sous-niveaux  $|n, m, n_1\rangle$  obtenus après le pulse de mélange). Au vu de la figure VI-4, le seuil de cet effet de mélange qui correspond à une disparition du pic circulaire fin en champ fort (flèche sur la figure VI-4), se produit pour des champs compris entre 220 et 270V/cm/ $\mu$ s (fig. VI-4d, e).

Lorsque l'effet de mélange se produit, le système atomique se trouve, après mélange, dans une superposition cohérente compliquée d'états de  $\ell$  et  $m\ell$  différents. Il est alors difficile de calculer exactement la forme du signal d'ionisation. Pour évaluer le seuil, nous nous sommes contentés de calculer, après la première demi-rotation et après les deux demi-rotations, la population relative de l'état circulaire. Le calcul a été fait en intégrant numériquement dans la base sphérique, pour  $n=25$ , l'équation de Schrödinger en considérant que l'effet du champ électrique statique peut être décrit par un hamiltonien dépendant du temps (technique utilisée au paragraphe I. 5 pour tracer les courbes  $n=10$  et  $n=20$  de la figure I. 13).

Après la première demi-rotation, la population relative de circulaire est respectivement de 0,99, 0,73, 0,58, 0,23, 0,0 pour des vitesses de variation du champ de 120, 220, 270, 330, 700V/cm/ $\mu$ s respectivement, qui correspondent aux courbes c, d, e, f, g. Si l'on tient compte de la

deuxième demi-rotation, on obtient des populations respectives de 0,99, 0,73, 0,82, 0,12 et 0,0 (pour les courbes c, d, e, f, g).

Lorsque la population calculée est voisine de l'unité, aucune modification du signal ne doit être observée: c'est le cas des courbes c et c'.

Lorsque la population calculée est inférieure à un, tout en étant de l'ordre de un, le signal observé change de forme, mais le pic circulaire reste présent. C'est le cas des courbes d, d', et e, e'. En fait, si une analyse fine de la courbe e montre la présence nette d'un épaulement dû au pic circulaire, la courbe e' ne montre aucun pic circulaire. Ceci est sans doute dû à la présence d'une composante horizontale non nulle du champ parasite.

Lorsque la population calculée est petite devant l'unité, aucun pic circulaire ne doit apparaître. C'est le cas des courbes f, f' et g, g'.

### VI.3 MISE EN EVIDENCE DU REGIME ROTATION RAPIDE DU CHAMP

Pour mettre en évidence le régime de rotation rapide, nous avons été amenés, pour augmenter la vitesse de rotation du champ, à diminuer la composante horizontale fixe du champ (i) et à augmenter la vitesse de variation de la composante verticale (ii).

- i) Le champ horizontal appliqué a été supprimé, en réalisant l'expérience sur le montage de spectroscopie circulaire micro-onde. Une expérience de mesure du seuil de l'effet de mélange (passage du régime lent au régime intermédiaire) a permis de mesurer la composante horizontale du champ parasite, en comparant le seuil calculé pour différentes valeurs du champ horizontal au seuil observé. Le champ horizontal ainsi mesuré est d'environ 0,3V/cm.
- ii) Le pulse de mélange, de faible amplitude, a été supprimé. Le pulse ionisant a par contre été modifié. Nous avons superposé au pulse ionisant utilisé précédemment (fig.VI-5a), qui monte de 0kV/cm à 2,5kV/cm en 10 $\mu$ s (pulse lent), un pulse de plus faible amplitude (250V/cm) qui monte en 10ns. La figure VI-5b présente l'allure du pulse à montée rapide ainsi obtenu.

La figure VI-4c, d, e, f présente les signaux d'ionisation observés pour différentes formes de pulse ionisant (fig.VI-5a et b) et différentes valeurs de la composante verticale  $E_0$  du champ avant ionisation (fig.VI-2).



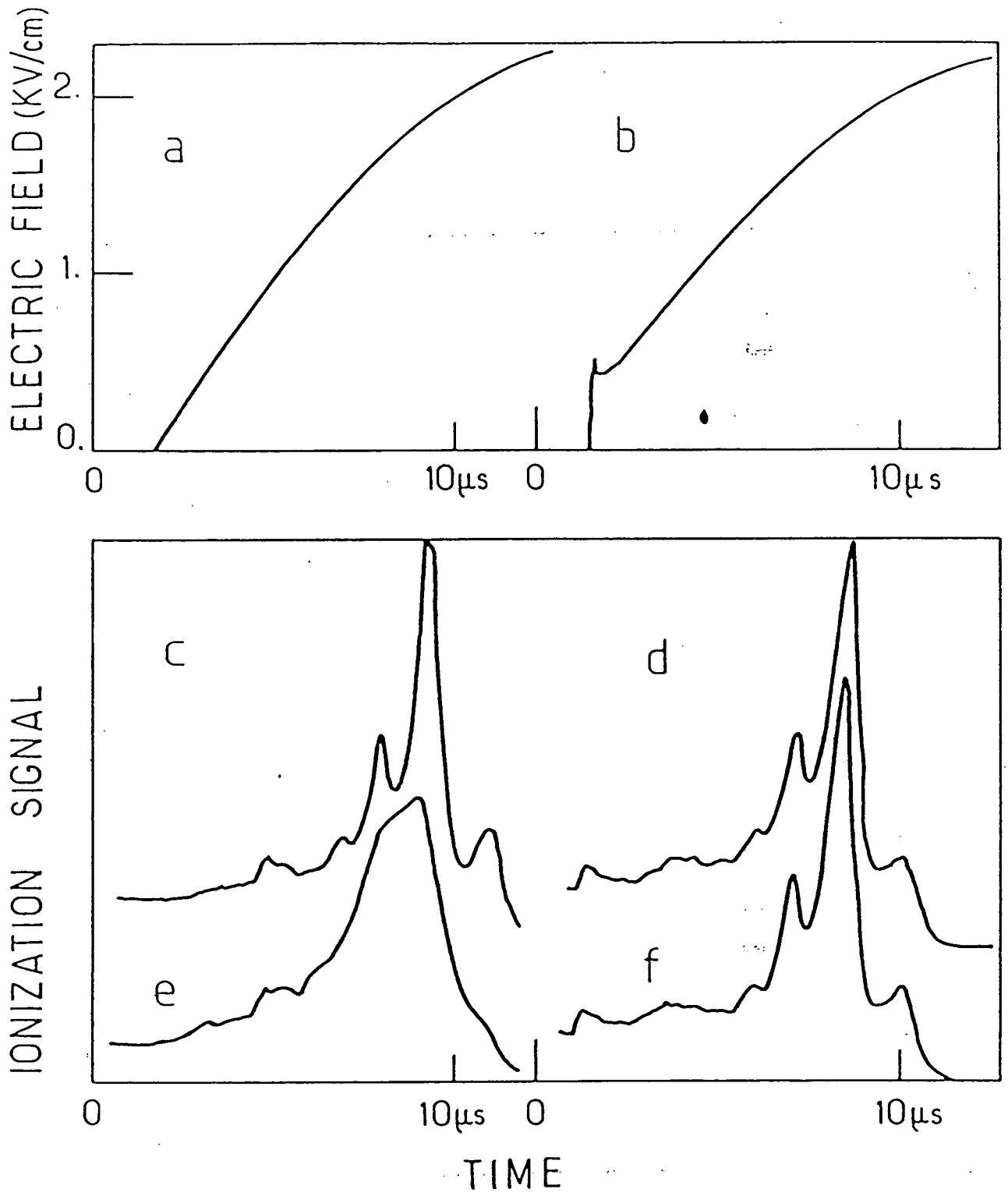


Fig.VI-5

Pour  $E_0 = 5V/cm$ , on observe le signal de circulaire quelle que soit la forme du pulse ionisant (fig. VI-5c et d) car, comme la composante verticale du champ  $F_z$  ne s'annule jamais, le champ ne tourne pas.

Pour  $E_0 = -5V/cm$ , on observe, lorsque la rampe ionisante monte relativement lentement ( $225V/cm/\mu s$ ), un effet de mélange similaire à l'effet observé au paragraphe précédent (VI.2). C'est le régime de rotation intermédiaire (fig. VI-5e).

Lorsque la rampe ionisante monte très rapidement ( $25kV/\mu s$ ), l'effet de mélange ne s'observe plus. Le signal d'ionisation est le même quel que soit le signe de  $E_0$ , qu'il y ait ou non rotation du champ, au début de la rampe. La rotation du champ s'effectue ici si vite que la forme de l'orbite électronique n'a pas le temps de changer pendant la rotation du champ. C'est le régime de rotation rapide (fig. VI-5f).

Comme il est difficile de mesurer de manière précise la vitesse de variation du pulse ionisant à son tout début (lorsqu'il passe typiquement de  $0V/cm$  à  $10V/cm$  pour un pulse de  $2,5kV/cm$ ), nous n'avons pas pu étudier quantitativement le passage du régime de rotation intermédiaire au régime de rotation rapide du champ. Nous avons simplement vérifié que les courbes VI-5e et f correspondaient bien au régime de rotation intermédiaire et rapide.

#### VI.4. CONCLUSION : CHAMP PARASITE ET SPECTROSCOPIE DES ATOMES CIRCULAIRES

L'étude des différents régimes d'évolution d'un atome circulaire en champ électrique de direction variable montre à quel point ces atomes peuvent être sensibles à des petits champs.

L'effet de désorientation et de destruction d'un atome de Rydberg circulaire s'observe dès que la fréquence de précession Stark  $\nu_S = \omega_S/2\pi$  devient de l'ordre de la fréquence caractéristique du changement de direction de champ électrique  $\vec{F}$ . Cet effet rend l'annulation du champ électrique expérimentalement très délicate à réaliser, car l'atome peut alors être fortement perturbé par les champs parasites dont la direction dans le référentiel de l'atome en mouvement varie dans le temps.

En maintenant un champ électrique de faible amplitude, il est possible de stabiliser les atomes circulaires en fixant la direction du champ, c'est-à-dire la direction de l'axe de quantification. Bien entendu, les atomes circulaires peuvent voir leurs fréquences de transition déplacées par

effet Stark, mais il est possible de tenir compte de cette perturbation qui est exactement calculable. Le déplacement Stark des niveaux est de plus très faible, puisque l'effet Stark est quadratique. Un champ appliqué de 100mV/cm correspond à un déplacement de l'ordre de quelques centaines de Hertz, ce qui rend la mesure de la constante de Rydberg possible.

## CONCLUSION

En résumé, les principaux résultats du travail exposé dans ce mémoire sont les suivants:

- (i) L'effet Stark linéaire des états de Rydberg du sodium a été étudié par spectroscopie de haute résolution sub-Doppler en utilisant une excitation continue en échelon. Nous avons mis en évidence une quasi-dégénérescence des états de  $|m_l| = 0, 1$  et  $2$ . Ce comportement non-hydrogénoïde inattendu des états Stark dans le régime linéaire a pu être compris à l'aide d'une base Stark tronquée. Ce comportement, qui est commun aux états de Rydberg alcalins a également été observé sur le lithium: quasi-dégénérescence des séries  $|m_l| = 0$  et  $1$ .
- (ii) En utilisant la méthode d'excitation en échelon laser (3 échelons)-microonde (( $n-3$ ) échelons) en champ électrique Stark, nous avons préparé des atomes de lithium dans des états de Rydberg circulaires. Nous avons observé une résonance induite par une onde submillimétrique entre deux états circulaires ( $n=25, m_l=24 \rightarrow n=24, m_l=23$ ), ce qui constitue le premier pas vers la mesure de la constante de Rydberg en unité de fréquence. Le déplacement Stark de la résonance a été étudié et son caractère quadratique mis en évidence.
- (iii) Le comportement dynamique d'un atome initialement circulaire dans un champ électrique, dont l'amplitude et la direction varie dans le temps, a été étudié expérimentalement. Nous avons mis en évidence trois régimes d'évolution différents qui correspondent à une variation du champ électrique lente, rapide ou intermédiaire. Dans les deux premiers cas, les atomes circulaires sont conservés. Dans le dernier cas, ils sont détruits.
- (iv) Par des expériences de spectroscopie de haute résolution dans le domaine des ondes millimétriques, nous avons déterminé précisément les défauts quantiques des séries de Rydberg S et P du  ${}^6\text{Li}$  et du  ${}^7\text{Li}$  ( $n$  variant de 18 à 40). En comparant les résultats du  ${}^6\text{Li}$  et  ${}^7\text{Li}$ , nous avons déterminé les déplacements isotopiques des séries S et

P. Nous avons mis en évidence et mesuré le déplacement spécifique de masse des atomes de Rydberg du lithium de la série P. Ce déplacement est dû à l'échange d'un électron du coeur atomique avec l'électron de Rydberg (voir appendice III).

- (v) Nous avons réalisé un laser multimode à modes serrés ou laser long (longueur de cavité = 17m.) avec lequel nous avons pu fortement modifier la distribution de vitesse du jet atomique de sodium (voir appendices IV et V).

Ces expériences, et en particulier l'expérience de spectroscopie circulaire, vont être poursuivies dans notre équipe. Un nouveau montage expérimental a été construit. Il doit permettre d'effectuer les transitions microondes:

- i) dans une cavité semi-cofocale (pour donner à la microonde une structure spatiale bien définie);
- ii) refroidie à la température de l'hélium (pour éliminer les effets thermiques parasites);
- iii) permettant d'appliquer un champ électrique axial avec la cavité (pour fixer la direction de l'axe de quantification et éviter d'éventuels effets dynamiques parasites détruisant les circulaires).

Ces diverses améliorations devraient permettre d'observer des raies entre circulaires dont la largeur ne serait limitée que par le temps de transit dans la cavité ( $\sim 100\text{kHz}$ ). L'étape suivante consistera à utiliser deux cavités distantes de 26cm et d'utiliser la technique des franges de Ramsey pour affiner les raies. Le montage expérimental (cavité-cryostat) est à l'étude.

Sur un plan plus fondamental, outre la perspective d'une mesure de la constante de Rydberg en unités de fréquence, ce travail devrait permettre d'étudier la physique des états circulaires et de voir dans quelle mesure ils se comportent ou non comme des atomes d'hydrogène (effets relativistes, structures fines, défauts quantiques résiduels, polarisabilité du coeur...).

## APPENDICE I

LES ENERGIES PROPRES E DE  $H_S$  DANS  $\xi_m$   
 SONT SOLUTION DE L'EQUATION (II.2)

Le problème de trouver les éléments propres d'un hamiltonien H dans un sous-espace vectoriel  $\xi_0$  quand on connaît les éléments propres du même hamiltonien dans l'espace total  $\xi$  a été résolu dans des cas particuliers par différents auteurs (par exemple [39]) et dans toute sa généralité par LEZAMA dans sa thèse de 3ème cycle [40]. Rappelons-en brièvement la solution.

Soit  $\xi_1$  l'espace vectoriel complémentaire de  $\xi_0$  dans  $\xi$  (c'est-à-dire le sous-espace engendré par les vecteurs que nous voulons exclure de la base de diagonalisation) et soient P et Q les opérateurs de projection respectivement sur les sous-espaces  $\xi_0$  et  $\xi_1$  ( $P+Q = 1$ ). Le problème est évidemment simple lorsque  $\xi_0$  contient des vecteurs propres du hamiltonien non restreint. Nous suposerons dans la suite que ce n'est pas le cas.  $|\psi\rangle$  et E, éléments propres du hamiltonien restreint à  $\xi_0$  sont donnés par le système d'équations:

$$\begin{cases} P H P |\psi\rangle = E |\psi\rangle \\ Q |\psi\rangle = 0 \end{cases} \quad (\text{AI.1})$$

La première équation peut se transformer en :

$$H |\psi\rangle = E |\psi\rangle + Q H |\psi\rangle \quad (\text{AI.2})$$

ou

$$|\psi\rangle = (H-E)^{-1} Q H |\psi\rangle \quad (\text{AI.3})$$

En utilisant la deuxième équation du système, on obtient alors:

$$Q(H-E)^{-1} Q H |\psi\rangle = 0 \quad (\text{AI.4})$$

Comme nous avons supposé que  $|\psi\rangle$  n'est pas un vecteur propre du hamiltonien non restreint, l'équation (AI.2) entraîne que  $Q H |\psi\rangle \neq 0$ . Il en résulte que, selon (AI.4), l'opérateur  $Q(H-E)^{-1}Q$  a une valeur propre nulle, ce qui peut s'écrire sous la forme:

$$\det \left[ Q(H-E)^{-1}Q \right] = 0 \quad (\text{AI.5})$$

Cette équation, obtenue sans approximation, donne les énergies propres du hamiltonien restreint en annulant le déterminant de l'opérateur résolvante restreint à l'espace  $\xi_1$  des vecteurs "exclus" de la base de diagonalisation.

## APPENDICE II

## ELEMENT DE MATRICE RADIAL DANS LA BASE PARABOLIQUE

On sait que [29], à l'intérieur d'une multiplicité Stark

$$\vec{r} = \frac{3}{4E} \vec{M} \quad (\text{AII.1})$$

où  $\vec{M}$  est le vecteur de Lenz.

$$\text{Soit } R_+ = R_x + iR_y = -\sqrt{2} R_1^+$$

On a donc :

$$R_+ = \frac{3}{4E} M_+ \quad (\text{AII.2})$$

D'après la théorie de symétrie dynamique de l'atome d'hydrogène (le groupe de Lie  $O(4)$ ) [29], nous pouvons réécrire  $R_+$  en fonction des générateurs de  $O(4)$   $\vec{I}$  et  $\vec{K}$  avec:

$$\begin{cases} \vec{I} = \frac{1}{2} (\vec{L} + \vec{M}') \\ \vec{K} = \frac{1}{2} (\vec{L} - \vec{M}') \end{cases} \quad (\text{AII.3})$$

où  $\vec{L}$  : moment cinétique

$$\vec{M}' : \text{vecteur de Lenz généralisé } M' = \sqrt{\frac{-m}{2E}} \vec{M}$$

En tenant compte de  $2mE = -\frac{\alpha^2 m^2 c^2}{n^2}$ ,  $R_+$  est de la forme :

$$R_+ = \frac{3}{2} \frac{n}{\alpha m c} (I_+ - K_+) \quad (\text{AII.4})$$

Nous calculons maintenant l'élément de matrice  $\langle n, n_1=0, m | R_+ | n, n_1=0, m+1 \rangle$ .



L'état  $|n, n_1=0, m\rangle$  peut se réécrire en notation  $|m, m_i, m_k\rangle$  où  $m_i$  ( $m_k$ ) est la projection de  $\vec{I}$  ( $\vec{K}$ ) sur l'axe de quantification avec:

$$\left\{ \begin{array}{l} m_i + m_k = m \\ m_i - m_k = n_1 - n_2 \\ n_1 + n_2 + |m| + 1 = n \\ m_{i_{\max}} = m_{k_{\max}} = |\vec{I}| = |\vec{K}| = \frac{n-1}{2} \end{array} \right. \quad (\text{AII.5})$$

D'où :

$$\left\{ \begin{array}{l} |n, n_1=0, m\rangle = |n, m_i = m - \frac{n-1}{2}, m_k = \frac{n-1}{2}\rangle \\ |n, n_1=0, m+1\rangle = |n, m_i = m - \frac{n-3}{2}, m_k = \frac{n-1}{2}\rangle \end{array} \right. \quad (\text{AII.6})$$

$$\langle n, n_1=0, m | R_+ | n, n_1=0, m+1 \rangle$$

$$\begin{aligned} &= \langle n, m_i = m - \frac{n-3}{2}, m_k = \frac{n-1}{2} | \frac{3}{2} \frac{n}{\alpha m c} (I_+ - K_+) | n, m_i = m - \frac{n-1}{2}, m_k = \frac{n-1}{2} \rangle \\ &= \frac{3}{2} n a_0 \sqrt{(m+1)(n-m-1)} \end{aligned} \quad (\text{AII.7})$$

Finalement,

$$R^2 = |R_+|^2 = \frac{9}{4} n^2 a_0^2 (m+1)(n-m-1) \quad (\text{AII.8})$$

## APPENDICE III

QUANTUM DEFECTS AND SPECIFIC ISOTOPIC SHIFT MEASUREMENTS  
IN  $nS$  AND  $nP$  VERY EXCITED STATES OF LITHIUM :  
EXCHANGE EFFECTS BETWEEN RYDBERG AND CORE ELECTRONS

P. Goy, J. Liang, M. Gross and S. Haroche

Laboratoire de Physique de l'École Normale Supérieure \*

24, rue Lhomond, 75231 Paris Cedex 05 - France

Abstract

By high resolution double-resonance spectroscopy experiments in the millimeter wave domain, we have determined precise values of the quantum defects in the S, P Rydberg levels of  ${}^6\text{Li}$  and  ${}^7\text{Li}$  (principal quantum number  $n$  ranging from 18 to 40). A detailed comparison of the  ${}^6\text{Li}$  and  ${}^7\text{Li}$  data has yielded the value of the specific isotopic shift in the  $nP$  series, which is the first evidence of an exchange effect between a tightly bound core electron and a very weakly bound Rydberg electron in an alkali atom.

(\*) Laboratoires UA 17 et UA 18 associés au CNRS.

### 1. Introduction. General description of experiments

We present here the results of a double resonance spectroscopic study of Lithium Rydberg states. This work, which follows similar measurements performed in Na [1] and in Cesium [2], yields new precise values of quantum defects in  $nS$  and  $nP$  states of  ${}^6\text{Li}$  and  ${}^7\text{Li}$ , including the variation of these quantum defects with the principal quantum number  $n$  ( $18 \leq n \leq 40$ ). Fine structure intervals in the  $nP$  series have also been obtained. In addition, we have made a measurement of the isotope energy shifts in the  $nP$  states and determined the specific isotopic shift (S.I.S.) of these levels. S.I.S. had already been observed in the ground and first excited states of Lithium ( $2S$ ,  $3S$ ,  $4S$ ,  $2P$ ,  $3P$ ) by classical and laser spectroscopy [3-4-5]. Our S.I.S. measurements, performed on much more excited levels, reveal for the first time, in the spectroscopy of alkali Rydberg states, an exchange effect between the weakly bound valence electron and a core electron.

The set-up and the spectroscopic technique are in their principle identical to those developed in earlier experiments on Na and Cs atoms [1-2]. We only give here details specific to the lithium experiment and refer the reader to the previous papers for more information.

An atomic beam of pure Li isotope is produced by an oven at  $500^\circ\text{C}$ . The beam, propagating from left to right in figure 1 crosses successively a first condenser, a Fabry-Perot microwave cavity and a second condenser. The preparation of the Rydberg state is performed via a stepwise process involving three Yag-laser-pumped-pulsed-dye-lasers (repetition rate: 10Hz). The excitation involves the  $2S \rightarrow 2P$ ,  $2P \rightarrow 3D$  and  $3D \rightarrow nL$  transitions at  $6708\text{\AA}$ ,  $6104\text{\AA}$  and  $\sim 8300\text{\AA}$  respectively.  $nP$  states are directly prepared in the cavity (lasers in position 2 in figure 1). In order to

excite  $nS$  levels, it is necessary to break the  $\Delta l = 1$  selection rule of the  $3D \rightarrow n l$  transition. This is achieved by performing the excitation in a small electric field inside the first condenser (lasers in position 1 in figure 1).

After their optical excitation, the atoms are submitted to a microwave resonance in the Fabry-Perot cavity. Both single photon  $nP \rightarrow n'S$  and two-photon  $nS \rightarrow n'S$  and  $nP \rightarrow n'P$  transitions have been studied, the microwave frequency  $F$  spanning the range 55 to 456GHz.

For high frequencies generation ( $F > 110\text{GHz}$ ), we have used six Thomson-CSF carcinotrons (Backwave oscillators) delivering a power in the range 1W to 10mW and respectively spanning the following frequency bands: 107-124GHz, 125-151GHz, 235-274GHz, 330-344GHz, 372-415GHz, 415-485GHz. The carcinotrons are frequency stabilized [6] through harmonic mixing (Siemel, Micro-Now harmonic mixers) on a phase-locked (MOS-5 Microwave system stabilizer), X-band klystron (X-13 Varian).

Below 110GHz, the microwave is directly produced by frequency multiplication of the X-band klystron radiation (we use a Schottky diode harmonic generator Siemel, Micro-Now).

The microwave cavity sustains a standing wave with a Gaussian transverse profile having a waist  $w_0$ . This field distribution is very convenient for Doppler-free two-photon transitions (the Doppler effect of two counter-propagating microwave photons exactly cancel each other). The ultimate linewidth of such Doppler free lines is determined by the transit time  $\Delta t = w_0/v_{th}$  of the atoms through the waist ( $v_{th} = 1500\text{m/s}$ : average thermal velocity of atom). In the 55-150GHz frequency band, we have used a cofocal Fabry-Perot cavity with  $r = 62\text{mm}$  radius of curvature mirrors. This radius was reduced to  $r = 51\text{mm}$  for the Fabry-Perot semi-cofocal cavity used in the 230-350GHz interval. From the waist size  $w_0 = \sqrt{r\lambda/2\pi}$ , we infer  $\Delta t$  values varying from  $5\mu\text{s}$  at 55GHz down to  $2\mu\text{s}$  at 300GHz and transit

time limited two-photon resonance widths ranging from 50 to 140kHz.

Single photon lines are about an order of magnitude broader. They suffer from residual Doppler broadening (the microwave wave vector has a non-zero projection on the atomic propagation axis), and more importantly from Stark effects induced by stray electric fields. The two levels  $nP$  and  $nS$  involved in a single photon transition have very different Stark shifts and their energy difference is thus very sensitive to stray electric field (10MHz for 100mV/cm around  $n = 30$ ). (This is not the case for two-photon  $nS \rightarrow n'S$  and  $nP \rightarrow n'P$  transition since the initial and final states have identical angular momentum and undergo shifts of nearly equal magnitude which cancel out in the transition frequency).

The saturation of single-photon transition around  $n \sim 30$  corresponds to microwave power flux below  $10^{-9} \text{W/cm}^2$ , whereas two-photon transitions require about  $10^{-6} \text{W/cm}^2$ .

The detection of the microwave transition is performed after the atom have crossed the cavity in the second condenser (at the right of figure 1), via the well-known field ionization technique [1]. A ramp of electric field is applied to the atom, which reaches at slightly different times the threshold value for ionization of the upper and lower level of the transition. The resulting electrons are collected by an electron multiplier and the upper and lower states contribution appear as time resolved peaks in the electron multiplier output.

A computer interfaced to the experiment determines the ratio of these contributions as the microwave frequency is swept, thus providing the resonance recording. In some instances ( $nP \rightarrow nS$  transitions with the same  $n$ -value), the two levels ionize in practically the same field so that the above method has to be slightly modified. One can in this case take advantage of the fact that the  $nS$  state has a radiation lifetime shorter than

the  $nP$  one. Thus the total  $nP+nS$  population decreases faster during the atomic flight time from the cavity to the detection region if an  $nP \rightarrow nS$  transition is induced. The total ionization signal then undergoes a resonant variation when the microwave frequency is swept through resonance.

## II. Observed transitions. Quantum defect analysis

Figure 2 presents an energy diagram of Lithium Rydberg levels indicating with arrows the transitions we have observed. Typical examples of S-S two-photon resonances are shown on figure 3. Three single-photon S-P resonances are displayed on figure 4. Note the difference in width and in symmetry between the two-photon and single photon lines. The asymmetry of the P-S transitions is ascribed to Stark broadening in stray fields. Figures 4-a and 4-b correspond to upward transitions (microwave absorption from  $23P$  to  $24S$  and from  $25P$  to  $26S$ ) whereas figure 4-c corresponds to a downward transition (microwave induced emission from  $21P_{3/2}$  to  $21S$ ). The Stark broadening presents an asymmetrical tail towards high frequency in the first case and towards low frequencies in the second one, as can be easily understood from a simple examination of Li Stark maps [7]. Note also that the fine structure splitting of the  $23P \rightarrow 24S$  line ( $23P_{3/2} \rightarrow 24S$  and  $23P_{1/2} \rightarrow 24S$  components) is observable on fig. 4a.

All the frequencies measured in these experiments are gathered in tables I, II, and III which correspond respectively to S-S, P-S and P-P transitions. The first column in each table gives, in MHz, the observed microwave frequency  $F$  in  ${}^6\text{Li}$  (i.e half the transition frequency in the case of two-photon lines). The error is estimated at about 1/10 of the linewidth (typical measurement reproducibility). The second column gives  $\Delta F$ , the experimental linewidth at half maximum (in kHz), and the third column the difference  $\delta F$  between  $F$  and the value predicted from the quantum defect

formula derived below. Columns 4, 5 and 6 present the same data for  ${}^7\text{Li}$  and the last column gives the ratio between the  ${}^7\text{Li}$  and  ${}^6\text{Li}$  frequencies (departure of this ratio from 1, multiplied by  $10^5$ ).

In order to derive from these data the quantum defects of the levels, we follow the procedure already discussed in our previous studies [1-2]. We remark that any frequency interval between two states  $n\ell$  and  $n'\ell'$  can be expressed by the Rydberg formula:

$$h\nu(n\ell \rightarrow n'\ell') = R({}^x\text{Li}) \left\{ \left[ n - \delta_{\ell}(n) \right]^{-2} - \left[ n' - \delta_{\ell'}(n') \right]^{-2} \right\} \quad (1)$$

$R({}^x\text{Li})$  is the Rydberg constant corresponding to the reduced electron mass in isotope  ${}^x\text{Li}$  ( $x = 6$  or  $7$ ):

$$R({}^x\text{Li}) = R(\infty) \times \left[ 1 + \frac{m}{M({}^x\text{Li}^+)} \right]^{-1} \quad (2)$$

( $m$  : electron mass;  $M({}^x\text{Li}^+)$  = mass of the  ${}^x\text{Li}^+$  ion core). We have for  ${}^6\text{Li}$  and  ${}^7\text{Li}$ :

$$R({}^6\text{Li}) = 3.28954190(1) \cdot 10^9 \text{ MHz}$$

$$R({}^7\text{Li}) = 3.28958470(1) \cdot 10^9 \text{ MHz}$$

with the ratio :

$$R({}^7\text{Li}) / R({}^6\text{Li}) = 1 + 1.3011(12) \cdot 10^{-5} \quad (3)$$

In equation (1),  $\delta_{\ell}(n)$  and  $\delta_{\ell'}(n')$  are the quantum defects of the initial and final states which mostly depend on  $\ell$  and only slightly on  $n$ . The  $n$ -dependence can be expressed by the Ritz formula:

$$\delta_{\ell}(n) = \delta_{\ell}(\infty) + a_{\ell} \left[ n - \delta_{\ell}(\infty) \right]^{-2} + \dots \quad (4)$$



The aim of our analysis is to obtain from the measured frequencies the  $\delta\rho(\infty)$  and  $a\rho$  coefficients.

1\*) Analysis of the S-S transitions

We start by analyzing the  $nS-(n+1)S$  intervals, which yield the  $nS$  states quantum defects. To each transition frequency  $nS \rightarrow (n+1)S$  we attach an "effective" quantum defect  $\delta_S^*(\bar{n})$  defined by:

$$2F = R(^X\text{Li}) \left\{ (n - \delta_S^*(\bar{n}))^{-2} - (n+1 - \delta_S^*(\bar{n}))^{-2} \right\} \quad (5)$$

with  $\bar{n} = n+0.5$ .

The effective quantum numbers obtained in this way for  ${}^6\text{Li}$  and  ${}^7\text{Li}$  are plotted against  $(n-0.3995)^{-2}$  on figures 5 and 6. The variation is found to be linear and extrapolation to zero binding energy ( $n \rightarrow \infty$ ) yields the  $\delta_S(\infty)$  coefficient. We then obtain from the individual frequency measurements the  $a_S$  coefficients and the quantum defect expansions:

$$\delta_S(n, {}^6\text{Li}) = 0.3995106(15) + 0.0288(6) (n - 0.3995)^{-2} \quad (6)$$

$$\delta_S(n, {}^7\text{Li}) = 0.3995101(10) + 0.0290(5) (n - 0.3995)^{-2} \quad (7)$$

Within the experimental uncertainties, the results are identical for both isotopes. The physical interpretation of this result will be discussed below.

2\*) Analysis of the S-P transitions

Knowing the S quantum defects, we can now use the  $nS \rightarrow n'P$  transition to determine in turn the quantum defects in the P states. Let us notice that the  $P_{3/2}$  and  $P_{1/2}$  series have different energies, due to fine structure. We have generally observed the  $P_{3/2}$  levels, which are more populated than the  $P_{1/2}$  one by the laser excitation process. We thus give here the analysis for the  $P_{3/2}$  levels only. The  $P_{1/2}$  energy levels can be deduced by adding the  $nP_{3/2} - nP_{1/2}$  intervals, our fine structure results being summarized in section II.4 below.

In order to get the most accurate quantum defect determination, we have restricted our analysis to the lower state of the Rydberg series ( $18 \leq n \leq 25$ ), for which the Stark perturbation is the smallest.

Using the S quantum defect values and the results of table II, we get:

$$\delta P_{3/2}(n, {}^6\text{Li}) = 0.047172(2) - 0.024(1) (n - 0.0471)^{-2} \quad (8)$$

$$\delta P_{3/2}(n, {}^7\text{Li}) = 0.047166(2) - 0.024(1) (n - 0.0471)^{-2} \quad (9)$$

The variation of these quantum defects with  $n$  are plotted on figure 7. We note that the quantum defects are now different for both isotopes with an average difference:

$$\langle \delta P_{3/2}(n, {}^6\text{Li}) - \delta P_{3/2}(n, {}^7\text{Li}) \rangle = 6.4 (1.6) 10^{-6} \quad (10)$$

This last result will be discussed in section III below.

### 3\*) Analysis of the P-P transitions

The P state quantum defects can also be obtained directly, without having to rely on the S-state determination, by analyzing the two-photon  $nP \rightarrow (n+1)P$  transition frequencies. The P-P resonances are about twice broader than the S-S ones, so that the accuracy of this procedure is not as good as for the S states. Figure 8 shows the variation of the effective quantum defects of the P-P transition. From these variations, one gets the following values of the quantum defects:

$$\delta P_{3/2}(n, {}^6\text{Li}) = 0.047168(10) - 0.0234(20) (n - 0.0471)^{-2} \quad (11)$$

$$\delta P_{3/2}(n, {}^7\text{Li}) = 0.047166(10) - 0.0259(20) (n - 0.0471)^{-2} \quad (12)$$

These results are consistent with the ones obtained from the S-P measurements. They are however less precise and we will prefer the former ones (Eqs 8 and 9).

Using equations (6) to (9), we can in turn compute a "theoretical" value for the frequency of each transition in tables I, II and III. The  $\delta F$  columns in these tables show the difference between the actual measurement and this "theoretical" value. We thus see that the quantum defect formula allows us to predict with a precision always better than a MHz the frequency of any Rydberg transition in the S, P states with  $18 \leq n \leq 35$ .

### 4\*) Fine structure Intervals

Finally, we give in table IV the fine structure intervals  $nP_{3/2} - nP_{1/2}$  which have been measured for eight levels. Let us remark that these intervals can be deduced from the known fine structure splitting [6] in the  $n=2$  state by a well-verified  $(n - \delta_p)^{-3}$  scaling law, all the fine structures in Li  $nP$  states being well described by the formula:

$$\Delta E(nP_{3/2} - nP_{1/2}) = C / (n - \delta_p)^3 \quad (13)$$

with  $\delta_p = 0.471$  and  $C = 76000(4000)$  MHz (in good agreement with the value  $C=78000(4000)$  MHz deduced from the line structure of the 2P level [6]).

Due to this  $(n-\delta_p)^{-3}$  dependence of the fine structure interval, the quantum defects have a constant difference  $\delta_{p_{1/2}}(n) - \delta_{p_{3/2}}(n) = 1.15(7)10^{-5}$ , leading to the quantum defects, summarized in table V.

### III. The specific isotopic shift in the Rydberg nP states of Lithium

In this section, we discuss the isotopic shifts between  ${}^6\text{Li}$  and  ${}^7\text{Li}$  Rydberg transition frequencies and we put in evidence a contribution to this shift due to exchange between Rydberg and core electrons.

#### 1\*) A reminder about isotope shifts

It is well known that the isotope shift of an electronic transition is the sum of three terms corresponding to different effects:

(i) The volume effect which is a correction due to the finite size of the atomic nucleus, more precisely to the change of that size from one isotope to the other. This contribution is completely negligible in light elements like lithium.

(ii) The ordinary mass effect which takes into account the recoil of the nucleus due to the motion of the electrons, considered to be independent from each other. This effect is entirely described by changing in the Schrödinger equation the electron mass  $m$  by the reduced mass  $mM/(m+M)$  where  $M$  is the mass of the nucleus. If this effect were alone to be considered, the frequency ratio between the two Li isotopes would merely be equal to the reduced mass ratio, i.e. to a number practically equal to  $R({}^7\text{Li})/R({}^6\text{Li})$  as it is given in equations (3).

(iii) The specific effect which is a correction taking into account the fact that the nucleus kinetic energy in the atom center of mass frame depends upon the correlated motion of the electrons [9]. This effect is described by the perturbation [9]:

$$W_S = \sum_{i \neq j} \frac{\vec{\pi}_i \cdot \vec{\pi}_j}{2M} \quad (14)$$

where  $\vec{\pi}_i, \vec{\pi}_j$  are the momenta of electrons  $i, j$ .

To first order, the specific shift is thus :

$$\Delta E_S(n\ell) = \langle \psi_{n\ell} | W_S | \psi_{n\ell} \rangle \quad (15)$$

where  $|\psi_{n\ell}\rangle$  is the wave function of the Li atom in the Rydberg state  $n\ell$ .

Taking into account the exchange symmetry, this wave function is:

$$|\psi_{n\ell}\rangle = \sqrt{3} |A| 1s, 1s, n\ell \rangle \quad (16)$$

where

$$A = \frac{1}{3} \sum_P (-1)^P \hat{P}$$

is the antisymmetriser operator ( $\hat{P}$  : electronic permutation of parity  $p$ ).

One thus has:

$$\Delta E_S(n\ell) = 3 \langle 1s, 1s, n\ell | \left[ \sum_{i \neq j} \frac{\vec{\pi}_i \cdot \vec{\pi}_j}{2M} \right] |A| 1s, 1s, n\ell \rangle \quad (17)$$

(we have used the fact that  $A$  and  $W_S$  commute and  $A^2 = A$ ). Equation

(17) is immediately developed as:

$$\Delta E_S(n\ell) = \frac{1}{M} \left\{ \langle \vec{\pi}_1 \cdot \vec{\pi}_2 (1 - \hat{P}_{12}) \rangle + \langle \vec{\pi}_1 \cdot \vec{\pi}_3 (1 - \hat{P}_{13}) \rangle + \langle \vec{\pi}_2 \cdot \vec{\pi}_3 (1 - \hat{P}_{23}) \rangle \right\} \quad (18)$$

where  $\hat{P}_{12}$ ,  $\hat{P}_{13}$  and  $\hat{P}_{23}$  are the operators exchanging electrons 1 and 2, 1 and 3 and 2 and 3 respectively and the  $\langle \rangle$  denotes an average performed in the unsymmetrized state  $|1s, 1s, n\ell\rangle$ .

We now notice that  $\vec{\pi}$  has zero matrix element between S states. It follows that  $\Delta E_S(nS)$  is zero and that nS Rydberg states do not have any specific shift to first order.

For nP states ( $\ell=1$ ), the first term in equ.(18) is zero because electrons 1 and 2 are both S-electrons. The direct contribution in the second and third terms are also zero because the average values of  $\vec{\pi}_1$  and  $\vec{\pi}_2$  in S-states vanish. Finally, we have:

$$\begin{aligned} \Delta E_S(nP) &= -\frac{1}{M} \langle 1s, 1s, np | \vec{\pi}_1 \vec{\pi}_3 | np, 1s, 1s \rangle \\ &\quad - \frac{1}{M} \langle 1s, 1s, np | \vec{\pi}_2 \vec{\pi}_3 | 1s, np, 1s \rangle \\ &= -\frac{2}{M} |\langle 1s | \vec{\pi} | np \rangle|^2 \end{aligned} \quad (19)$$

and the specific shift between  ${}^7\text{Li}$  and  ${}^6\text{Li}$  is :

$$\begin{aligned} \Delta E_S(nP, {}^7\text{Li}) - \Delta E_S(nP, {}^6\text{Li}) &= 2 \frac{(M(7) - M(6))}{M(6) \cdot M(7)} |\langle 1s | \vec{\pi} | np \rangle|^2 \\ &\approx \frac{1}{21M_0} |\langle 1s | \vec{\pi} | np \rangle|^2 \end{aligned} \quad (20)$$

where  $M_0 \approx 1836 m$  is the nucleon mass.

In this equation, the matrix element is evaluated between a core 1S wave-function and the Rydberg electron nP one. Since this contribution comes from an exchange term in Equ.(18), the specific shift is to first

order entirely due to the indiscernability between the valence and the core electrons in Li.

2\*) Observation of the specific shift in Li nP states

The existence of a specific shift results in a departure of the  $F(^7\text{Li})/F(^6\text{Li})$  frequency ratio from the reduced mass ratio. Similarly, a non-zero specific shift must produce a difference between the quantum defects of  $^6\text{Li}$  and  $^7\text{Li}$  as they have been defined in the previous section.

A mere inspection of table I (last column) and Eqs. (6)(7) shows that the isotope shifts we have observed in the nS Rydberg series are consistent with an ordinary mass effect and that the specific shift in these levels is zero to the accuracy of our measurements. We are thus not sensitive to second order effects which -though configuration interaction- should produce a small specific shift in S-states [10].

On the other hand, the last column of tables II and III as well as Eq. (10) show a marked departure from a pure reduced mass effect for nP Rydberg states. We now show that the residual shift has the sign and magnitude one expects of the specific effect.

We have represented on figure 9 three consecutive energy levels nS, nP and (n+1)S for n=21 in  $^6\text{Li}$  (thick lines) and the corresponding levels in  $^7\text{Li}$  (thin lines). The absolute position of the levels is given from the ionization limit. The position of the nS and (n+1)S levels is obtained by using the Rydberg formula  $E(nS) = -R/(n-\delta_S)^2$  with the experimentally determined quantum defects (Eqs. 6, 7). The nP level position is then obtained by adding the frequency of the measured nS-nP transition to the nS (negative) energy or by subtracting the frequency of the measured nP-(n+1)S transition from the (n+1)S energy. (Both measurements are checked to be consistent). In addition, we have represented in dashed lines

on the same figure the position of the  ${}^7\text{Li}$  levels as they would be deduced from the  ${}^6\text{Li}$  data (homothety by the coefficient in Eq. 3) if only the reduced mass effect were contributing. Four  $n$ -values have been analyzed in this way ( $n = 18, 21, 23$  and  $25$ ). In all cases, the actual and "reduced mass"  ${}^7\text{Li}$  level positions are identical for  $nS$  states, whereas the actual  $nP_{3/2}$   ${}^7\text{Li}$  level is systematically higher than the reduced mass position.

The difference between the two positions gives the specific isotopic shift  $\Delta E_S(nP, {}^7\text{Li}) - \Delta E_S(nP, {}^6\text{Li})$ . This specific shift is tabulated in table VI and compared with the theoretical values obtained by computing equation (20). In this equation, the  $1S$  core electron wave-function has been chosen as the simple  $\text{Li}^+$  helium-like variational wave function ( $\psi_{1S}(r) \propto e^{-Z_0 \cdot r/a_0}$  with  $Z_0 = 3-5/16$ ) and the  $nP$  Rydberg electron wave-function has been computed by solving the one electron Schrödinger equation in the Coulomb potential of the  $\text{Li}$  nucleus shielded by the two core electrons. We see that this very simple theoretical model is -within the experimental uncertainties- in good agreement with the experimental results.

The specific isotopic shift in  $2P$  and  $3P$  states has been previously measured [3] and theoretically estimated [10]. It is worth noting that the shifts measured in this work are about three orders of magnitude smaller than the ones measured in the  $2P$  and  $3P$  states (3608 and 1298MHz respectively), which roughly corresponds to a  $1/n^3$  scaling law for the effect. The fast decrease of the shift with increasing  $n$  is well explained by the fact that the effect comes from an exchange process between the core electron, localized around  $r=0$  and the valence electron, whose wave-function extends over a very large distance from the nucleus. The specific shift effect thus appears as a kind of contact term and must be roughly proportional to the probability of finding the Rydberg electron in the vicinity of the nucleus, i.e. proportional to  $n^{-3}$ . It is also worth noting that a



specific shift has been measured [3,4] for the lowest S states of Li (2S, 3S, 4S). This shift, ascribed to configuration mixing is about 3 times smaller in the 2S than in the 2P state and 5 times smaller in the 3S than in the 3P state. Following this trend, it is expected to become very small in high n-states, which is consistent with the fact that we have not observed it to the accuracy of our measurements.

The observation of the specific shift in nP states as high as n=25 is to our knowledge the first evidence of an exchange effect between a tightly bound core electron and a very weakly bound Rydberg electron in an alkali atom.

The measurements described in this article are restricted to S and P Rydberg series. We are currently extending the measurements to highly angular momentum states, for which the quantum defects are very small and reflect the polarizability of the Li ion core. Using the microwave adiabatic fast passage technique in an external electric field [11], it is in fact possible to prepare and study Rydberg levels with  $l$  as high as  $n-1$  (maximum angular momentum or circular state). The spectroscopy of these states is presently under way in our laboratory [12].

#### ACKNOWLEDGMENTS

*Thanks are due to R.CANO, B.ZANFAGNA, Mlle F.SIMONET, DRFC-SCP, Centre d'Etudes Nucléaires de Fontenay-aux Roses, to A.CLAIRON and B.DAHMANI, L.P.T.F., Observatoire de Paris, to J.C.PERNOT and G.BEAUDIN, Radioastronomie millimétrique, Meudon-ENS, Paris, and to C.MAUC, Siemel Company, Cachan, for loaning of millimeter equipments.*

## REFERENCES

1. C. FABRE, S. HAROCHE and P. GOY, Phys. Rev. A18, 229 (1978); Phys. Rev. A22, 778 (1980); and P. GOY, C. FABRE, M. GROSS and S. HAROCHE, J. Phys. B13, L83 (1980).
2. P. GOY, J. M. RAIMOND, G. VITRANT and S. HAROCHE, Phys. Rev. A26, 2733 (1982).
3. R. H. HUGHES, Phys. Rev. 99, 1837 (1955).
4. C. J. LORENZEN and K. NIEMAX, J. Phys. B: At. Mol. Phys. 15, L139 (1982).
5. R. MARIELLA, Jr., Appl. Phys. Lett. 35, 580 (1979).
6. P. GOY, *Infrared and Millimeter Waves*, K. J. Button Ed., Academic Press, Vol. 8, Part I, Chap. 8, 341 (1983).
7. M. ZIMMERMAN, M. LITTMAN, M. KASH and D. KLEPPNER, Phys. Rev. A20, 2251 (1979).
8. S. BASHKIN and J. O. STONER, *Atomic Energy Levels*, Vol. 1, North Holland (1975); and Li Mingguang, Wang Yine, Wang Chongye, Li U, Shi Fangyong, Yu Shiyong, Huang Shanggun, Cai Zengliang, Li Junxiang, Feng Ze, Zhang Yi, Zhu Qingshi, Chin. Phys. (USA), 3, 143 (1983).
9. D. S. HUGHES and C. ECKART, Phys. Rev. 36, 694 (1930).
10. S. S. PRASAD and A. L. STEWART, Proc. Phys. Soc. 87, 159 (1966).
11. R. G. HULET and D. KLEPPNER, Phys. Rev. Lett. 51, 1430 (1983).
12. J. LIANG, M. GROSS, P. GOY and S. HAROCHE, to be published.

## TABLE CAPTIONS

TABLE I

Two-photon S-S resonances observed in this work. The distance between successive  $nS$ ,  $(n+1)S$  levels is twice the measured value  $F$ . The values in brackets give the uncertainty on the last digits. The quantity  $\Delta F$  is the experimental width of resonance at half maximum, generally very close to the transit time limited value. The quantity  $\delta F$  is the difference between the observed  $F$  and the value predicted from Eq. (1) and from the quantum defect formula Eq. (7) which is good for both isotopes. The last column gives the deviation from unity of the frequency ratio between isotopes. The experimental values agree quite well with the Rydberg constants ratio given in Eq. (3).

TABLE II

One-photon  $P_{3/2}$ -S transitions observed in this work. Same symbols as in table I. Note that some transitions (downwards arrows) correspond to microwave stimulated emission, whereas the others (upwards arrows) correspond to microwave absorption from the  $P_{3/2}$  state. The ratios of frequencies between isotopes do not agree with the value in Eq. (3). They are either larger (for downwards-transitions) or smaller (upwards-transitions).

TABLE III

Two-photon  $P_{3/2}$ - $P_{3/2}$  transitions observed in this work. Same symbols as in table I. The ratios of frequencies between isotopes do not agree with the value in Eq. (3).

TABLE IV

Fine structure intervals observed in  ${}^6\text{Li}$  and  ${}^7\text{Li}$  for different  $n$  values on one- or two-photon transitions. The last column gives the predicted values according to Eq. (13).

TABLE V

Summary of the quantum defect formula retained for S and P states in Lithium. The first line corresponds to Eq. (7).

TABLE VI

The measured specific isotope shifts  $\Delta = \Delta E_S(nP, {}^7\text{Li}) - \Delta E_S(nP, {}^6\text{Li})$  expressed in MHz compared to the values  $\Delta'$  calculated from Eq. (20).

## FIGURE CAPTIONS

FIGURE 1

Experimental set-up. The Li atoms are excited either in  $nS$  Rydberg states by the lasers in position (1) inside the condenser, or in the  $nP$  states inside the microwave cavity by the lasers translated in position (2). An electric ramp voltage applied in b) ionizes the atoms and yields the ionization current in c).

FIGURE 2

Section of the lithium atom energy diagram near the ionization limit. Arrows represent the microwave transitions observed in this work.

FIGURE 3

Two typical recordings of the S-S two-photon resonances. a:  $24S-25S$  transition in  ${}^7\text{Li}$ . b:  $35S-36S$  transition in  ${}^6\text{Li}$ .

FIGURE 4

Typical recordings of P-S transitions. a: upwards-transition  $23P \uparrow 24S$  in  ${}^7\text{Li}$ . One observes the two fine structure components  $23P_{3/2} \uparrow 24S$  (the largest peak) and  $23P_{1/2} \uparrow 24S$  (the bump on the high frequency side). b:  $25P_{3/2} \uparrow 26S$  in  ${}^6\text{Li}$ . c:  $21P_{3/2} \uparrow 21S$  transition in  ${}^6\text{Li}$ .

FIGURE 5

The "effective quantum defect"  $\delta_S^*(\bar{n}, {}^6\text{Li})$  with its experimental uncertainties plotted against  $(n-0.3995)^{-2}$ . The  $\delta_S(n)$  line represents the deduced quantum defect  $\delta_S(n, {}^6\text{Li})$  variation according to Eq. (6).

FIGURE 6

Same as in Fig. 5 with  ${}^7\text{Li}$  isotope. The line  $\delta_S(n)$  is now given by Eq. (7). Notice that Figs. 5 and 6 can be practically superimposed: within the experimental uncertainties,  ${}^6\text{Li}$  and  ${}^7\text{Li}$  S-quantum defects are the same.

FIGURE 7

Quantum defects of the  $P_{3/2}$  states in  ${}^6\text{Li}$  (open dots) and  ${}^7\text{Li}$  (black dots) deduced by Eq. (1) from the P-S transition values in table II, and from the known variations of  $\delta_S(n)$  given in Eqs. (6,7). The diameter of the dots gives the vertical uncertainty. Solid lines correspond to Eqs. (8,9).

FIGURE 8

"Effective quantum defects"  $\delta_{P_{3/2}}^*(n)$  variations obtained from the P-P transitions described in table III.

FIGURE 9

Detail of Fig. 2 showing the  ${}^6\text{Li}$ - ${}^7\text{Li}$  isotopic shifts. All figure are expressed in MHz. From the observed positions of the  ${}^6\text{Li}$  levels (thick lines), we deduce the "reduced mass" positions of the  ${}^7\text{Li}$  levels (dashed lines). The observed  ${}^7\text{Li}$  levels (thin lines) coincide with this reduced mass position for the S states but not for the P states, due to the specific isotopic shift.

TABLE I

S - S	$F(^6\text{Li})$ (MHz)	$\Delta F$ (kHz)	$\delta F$ (kHz)	$F(^7\text{Li})$ (MHz)	$\Delta F$ (kHz)	$\delta F$ (kHz)	$F(^7\text{Li})/F(^6\text{Li}) - 1$ ( $10^{-5}$ )
23 - 24	267 105.172 (30)	500	- 41	267 109.698 (15)	116	9	1.320
24 - 25	235 199.467 (30)	196	43	235 202.485 (15)	176	1	1.283
28 - 29	148 344.552 (9)	65	- 10	148 346.491 (15)	130	- 1	1.307
29 - 30	133 565.267 (24)	119	- 1	133 566.983 (17)	130	- 23	1.285
31 - 32	109 410.839 (8)	71	- 2.5	109 412.266 (10)	54	0.5	1.304
33 - 34	90 476.964 (18)	141	- 1.5				
35 - 36	76 098.064 (9)	88	- 1	76 099.054 (7)	67	- 1	1.301
38 - 39	59 496.920 (11)	78	0	59 497.698 (10)	65	4	1.308
39 - 40	55 046.786 (11)	76	5.5	55 047.498 (7)	61	1	1.293

TABLE 2

$P_{3/2} - S$	$F(^5\text{Li})$ (MHz)	$\Delta F$ (MHz)	$\delta F$ (MHz)	$F(^7\text{Li})$ (MHz)	$\Delta F$ (MHz)	$\delta F$ (MHz)	$F(^7\text{Li})/F(^6\text{Li}) - 1$ ( $10^{-5}$ )
18 $\uparrow$ 18	412 921.21 (75)	9.8	- 0.61	412 934.4 (14)	6.8	0.96	3.19
21 $\uparrow$ 21	258 590.0 (9)	9.8	- 0.40	258 598.25 (50)	3.6	0.55	3.19
21 $\uparrow$ 22	442 513.0 (15)	11	- 0.49	442 516.0 (15)	11	0.68	0.68
23 $\uparrow$ 24	337 951.5 (3)	2.2	- 0.20	337 952.5 (8)	8.7	- 0.61	0.30
25 $\uparrow$ 26	263 902.0 (8)	8	0.46	263 902.5 (15)	3	- 0.15	0.19
28 $\uparrow$ 30				455 632.0 (40)		2.5	
31 $\uparrow$ 31				79 735.0 (20)		- 2.25	
31 $\uparrow$ 32	139 287.0 (6)	6.4	0.31	139 289.0 (30)		1.72	
31 $\uparrow$ 33				338 295.7 (26)	17	10.4	
32 $\uparrow$ 33	126 736.0 (20)	4	- 0.43	126 740.0 (40)		3.02	
33 $\uparrow$ 34				115 653.0 (30)		2.70	



TABLE 3

$P_{3/2} - P_{3/2}$	$F(^6\text{Li})$ (MHz)	$\Delta F$ (kHz)	$\delta F$ (kHz)	$F(^7\text{Li})$ (MHz)	$\Delta F$ (kHz)	$\delta F$ (kHz)	$F(^7\text{Li})/F(^6\text{Li}) - 1$ ( $10^{-5}$ )
21 - 22	333 540.000	800	- 393	333 545.000	1400	505	1.50
23 - 24	255 235.499 (22)	117	283	255 238.014 (60)	300	- 343	0.98
28 - 29	142 897.620	210	- 38	142 899.359 (10)	300	- 75	1.22
29 - 30	128 825.765 (51)	326	- 1	128 827.350 (10)	350	- 21	1.23
30 - 31	116 542.623	180	- 22	116 544.033 (30)	193	- 65	1.21
32 - 33	96 290.241 (26)	111	- 41				
34 - 35	80 471.538 (40)	73	- 32	80 472.573 (17)	138	- 6	1.29
38 - 39	57 875.723 (26)	79	- 12	57 876.477 (12)	102	- 16	1.25

TABLE IV

n	Transition	Observed fine structure (MHz)	$\Delta E$ (MHz)
18	18P - 18S	11.5 (8)	13.1 (7)
21	21P - 21S	8.2 (10)	8.3 (4)
23	23P - 24P	5.7 (3)	6.3 (3)
24	23P - 24P	5.6 (4)	5.5 (3)
25	25P - 26S	5.0 (5)	4.9 (3)
29	28P - 29P	3.2 (2)	3.1 (2)
30	29P - 30P	2.6 (5)	2.8 (1)
35	34P - 35P	2.3 (4)	1.8 (1)

TABLE V

Li isotope	State	Quantum defect formula
6 , 7	$S_{1/2}$	$0.399\ 510\ 1\ (10) + 0.0290\ (5)\ (n - 0.3995)^{-2}$
6	$P_{1/2}$	$0.047\ 183\ 5\ (20) - 0.024\ (1)\ (n - 0.0471)^{-2}$
6	$P_{3/2}$	$0.047\ 172\ 0\ (20) - 0.024\ (1)\ (n - 0.0471)^{-2}$
7	$P_{1/2}$	$0.047\ 178\ 0\ (20) - 0.024\ (1)\ (n - 0.0471)^{-2}$
7	$P_{3/2}$	$0.047\ 166\ 5\ (20) - 0.024\ (1)\ (n - 0.0471)^{-2}$

TABLE VI

n	$\Delta$ (MHz)	$\Delta'$ (MHz)
18	7.8 (20)	8.3
21	3.8 (14)	5.3
23	3.4 (11)	4.0
25	2.9 (20)	3.1

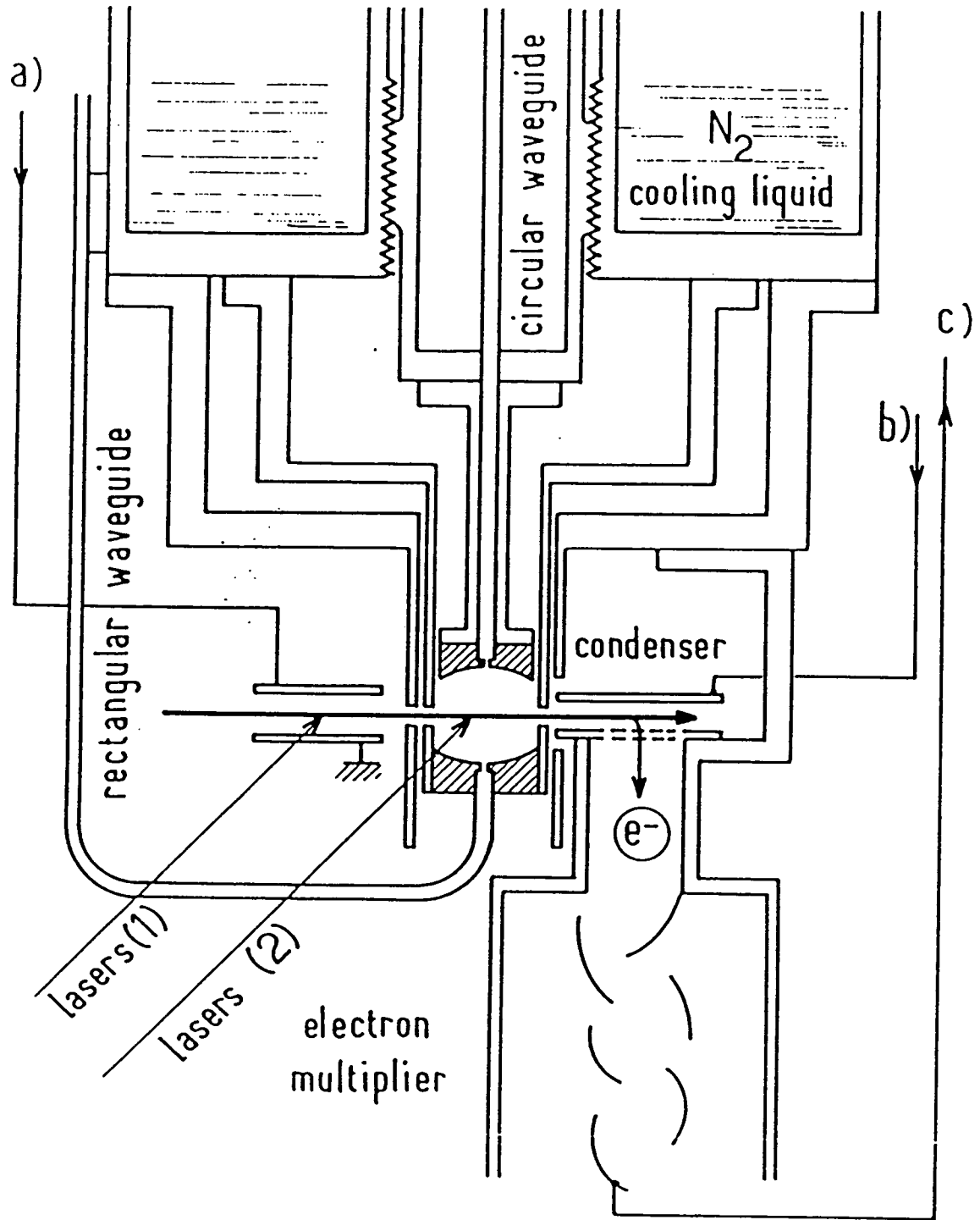


Fig.1

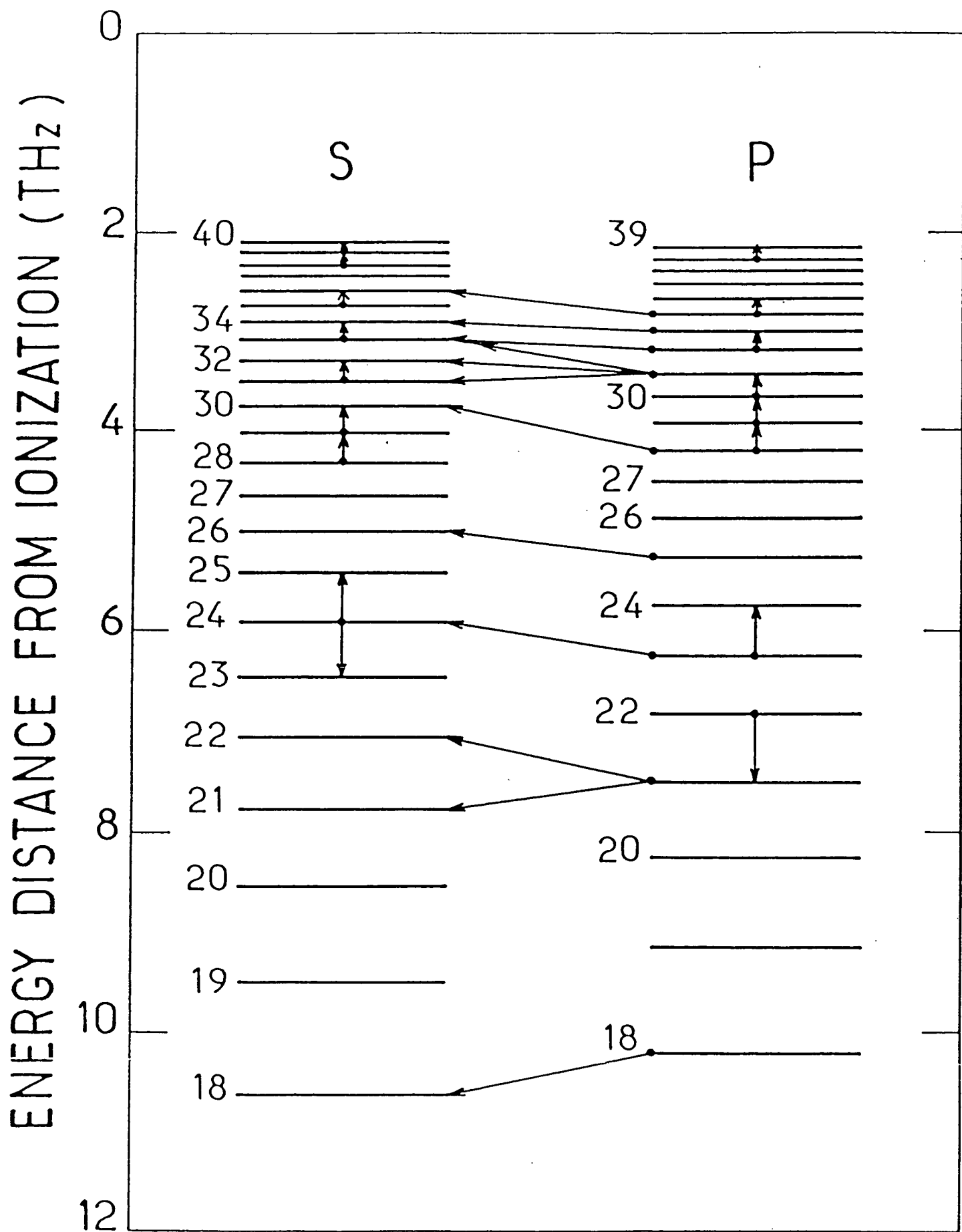


Fig.2

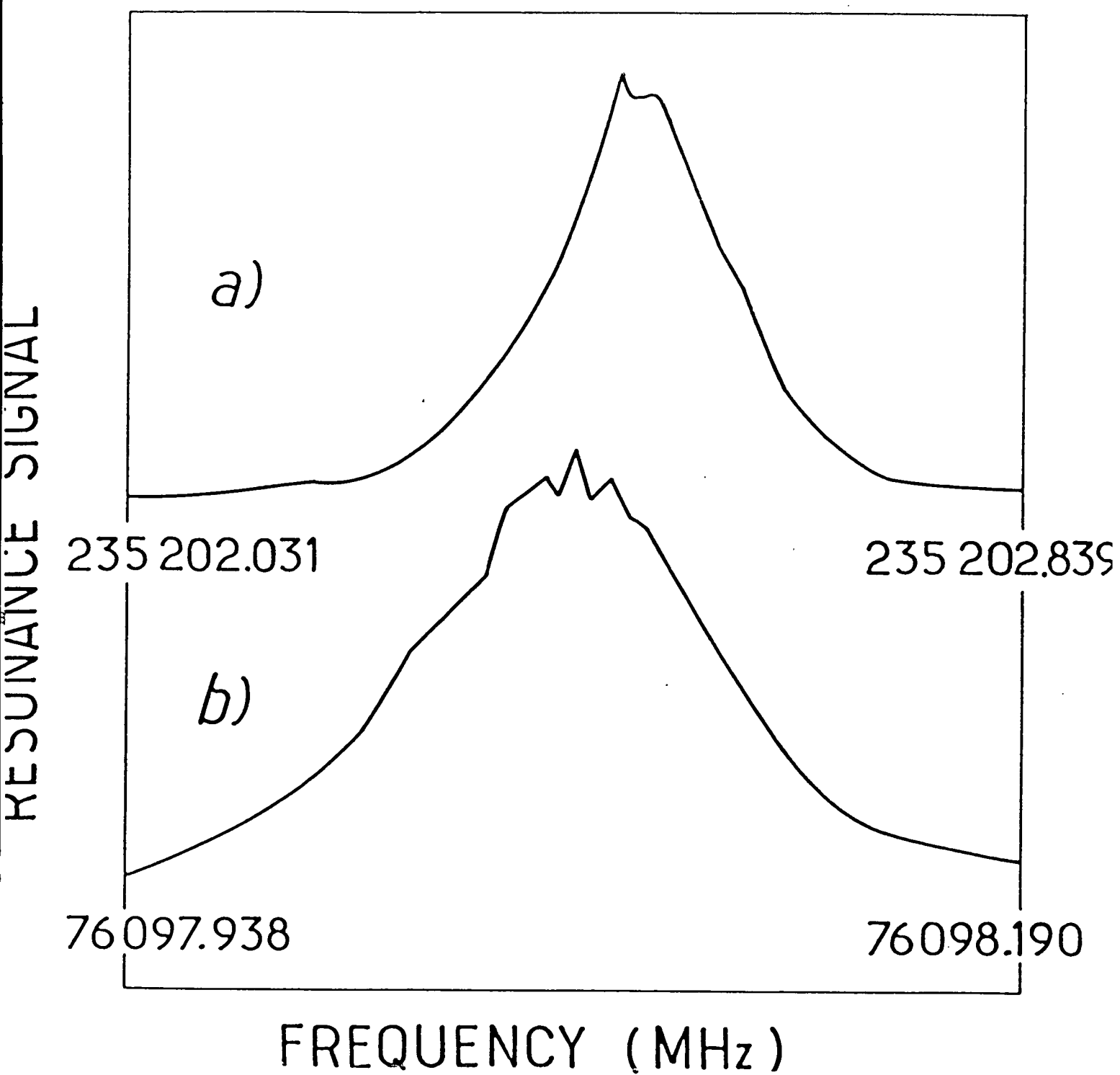


Fig.3 :

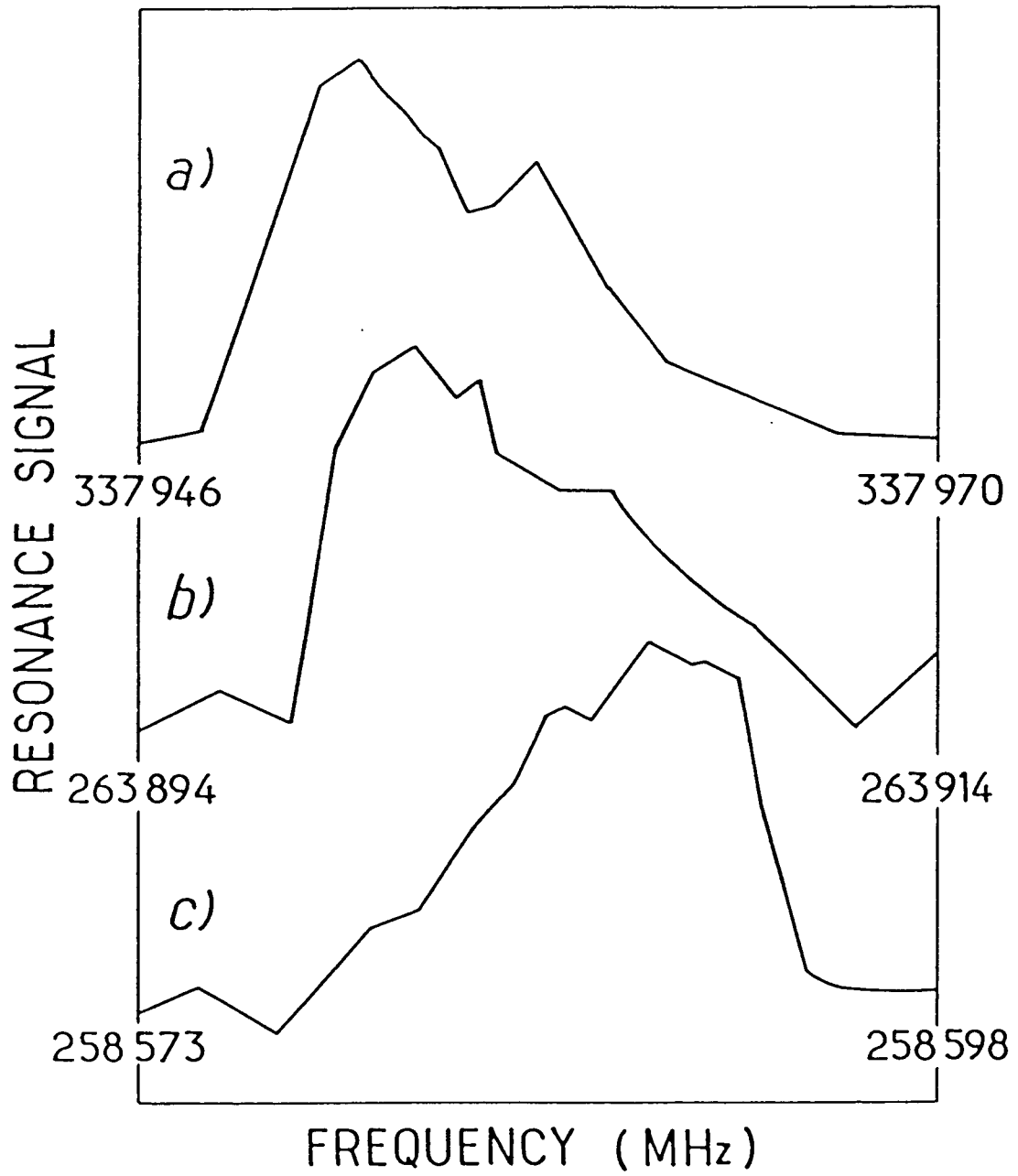


Fig.4



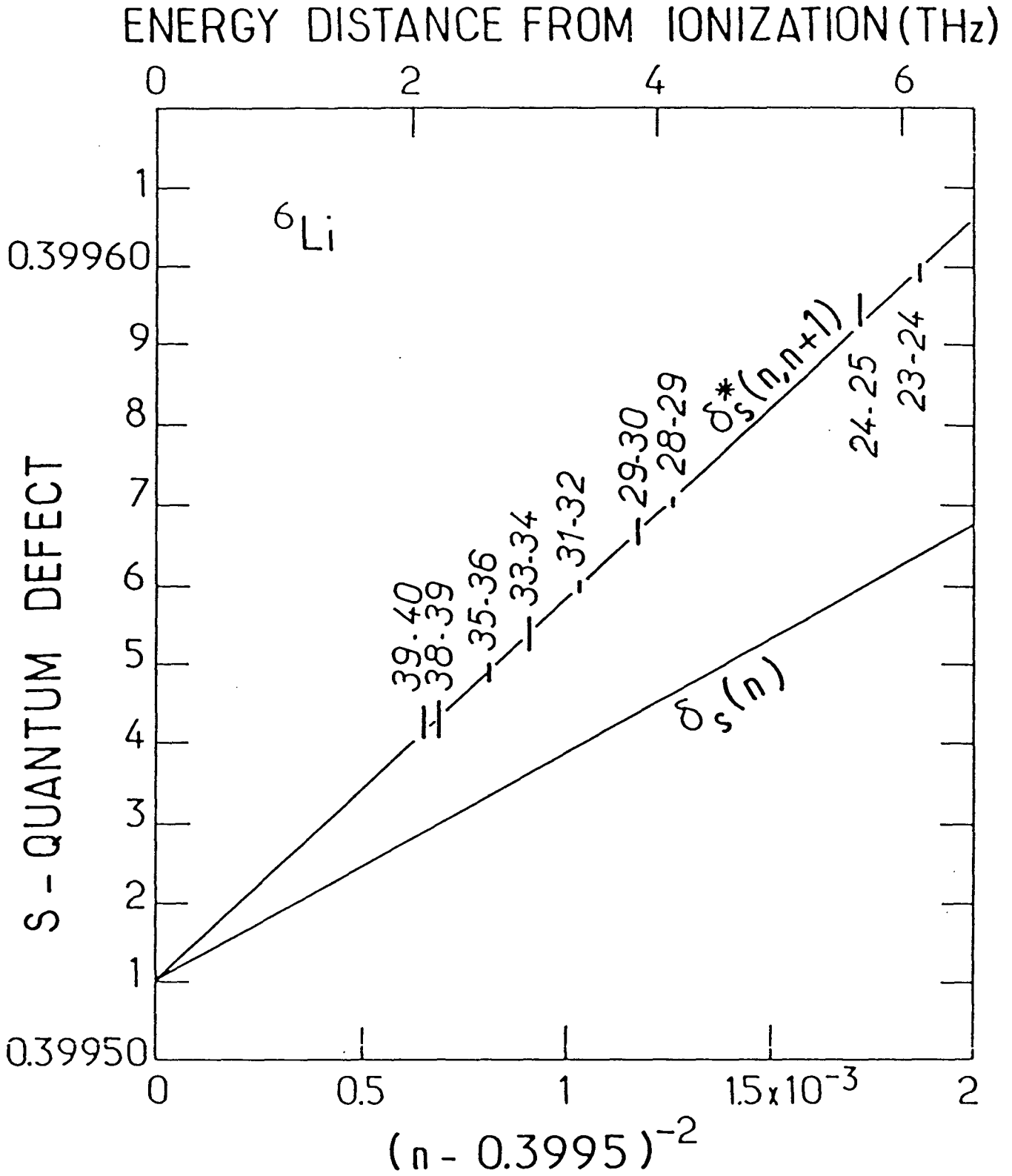


Fig.5

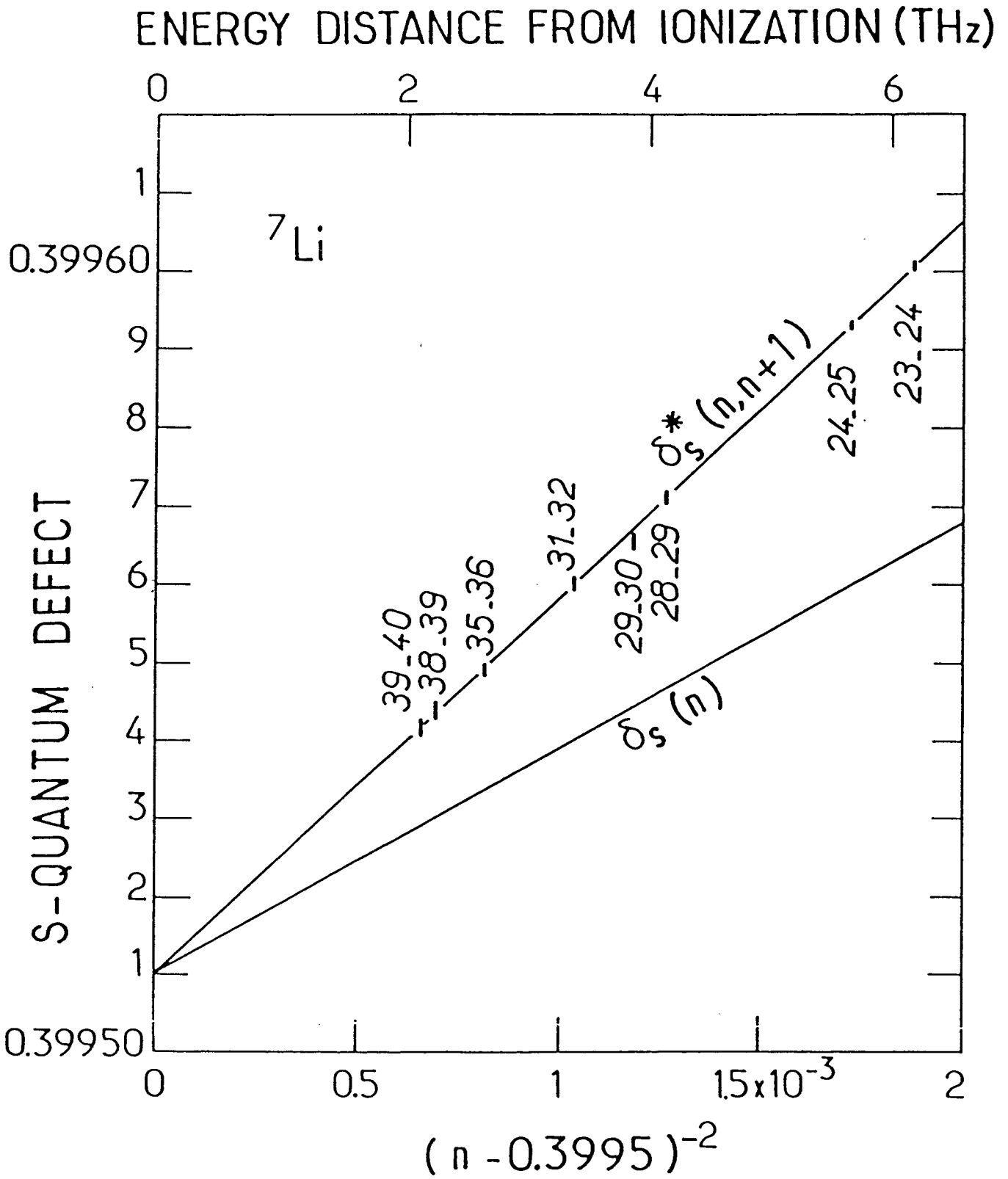


Fig.6

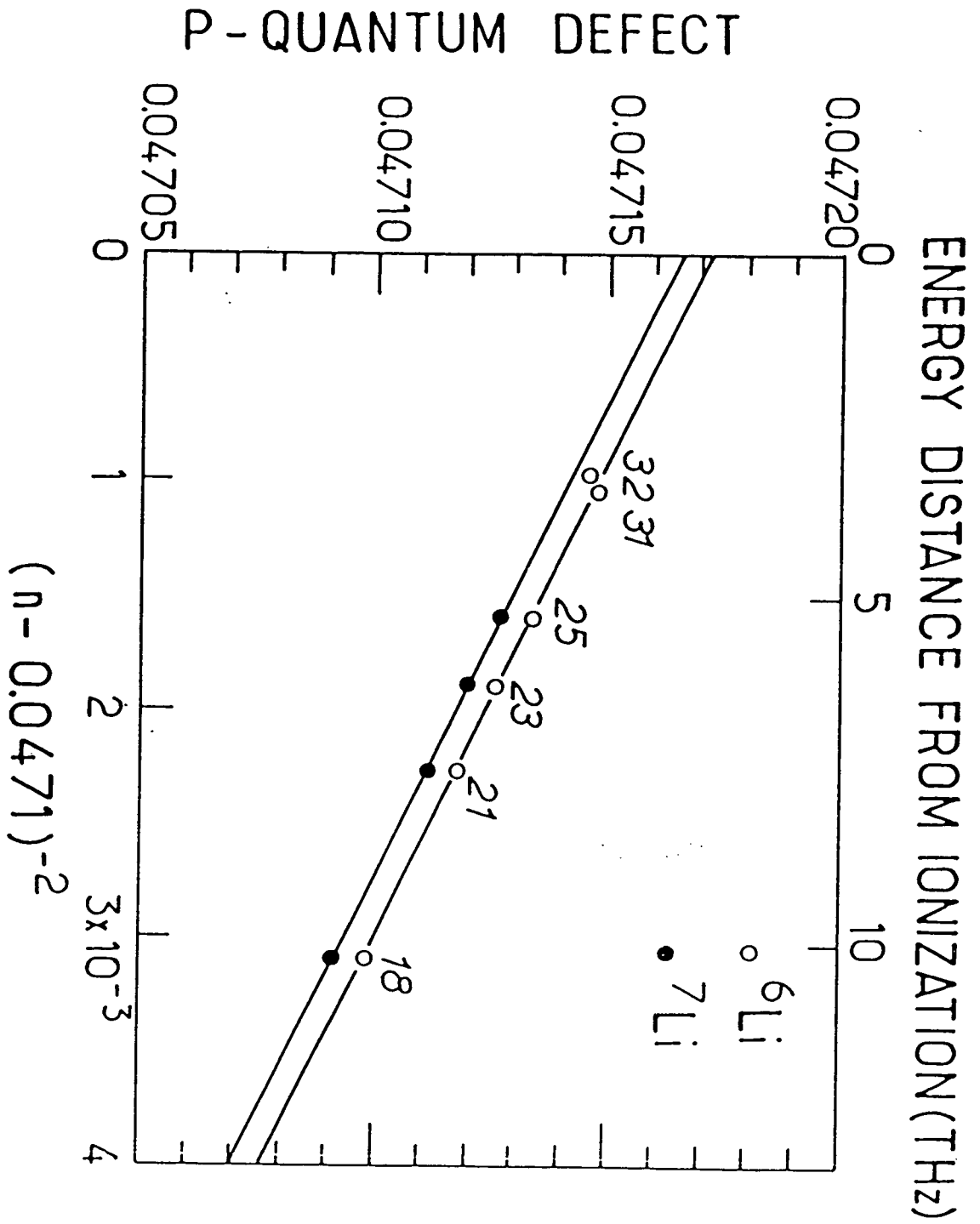


Fig.7

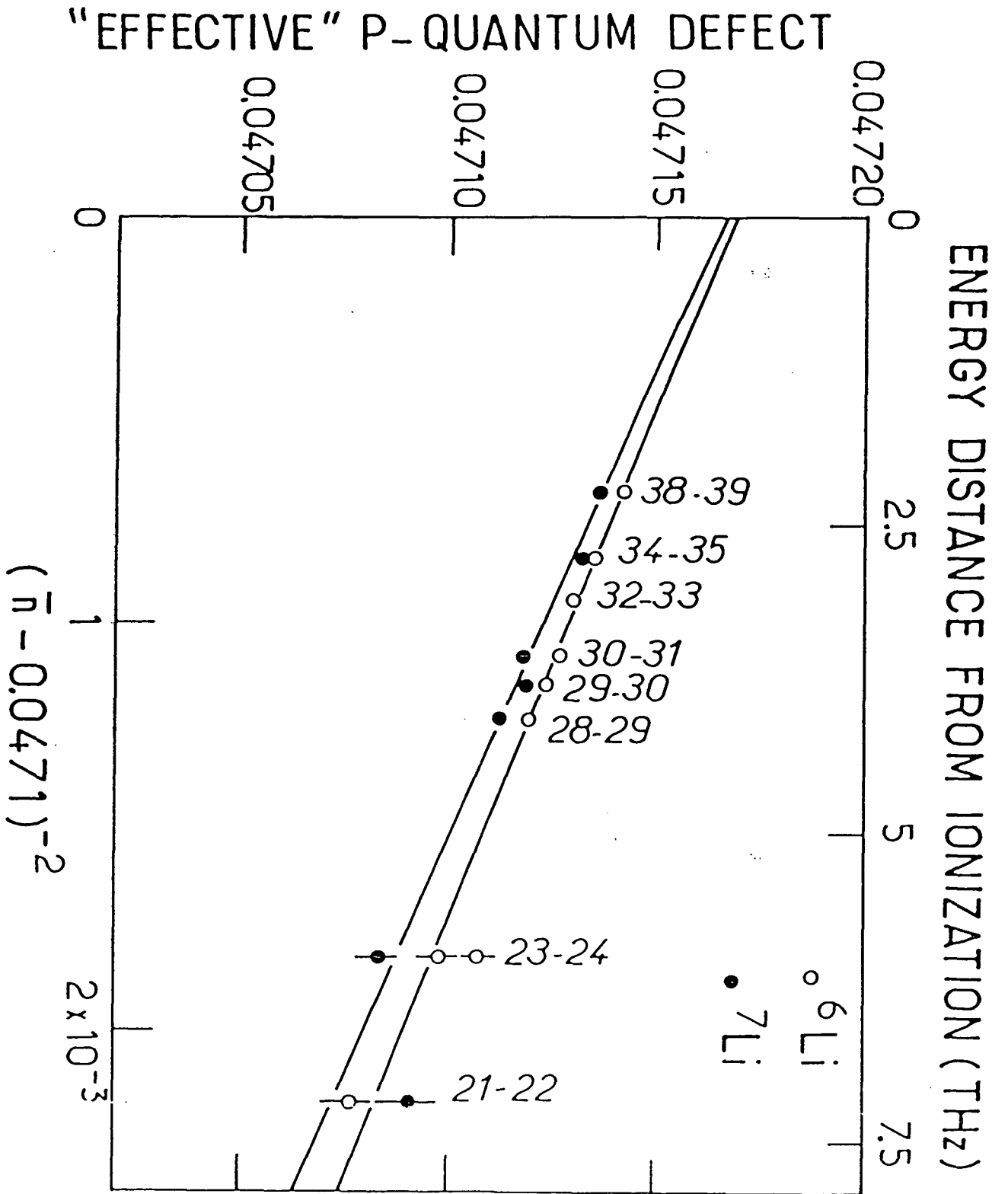


Fig.8

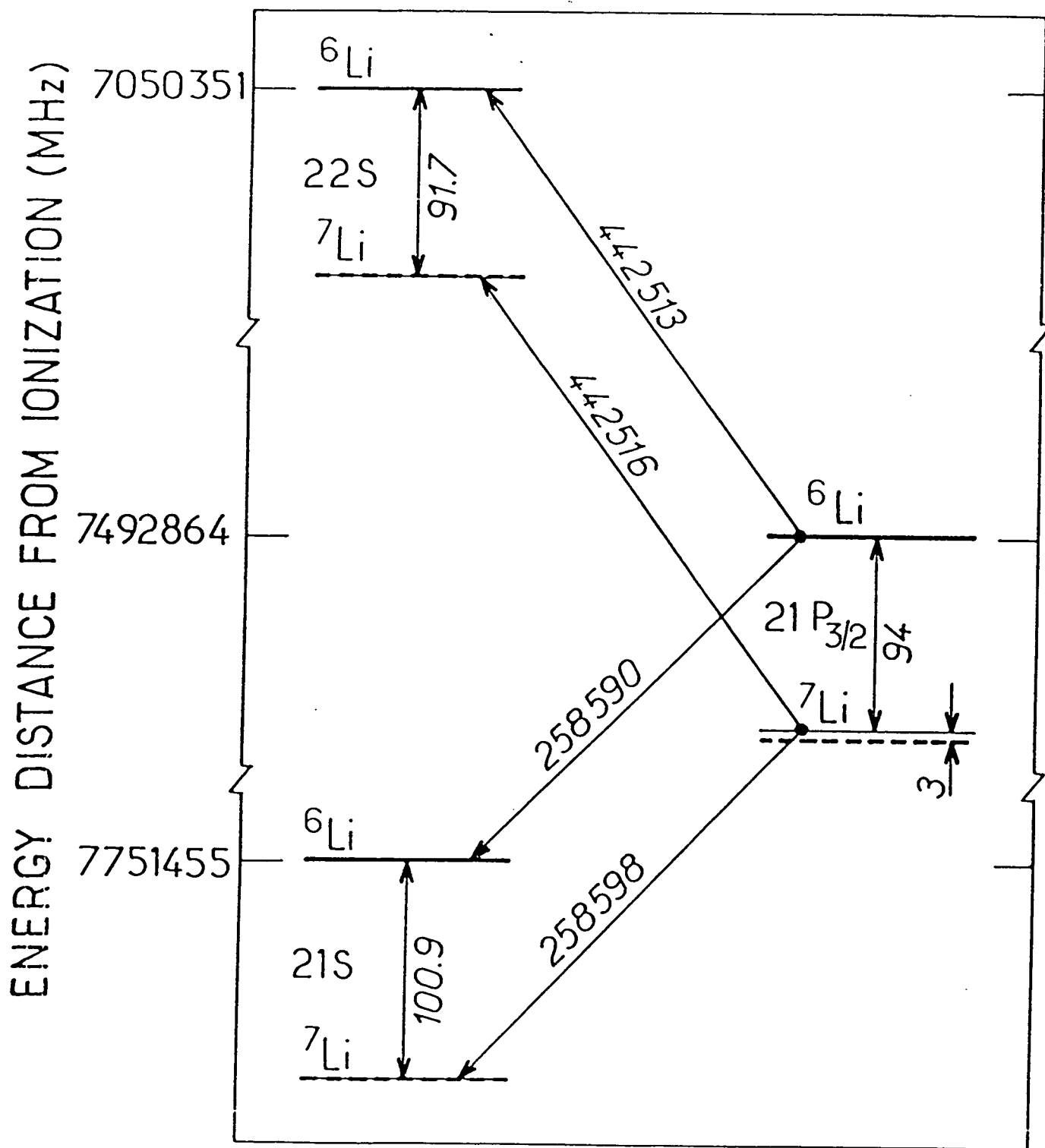


Fig.9

## APPENDICE IV

## THE "LAMP-LASER": REALIZATION OF A VERY LONG CAVITY DYE LASER

J. LIANG, L. MOI<sup>1</sup> and C. FABRE*Laboratoire de Spectroscopie Hertzienne de l'E.N.S., Associé au CNRS, 75231 Paris Cedex 05, France*

Received 30 July 1984

We describe in this paper a 17 m long cw dye laser, having a splitting between longitudinal mode frequencies of 8.8 MHz. Power, stability and spectral characteristics are specified. The detailed mode structure is shown to depend strongly on the position of the active medium inside the laser cavity. Applications to different physical problems are considered.

## 1 Introduction

The transition from lamp excitation to laser excitation of atomic species represented a great progress in atomic physics experiments, making it possible to study a large number of physical effects which were previously out of reach. The great advantages of lasers with respect to lamps are a dramatic increase in spectral power, spatial and temporal coherence, monochromaticity, and stability. But, contrary to lamps, lasers have an intrinsic mode structure, with a frequency splitting between modes  $\Delta\nu$  equal to  $c/2L$  ( $c$ : light velocity;  $L$ : length of the standing wave laser cavity). In the experiments where a power spectrum larger than the linewidth of a single mode is required, the usual multimode laser can only yield a highly inhomogeneous repartition of the spectral power, which may be a serious drawback in some cases. For example, in the case of inhomogeneously broadened absorption lines, and using commercially available dye lasers, only a small portion of the atoms can interact with the laser. In such applications, a light source having the advantages of a laser, but with the flat power spectrum of a lamp (which can be called a "lamp-laser") is highly needed. For example, a laser using a phase conjugate mirror instead of a usual mirror can be a kind of "lamp-laser".

We have built an approximation of such a "lamp-laser" by increasing by a large factor the total length of the laser cavity (up to 17 m), thus reducing the fre-

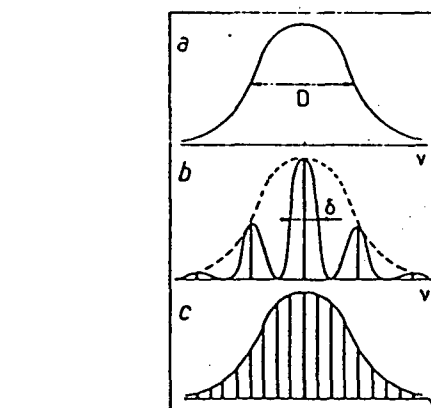


Fig. 1. (a) Spectrum of an inhomogeneously broadened excitation line of width  $D$ . (b) Excitation spectrum when using a short laser where  $c/2L \approx D$ .  $\delta$  is the homogeneous linewidth. (c) Excitation spectrum when using a long laser where  $c/2L \approx \delta$ .

quency difference  $\Delta\nu$  between laser modes. If  $\Delta\nu$  is less than, or equal to, the homogeneous width of the absorption line, then all atoms can be excited by such a laser, as if it were a continuous spectrum light source (see fig. 1). This paper is devoted to the description of the characteristics of this laser.

## 2. Description of the laser

We have used a home made,  $\text{Ar}^+$  laser pumped, Rhodamine 6G dye-laser (fig. 2). The dye jet DJ lies at

<sup>1</sup> Permanent address: Istituto di Fisica Atomica e Molecolare, CNR, Via del Giardino 7, 56100 Pisa, Italy.

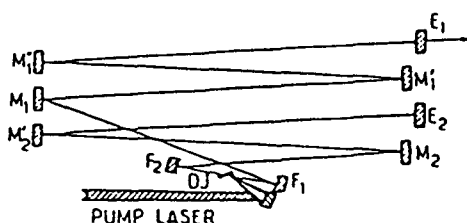


Fig. 2. Scheme of the laser cavity; DJ: dye jet,  $F_1$ ,  $F_2$  concave folding mirrors;  $E_1$ ,  $E_2$  plane end mirrors,  $M_1$ ,  $M_1'$ ,  $M_1''$ ,  $M_2$ ,  $M_2'$ ,  $M_2''$  plane mirrors.

distances  $d_1$  and  $d_2$  from two spherical folding mirrors  $F_1$  and  $F_2$ , of focal length  $f = 5$  cm. The lengths  $d_1$  and  $d_2$  are precisely adjustable, and their values are chosen close to  $f$ , so that the laser mode beams are nearly parallel after reflection on the mirrors  $F_1$  and  $F_2$ . The two arms of the laser cavity are limited by two plane end mirrors  $E_1$  and  $E_2$ , located at distances  $L_1$  and  $L_2$  from the folding mirrors.  $L_1$  and  $L_2$  can be varied over a large range of values, and for obvious practical reasons we have used several plane folding mirrors ( $M$ ) in each laser arm (up to 8) to reduce the overall dimensions of such a laser.  $L_1$  and  $L_2$  can be chosen equal (X-configuration cavity) or strongly unequal ( $L_1 \approx 1$  m,  $L_2 \approx 10$  m).

The maximum laser cavity length  $L$  ( $L = L_1 + L_2 + d_1 + d_2$ ) we have realized was 17 m, giving an inter-mode frequency interval of 8.8 MHz.

Such a laser system turns out to be remarkably simple to adjust. The only critical parameter is the adjustment of lengths  $d_1$  and  $d_2$  which control the beam divergence in the long arms. In the symmetrical X-configuration the mode stability condition gives the following length of tuning  $\delta$ :

$$\delta = f^2 / (L_2 - f),$$

which decreases with the laser length, and is equal to 0.3 mm for  $L = 17$  m. All the other geometrical parameters of the laser are not very critical (alignment of the plane mirrors, dye jet position, pump focussing), so that laser action is very easy to achieve, with the usual precautions concerning the mechanical stability of the laser cavity (built on a 2.5 m long, ground vibrations insulated, optical bench and with usual commercial mirror mounts). The relative power fluctuations for the laser well above threshold are of the order of 3% for  $L \approx 8$  m, 14% for  $L \approx 17$  m.

The mode waist  $w_0$  on the folding mirrors  $F_1$  and  $F_2$  increases with  $L$  as  $L^{1/2}$  (in the symmetrical configuration, one has:  $w_0 \geq \sqrt{L\lambda/\pi} = 1.8$  mm for  $L = 17$  m, where  $\lambda$  is the laser wavelength), so that one must use mirrors of large enough diameter in order to minimize diffraction losses. Using folding mirrors of diameter 7.75 mm, an output coupler of transmission 14% and a 4 plate-Lyot filter in the cavity, we have obtained around 589 nm an output power of 220 mW for 3.3 W pump power with a threshold of 700 mW for the 8 m long laser ( $L_1 = 6$  m,  $L_2 = 2$  m), and of 90 mW for the same pump power, with a threshold of 1 W, for the 17 m long laser ( $L_1 \approx 6$  m,  $L_2 \approx 11$  m). Some parameters in the laser have not been optimized for maximum output power and efficiency, especially the exact matching between the pump volume and the laser mode volume inside the dye jet: the laser mode waist  $w_0'$  in the active medium varies with  $L$  like  $L^{-1/2}$ , and the decrease of  $w_0'$  with  $L$  certainly accounts for the fact that the measured output power decreases slowly but regularly when  $L$  is increased. Let us finally remark that we have used a home made dye laser only because it allowed us to conveniently modify the lengths of the two laser cavity arms for studying different cavity configurations. It is also possible to build such long cavity dye lasers [6] starting from commercial dye lasers and extending only one arm with appropriate mirrors and careful adjustment of the folding spherical mirror.

### 3. Spectral characteristics

Two different experimental techniques have allowed us to obtain information about the spectral characteristics of such a laser:

(i) A variable thickness and sweepable plane Fabry-Perot analyzer (Burleigh) gives the envelope of all the laser modes.

(ii) The time dependence of the laser output power is Fourier analyzed by a fast photodiode (RTC) followed by an amplifier (Bandwidth: 0.01–400 MHz, or 0.1–1000 MHz) and a spectrum analyzer (Hewlett-Packard). This set-up gives the intensities of the beatnotes between simultaneous modes in the laser separated by a given frequency interval.

The first method indicates that the laser, at any point of its lasing range, has a power spectrum made of two peaks separated by 150 GHz, and having each a



width of 17 GHz for a 17 m long laser ( $L_1 = 6$  m,  $L_2 = 11$  m), and of 40 GHz for a 8 m long laser ( $L_1 \approx 6$  m,  $L_2 \approx 2$  m), with the 4 plate-Lyot filter as a unique wavelength selector. The total number of modes is in each case of the order of 4000. As a general rule, such a spectrum does not depend strongly on the position of the active medium inside the cavity and the spectrum width decreases when  $L$  increases. Such a two peak spectrum is not characteristic of a long cavity laser, but certainly reflects the sensitivity of such a broad laser power spectrum to the detailed features of losses in the cavity [1]. Because of the limited finesse ( $\approx 60$ ) of the Fabry-Perot analyzer, it was not possible to resolve individually each mode by this technique. When inserting a 1.7 mm thick etalon with coatings of reflectivity  $R = 7\%$ , we obtained two groups of lasing modes, separated by the etalon free spectral range 59 GHz, and each having a total width of nearly 5 GHz, well suited for example to the excitation of the Doppler broadened resonance line of sodium.

The second method gives a temporal Fourier spectrum of the laser output power; one observes a very large number of peaks in the spectrum, separated by the intermode frequency interval  $\Delta\nu = c/2L$  and its multiples, and distributed over the whole frequency range of the amplifier-spectrum analyzer device (up to 1.2 GHz). As is already known [1,2], such a measurement gives information about the mode competition inside the laser cavity and is very sensitive to the exact position of the active medium DJ inside the cavity, i.e. to the relative dimensions of the laser "subcavities" of lengths  $d_1 + L_1$  and  $d_2 + L_2$ .

Fig. 3 gives spectra recorded for different values of these two lengths and a nearly constant total length  $L \approx 13$  m (so that  $\Delta\nu \approx 11.5$  MHz). Fig. 3 (a) corresponds to an exactly symmetric laser ( $L_1 \approx L_2 = 6.40$  m) and shows a broad spectrum made of more than 90 peaks, in which the odd peaks ( $\Delta\nu = (2n + 1)c/2L$ , with  $n = 0, 1, \dots$ ) strongly predominate over the "even" peaks. Figs. 3 (b) and 3 (c) give details of spectra in the case of asymmetric lasers ( $L_1 = 6.0$  m,  $L_2 = 6.6$  m for fig. 3 (b);  $L_1 = 1.87$  m,  $L_2 = 12$  m for fig. 3 (c)). These two spectra appear to be much less regular. In fig. 3 (b), one observes a distance between the highest peaks which is most frequently equal to  $2\Delta\nu$ , and a modulation of intensities having a period of nearly 225 MHz. Fig. 3 (c) shows a more chaotic spectrum, with peaks distant by  $\Delta\nu = 11.5$  MHz, the highest

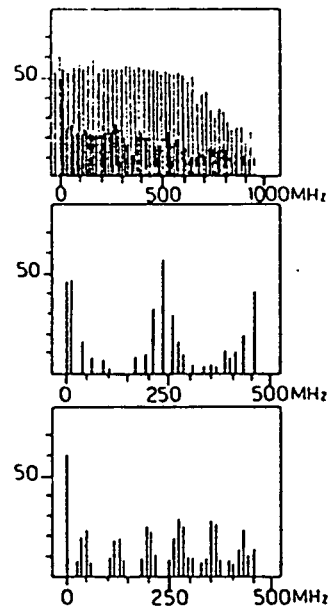


Fig. 3. Fourier spectrum of the laser output power for a laser of total length  $L \approx 13$  m, recorded with a logarithmic intensity scale (in dB). (a) Active medium exactly in the middle of the cavity (the decrease of high frequency peak intensities is due to the amplifier finite bandwidth). (b) Active medium close to the middle of the cavity:  $L_1 = 6$  m,  $L_2 = 6.66$  m; (part of the spectrum). (c) Active medium close to one end mirror:  $L_1 = 1.87$  m,  $L_2 = 12$  m; (part of the spectrum).

peaks appearing with a periodicity of 80 MHz.

Without entering into the details of calculations of mode competition in such lasers, some characteristics of spectra 3 (a), 3 (b), 3 (c) can be understood at least qualitatively in the following way: Let  $E_k = E_0 \sin kz$  and  $E_{k'} = E'_0 \sin k'z$  be the electric field amplitudes of two different longitudinal modes likely to simultaneously exist in the laser cavity, i.e. corresponding to:  $k = n\pi/L$  and  $k' = n'\pi/L$  ( $n, n'$  integers,  $z$  is the abscissa along the cavity, with one end mirror as the origin of coordinates). In a semiclassical theory of the laser emission [3], and using a perturbative development in powers of the field mode intensities, the mode coupling parameter  $\theta_{kk'}$  is proportional to the "recovery" between the two modes inside the active medium, i.e. to the quantity:

$$R_{kk'} = \frac{1}{h} \int_{z_0}^{z_0+h} E_k^2(z) E_{k'}^2(z) dz.$$

$z_0$  being the abscissa of the active medium,  $h$  its thickness. If one assumes  $h \gg \lambda$  and  $(k - k')h \ll 1$ , one obtains the following simple expression for  $R_{kk'}$ :

$$R_{kk'} \approx \frac{1}{4} \left[ 1 + \frac{1}{2} \cos 2z_0(k - k') \right]$$

$$= \frac{1}{4} \left[ 1 + \frac{1}{2} \cos (n - n') 2\pi z_0/L \right].$$

$R_{kk'}$  depends only on the relative position  $z_0/L$  of the jet inside the cavity and on the distance  $(n - n')$  between the considered modes, but not on the jet thickness at this level of approximation. The modes labeled  $n$  and  $n'$  will be able to coexist in the cavity if their coupling factor is minimum, i.e. is less than a given threshold value  $R_0$ . Such a couple of modes will give a beat note at frequency  $(n - n') \Delta\nu$  in the temporal Fourier spectrum. One can then consider that the quantity  $(R_{kk'}^{-1})$  will give an order of magnitude of the height of the peak  $(n - n') \Delta\nu$  in the Fourier spectrum. Fig. 4 gives the values of  $R_{kk'}$  as a function of  $(n - n')$  for the three cases of fig. 3: (a)  $z_0/L = 0.5$ ; (b)  $z_0/L = 0.47$ ; (c)  $z_0/L = 0.16$ . According to the above discussion, the smallest peak in fig. 4 should correspond to the highest ones in fig. 3: we observe that it is generally the case and that the main features of spectra 3 (a),

3 (b), 3 (c) are reproduced by this simple approach. In particular, the modulation of peak intensity at frequency  $c/2L_0$  ( $L_0$ : "short" laser arm length) in the case of a strongly asymmetric laser (fig. 3c), and at frequency  $c/2(L_1 - L_2)$  in the case of a slightly asymmetric laser (fig. 3b) are accounted for. We also reproduce the periodicity  $2\Delta\nu$  appearing in spectra 3 (a) and 3 (b). This discussion simply expresses in a more quantitative way the intuitive and qualitative explanation that two modes can coexist only if their relative phase shift when reflected from one end mirror back to the active medium is equal to  $\pi/2 + n\pi$ , so that the nodes of one mode in the active medium coincide with the antinodes of the other mode.

In a practical way, one can say that, in order to get the most regular power repartition between adjacent modes, the symmetrical configuration looks better, with a tolerance in the arm length difference  $L_1 - L_2$  such that  $c/2(L_1 - L_2)$  is larger than the overall linewidth of the multimode laser.

Let us stress at last that the Fourier spectra of fig. 3 only give information on the probability of occurrence of simultaneous modes distant by  $\Delta k$ , proportional to  $\sum_k E_k^2 E_{k+\Delta k}^2$ , averaged over the analysis time of the spectrum analyzer ( $\approx$  ms), but not on the instantaneous amplitude  $E_k^2$  of the different modes. In particular, we do not know exactly which modes are simultaneously present in the laser and their correlation time. Autocorrelation techniques [4] may provide some insight into such spectral characteristics with a much shorter analysis time.

#### 4. Conclusion

We have shown that it is possible to magnify by a factor 10 the usual length of a dye laser cavity and that such a laser is easy to build and to adjust. Increasing the length by another factor 10 would certainly require different experimental techniques, for example the use of long optical fibers inside the cavity [5].

According to the discussion outlined in the introduction of this paper (see fig. 1), such a laser appears as a "flat" spectrum light source — a "lamp-laser" —, for excitation of levels having a homogeneous linewidth larger than 8.8 MHz if  $L = 17$  m, i.e. having an effective lifetime shorter than 18 ns, which is the case for a large number of atomic resonance lines. This feature

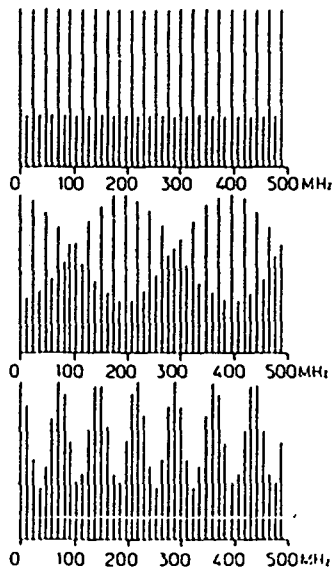


Fig. 4. Mode-coupling geometrical factor  $R_{kk'}$  as a function of frequency, for a laser of total length  $L = 13$  m, in the different cases encountered in fig. 3: (a)  $z_0/L = 0.5$ , (b)  $z_0/L = 0.47$ , (c)  $z_0/L = 0.16$ .

can be useful in numerous cases, for example the optical pumping of inhomogeneously broadened lines, but also in the problem of radiative slowing down of atomic motion [6]: If one shines such a laser beam counterpropagating with a thermal atomic beam, the atoms will be able to absorb photons from the laser in a way independent of their velocity, and hence will be decelerated at any point of the atomic beam. This is not the case if one uses single mode lasers to slow down atoms for which have been developed techniques of frequency sweeping (of the atomic line [7] or of the laser line [8]), in order to maintain the atom-laser resonance condition with a varying Doppler shift. Experiments using such a long laser to modify atomic velocities in a beam are presently in progress in our laboratory.

#### References

- [1] V. Mironenko and V. Yudson, *Optics Comm.* 41 (1982) 126.
- [2] Ch.T. Pike, *Optics Comm.* 10 (1974) 14.
- [3] M. Sargent III, M. Scully and W. Lamb, *Laser physics* (Addison-Wesley, 1974).
- [4] L. Westling, M. Raymer, M. Secats and D. Cooker, *Optics Comm.* 47 (1983) 212.
- [5] M. Nakazawa, M. Tokuda and N. Uchida, *J. Opt. Soc. Am.* 72 (1982) 1338.
- [6] L. Moi, *Optics Comm.* 50 (1984) 281.
- [7] W. Phillips and H. Metcalf, *Phys. Rev. Lett.* 48 (1982) 596.
- [8] J. Prodan and W. Phillips, *Proc. Workshop on Spectroscopic applications of slow atomic beams*, ed. W. Phillips (NBS publication 1983).

## APPENDICE V

MODIFICATIONS OF THE VELOCITY OF ATOMS  
SUBMITTED TO A RESONANT MULTIMODE LASER :  
AN EXPERIMENTAL STUDY.

J. Liang, C. Fabre.

Laboratoire de Spectroscopie Hertzienne de l'Ecole Normale  
Supérieure, associé au CNRS  
24 rue Lhomond 75231 PARIS Cédex 05 France

ABSTRACT :

We present an experiment investigating atom velocity changes induced by a resonant multimode laser having an intermode spacing smaller than the homogeneous linewidth of the atomic transition. In our experimental conditions, one observes a strong perturbation of the velocity distribution, similar to an "explosion" of the whole atomic beam.

## INTRODUCTION

In the past few years, the problem of handling atoms with laser beams has been the center of a great deal of attention, and successive experimental achievements have been recorded concerning the deflection, deceleration, cooling and trapping of neutral atoms<sup>(1)-(6)</sup>. So far most experiments have used a single mode laser and a swept frequency tuning (either on the atomic frequency or on the laser itself), in order to follow the resonance, shifted by a varying Doppler effect during the slowing down process. This implies the use of sophisticated set-ups, including the design of a non uniform solenoid in the first case or of a swept high frequency electro-optic phase modulator in the second one.

Another method has been recently proposed<sup>(7)</sup> to slow down atoms : instead of a single mode laser, it makes use of a very long laser, simultaneously oscillating on a large number of modes, with an intermode spacing smaller than the homogeneous transition linewidth. In that case, there is no need to sweep any frequency because each atom, whatever its velocity, will be always resonant with one of the laser modes. As it appears to be very easy to build and to handle a laser having the required mode characteristics<sup>(8)</sup>, such an approach seems promising and worth studying.

This letter is devoted to the description of a simple experiment, allowing to put in evidence the effect of such a laser on the velocity distribution of an atomic beam. In the first paragraph, the different parts of the experimental set-up are described ; in the second one, we give the obtained experimental data, which are finally discussed in the third paragraph.

## I - EXPERIMENTAL SET-UP

The experimental set-up is sketched on figure 1 ; it consists in an atomic beam interacting with two laser beams : the first one (thereafter qualified as "perturbing beam") modifies the atom velocities, the second one ("probe beam") measures the resulting velocity distribution.

The atomic beam is a well collimated beam of sodium atoms (residual pressure :  $1 \times 10^{-6}$  mB; oven temperature :  $600^\circ$  K; hole diameter : 0.4 mm, collimation angle  $3 \times 10^{-3}$  rad). Its fluorescence can be monitored by a photo-multiplier at points A, B, C, respectively distant of 10, 80 and 110 cm from the oven.

The beam of the perturbing laser has a direction opposite to the sodium atom velocity. It is expanded to a diameter of 5 mm at point C, then focused on the exit hole of the atomic beam oven. The laser itself has been described in details in a previous publication<sup>(8)</sup>, especially as far as its spectral characteristics are concerned. It is a home made,  $\text{Ar}^+$  ion pumped, Rhodamine 6G linear dye laser, working in a symmetrical configuration (active medium close to the center of the laser cavity), with a cavity length of 17 m, i.e. having an intermode spacing of 8.8 MHz. A thin etalon is inserted in the cavity to select a set of modes spanned over a 3 GHz wide interval. An average number of 350 modes can therefore oscillate simultaneously. Due to mode competition, the relative phases and amplitudes of all those modes fluctuate, and it is not possible, by using the standard analysis techniques which yield time averaged measurements (scanned-length optical Fabry-Perot and Fourier analysis of the laser intensity time dependence) to know the time scale of such fluctuations. Of course, it is impossible to decelerate atoms with a multimode laser in which several modes are missing during time intervals comparable to the atom time of flight (1 ns). Our experiment provides therefore a severe test for the short time spectral characteristics of a multimode laser. When pumped by an ion laser power of 3.7 W, the dye laser gives of total power of 100 mW shared by its 350 modes, corresponding to an average power of 0.3 mW per mode. Such a laser power saturates the sodium 3S-3P transition when focused on an area of less than  $5\text{mm}^2$ , which is the case except very close to the entrance window for the laser beam.

In that kind of experiment, it is very important to avoid optical pumping effects likely to remove atoms from the deceleration process, which can be very different because of the very long interaction time between a given atom and the laser light<sup>(9)</sup>. For this reason, the perturbing beam is circularly polarized, in

order to concentrate all the atoms in the  $|3S_{1/2}, F = 2, m_F = 2\rangle \leftrightarrow |3P_{1/2}, F = 3, m_F = 3\rangle$  subsystem. Furthermore, to get rid of any trouble associated with leakage to the other hyperfine sublevels due to small residual  $\pi$  polarization of the perturbing beam, the 3 GHz wide band of the perturbing laser is used to cover the whole spectrum of the  $D_2$  line. Any "lost" atom is thus pumped again by the modes resonant with the other hyperfine transition. Let us finally precise that we had no simple way of stabilizing and precisely sweeping the cavity length, as can be done with a single mode laser. Frequency tuning was performed by rotating the 4-plate Lyot filter and the thin etalon to obtain the maximum beam fluorescence.

The probe beam, coming from a Coherent 589-21 single mode dye laser, pumped by a part of the  $Ar^+$  ion laser, crosses the atomic beam at point C with an angle of  $8^\circ$ , and excites only the atoms having a given Doppler shift. The fluorescence intensity recorded as a function of the probe laser frequency thus gives the distribution of the atomic velocity component along the probe beam axis, provided that no optical pumping effects occur due to the probe beam. This can be easily checked by making sure that the ratio between the two Doppler broadened hyperfine lines is exactly the expected one (5/3) in the absence of the perturbing beam. A part of the probe beam can be sent in a direction orthogonal to the atomic beam axis, to give a zero-velocity marker in the velocity distribution. A scanned Fabry-Perot interferometer is used to monitor the emission spectra of both lasers and their relative positions.

The perturbing beam is chopped at a 100 Hz frequency, allowing us to record fluorescence transients due to the perturbing beam, and also to detect the fluorescence due to the probe beam on atoms unperturbed by the long laser beam. The fluorescence is averaged by a boxcar integrator, having a 50  $\mu s$  wide gate opened 100  $\mu s$  after switching off the perturbing beam.



## II - EXPERIMENTAL RESULTS

As a first test of the effects induced by the multimode perturbing laser, we observed the transient fluorescent signal just after the onset of the perturbing laser, with the probe laser off, in a way analogous to ref<sup>(10)</sup>. The observed signals are displayed on figure 2. Upper and lower traces correspond to fluorescent light observed at points B and C respectively. When the perturbing beam is switched on (time  $t_1$ ), one observes a fluorescent signal rising in a very short time, up to a maximum value  $I_M$ , decreasing afterwards and reaching a non-zero steady state value  $I_S$  before the switching off time  $t_2$ .

- Fig. 2a) corresponds to a non optimum setting of the perturbing beam (mean laser frequency slightly detuned, laser beam not perfectly aligned on the oven hole). In that case, the ratio  $I_M/I_S$  is about 2, with a decay time constant of 0,2 ms. The fluorescent light variation is the same at points B and C.

- Fig. 2b) corresponds to a precise and critical tuning of the thin etalon and of the laser beam position. In that case,  $I_M/I_S$  is different at points B and C and reaches a value around 4 for the maximum interaction length (at point C). Notice also that the decay time constant is larger ( $\sim 1$  ms) than in fig. 2a). The steady state value  $I_S$  appears also to be affected by strong fluctuations from pulse to pulse.

From these observations, we can infer that the perturbing laser induces two different effects on the atoms:

(i) - optical pumping effects, redistributing the population between the hyperfine sublevels and trapping a portion of the atoms in sublevels from which they cannot be reexcited. This takes place in a time scale of about 0.2 ms ( $\sim 20$  cm of interaction length) and thus necessitates only a rough alignment between the laser beam and the atomic beam. It corresponds to the case of fig. 2a).

(ii) - A further reduction of the fluorescent atoms\* maximum interaction length and reaching a steady state value within a time (1 ms) corresponding to the atom time of flight from the oven to point C (case of fig. 2b)). Such an effect can be attributed to the radiative forces deflecting the atomic trajectories.

To get more detailed informations, we have then recorded the velocity distribution curves using the fluorescence induced by the probe laser.

Fig. 3) Give two examples of velocity distributions observed at point C in the experimental conditions where fluorescence transients of the kind of Fig. 2b) are recorded. The upper parts of Fig. 3a) and 3b) are just check-up signals recorded with the perturbing laser blocked, displaying the well-known  $D_2$  line fluorescence spectrum, with the ratio 5/3 between the two hyperfine lines. The two dotted lines indicate the position of zero velocity atom fluorescence, given by the auxiliary perpendicular probe laser beam. Lower parts of Fig. 3b) and 3c) give two examples of velocity distributions recordings when the perturbing beam interacts with the atoms. They have the following characteristics :

- The exact shape of the velocity distribution varies from one recording to the following one

- The relative heights of the 2 hyperfine lines are modified. In most cases, the  $F = 1$  line is strongly reduced like in Fig. 3b). This is another evidence for optical pumping effects.

- By far the most important effect observed, which only occurs when all the parameters are precisely optimized is a strong decrease of the velocity distribution area, showing that the total number of sodium atoms interacting with the probe beam has been largely reduced in the process (up to 90 %). The reducing factor undergoes significant fluctuations from one recording to the following. Furthermore, the velocity distribution lineshape is strongly affected by the perturbing laser : bumps, or even oscillations can be observed. There is no noticeable shift of the curve maximum to the low velocities side. We have finally checked that no comparable effects of atomic density reduction occurs with a perturbing laser having a short cavity.

The conclusion of all these observations is that, in our experimental conditions, the perturbing laser modifies atomic trajectories in such a way that almost all sodium atoms escape out of the region of observation.

### III - INTERPRETATION OF RESULTS

Let us now explain why the main observed effect is a kind of "explosion" of the atomic beam, rather than a reduction of the most probable atomic velocity.

Let us first assume that the perturbing laser spectrum consists in a set of  $N$  modes simultaneously existing and having a constant intensity, and that sodium atoms are mere two-level systems. In this oversimplified model, all the sodium atoms, independently of their velocity, are quasi-resonant with a laser mode, since the intermode splitting (8.8 MHz) is less than the full width at half maximum of the atomic absorption line. The laser induces therefore on the atoms an almost constant decelerating force which is, contrarily to most other similar experiments, independent on the position and velocity of the atoms (provided they remain inside the perturbing laser beam). All the atoms undergo a uniformly decelerated motion along the direction of the laser beam, whereas their transverse velocity is not affected. If the laser spectrum is broad enough -which is the case, in our experimental conditions- the perturbing laser is even able to force the atoms to go back in the direction of the oven. Because of the spreading of initial longitudinal velocities, the turning points of different trajectories are located at different points along the beam axis. Furthermore, atoms having a small longitudinal velocity have more time to escape in transverse directions, under the influence of different factors :

- The effect of the remaining transverse velocity, because there is not an exact matching between the directions of the waves vectors of the perturbing Gaussian beam and of the atomic velocities.

- The effect of collisions with residual gas in the vacuum box, which are more efficient for transverse scattering on very slow atoms than on fast atoms.

- The effect of velocity scattering due to spontaneous emission, which induces, by itself, a position scattering<sup>(2)</sup> of several mm after a 1 m long interaction length.

- The effect of multiple scattering<sup>(11)</sup> : one atom in the beam absorbs a spontaneous photon emitted by another and is therefore expelled, on the average, from the center of the beam ; such an effect is non negligible in our configuration where all the

atoms are pumped by the laser, at least in the first centimeters of the beam.

As a result, the net effect of the interaction with the perturbing laser is to produce slow atoms escaping from the atomic beam at any point along its axis : slow atoms are not concentrated in a small region of space, and therefore their local density is small. This is not the case in swept frequency techniques, which concentrate atoms in a small portion of phase space, but occurs also in experiments using power broadened lines, which observe the same lack of low velocity atoms<sup>(2)</sup>.

Experimental observations give results in qualitative agreement with such a model. This is an evidence that our simple modelling for the laser modes is not very far from the actual situation. The strong observed effect implies that the different laser modes in the long laser, although fluctuating in intensity and phase, can be considered as constant when averaged over time intervals characteristic of the slowing down process (i.e. close to the lifetime of the excited state). This provides an important argument for using long cavity lasers as "lamp-lasers"<sup>(8)</sup>.

For a sodium atom of initial velocity 660m/s, the minimum stopping distance is of the order of 25 cm. In our experiment almost all the interaction length is needed to observe an important effect, as can be seen by comparing fluorescence transients at points B and C : the experimental average stopping length is therefore of the order of 1 m, which means that the modes fluctuations decrease the deceleration efficiency by less than a factor 4. This can be bettered by using a mode locked long cavity laser, in which such fluctuations no longer exist.

#### CONCLUSION

Our simple experiment has shown that it is possible to strongly modify the velocity distribution of thermal atoms simply by shining on them a laser having an extended cavity. This provides a good test of the correlation properties of the different modes existing in a multimode laser in the short time scale.

So far, the main observed effect is an "explosion" of the atomic beam under the influence of the long laser, not an increased flow of slow atoms. This is due to the fact that we use a broad-band deceleration process, which cannot concentrate the slow atoms in a small region of space, and also that our laser has the drawbacks of its simplicity : the mean frequency is not stabilized and its broad spectrum induces a large fraction of atoms to stop, and even to go back, before the observation region. Defocusing processes are then very efficient on such slow atoms.

By a better tailoring of the mode structure of the long laser -for example removing the modes resonant with near-zero velocity sodium atoms, as suggested in ref.<sup>(7)</sup>- and by adding a refocusing process, with the help of hexapole magnets or conical mirrors to obtain a beam of converging light, one should be able to obtain intense beams of slow atoms.

#### ACKNOWLEDGEMENTS

The authors thank J. Andrä, J. Dalibard, L. Moi and Lei Tiren for their helpful suggestions and assistance.

REFERENCES

- (1) See for example : "Proceedings of the workshop on spectroscopic applications of slow atoms" Gaithersburg 1983, W. Philipps editor, NBS Special publication n° 653 (US GPO, Washington DC 1983)
- (2) V. Balykin, V. Letokhov, A. Sidorov, Sov. Phys JETP 59, 1174 (1984) and ref in
- (3) J. Prodan, A. Migdall, W. Phillips, I. So, H. Metcalf, J. Dalibard Phys Rev Lett. 54, 992 (85)
- (4) W. Ertmer, R. Blatt, J. Hall, M. Zhu, Phys Rev Lett. 54, 996 (85)
- (5) A. Migdall, J. Prodan, W. Phillips, T. Bergeman, H. Metcalf Phys Rev Lett. 54, 2596 (85)
- (6) S. Chu, L. Hollberg, J. Bjorkholm, A. Cable, A. Ashkin Phys Rev Lett. 55, 48 (85)
- (7) L. Moi Opt Com. 50, 349 (1984)
- (8) J. Liang , L. Moi, C. Fabre Opt Com. 52, 131 (1984)
- (9) V. Balykin Opt Com. 33, 31 (1980)
- (10) S. Andreev, V. Balykin, V. Letokhov, V. Minogin Sov Phys JETP 55, 828 (1982)
- (11) J. Andrä, private communication (1984)

## FIGURE CAPTIONS

Fig. 1 : Experimental set-up

Fig. 2 : Fluorescence transients recorded by photomultipliers located at points B (lower trace of each oscillogram) and C (upper trace), as a function of time. The opening time of the perturbing laser is 10 ms, recorded for different laser tunings.

Fig. 3 : Probe laser induced fluorescence recorded at point C as a function of probe laser frequency. Upper curves for figures 3a) and 3b) are recorded with the long laser off. The dotted lines indicates the fluorescence from zero velocity atoms for each hyperfine line. Fig. 3a) and 3b) correspond to different adjustments of the long laser.

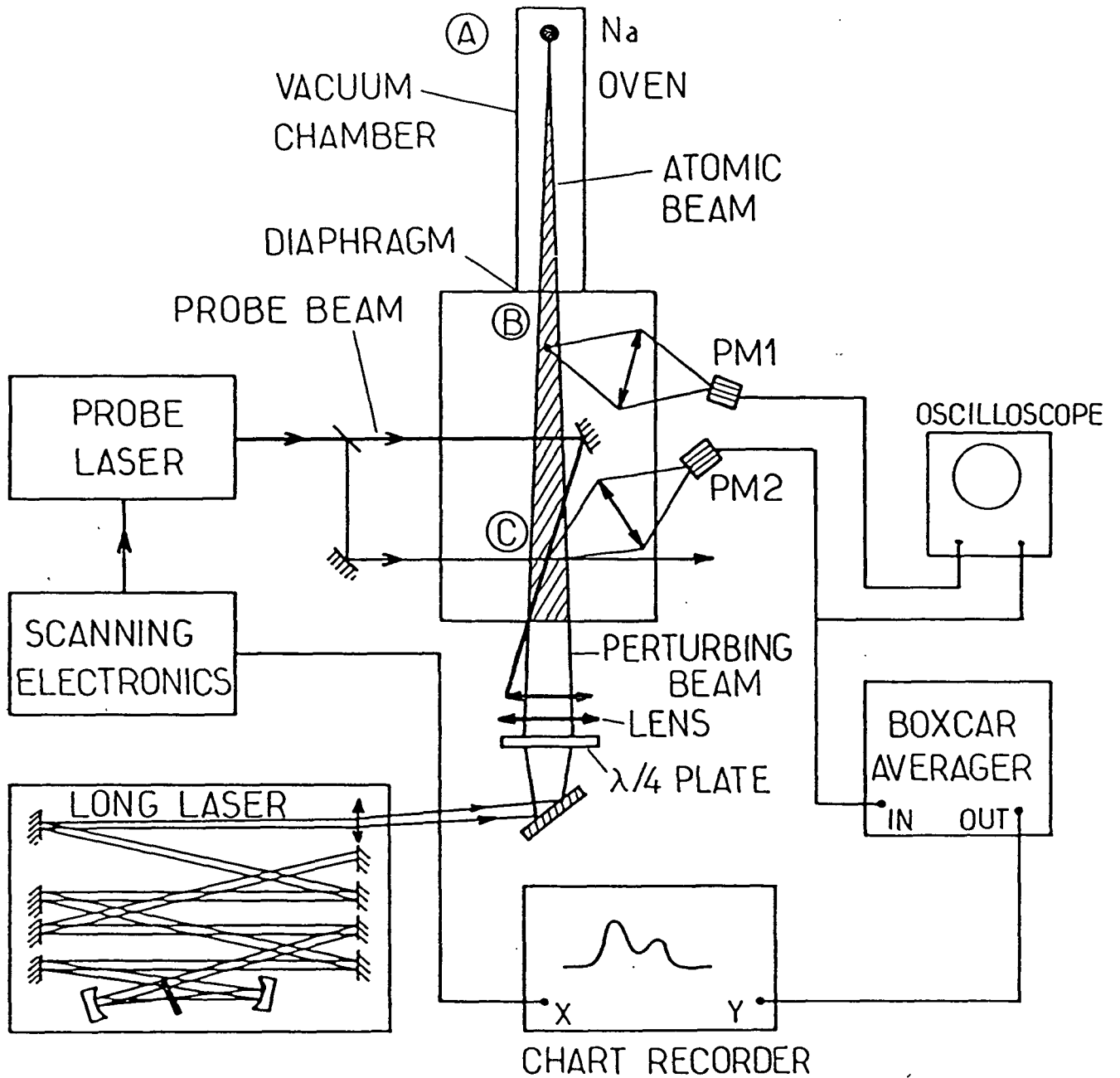


Fig. 1

J. Liang et C. Fabre



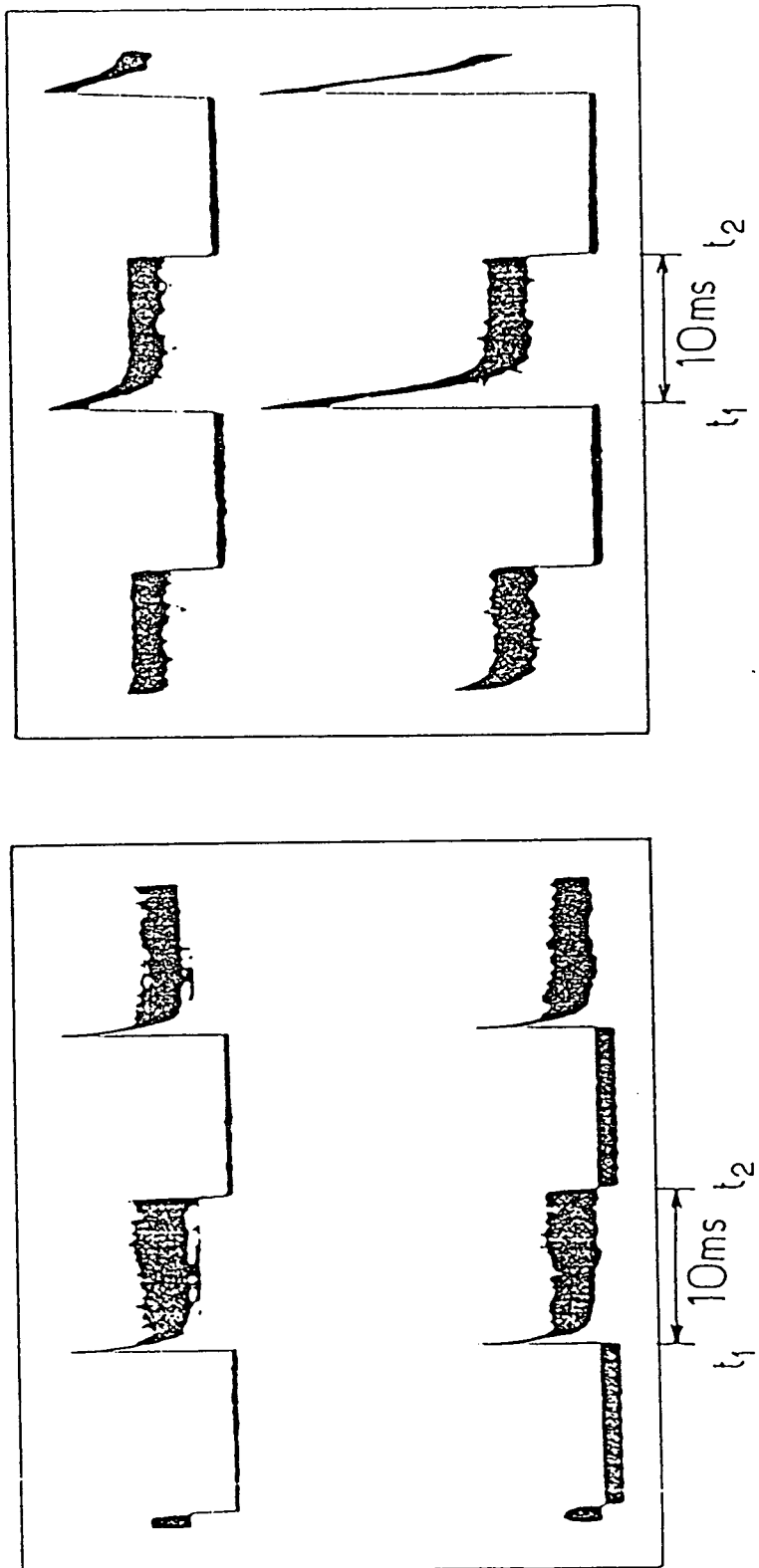


Fig. 2

J. Liang et C. Fabre

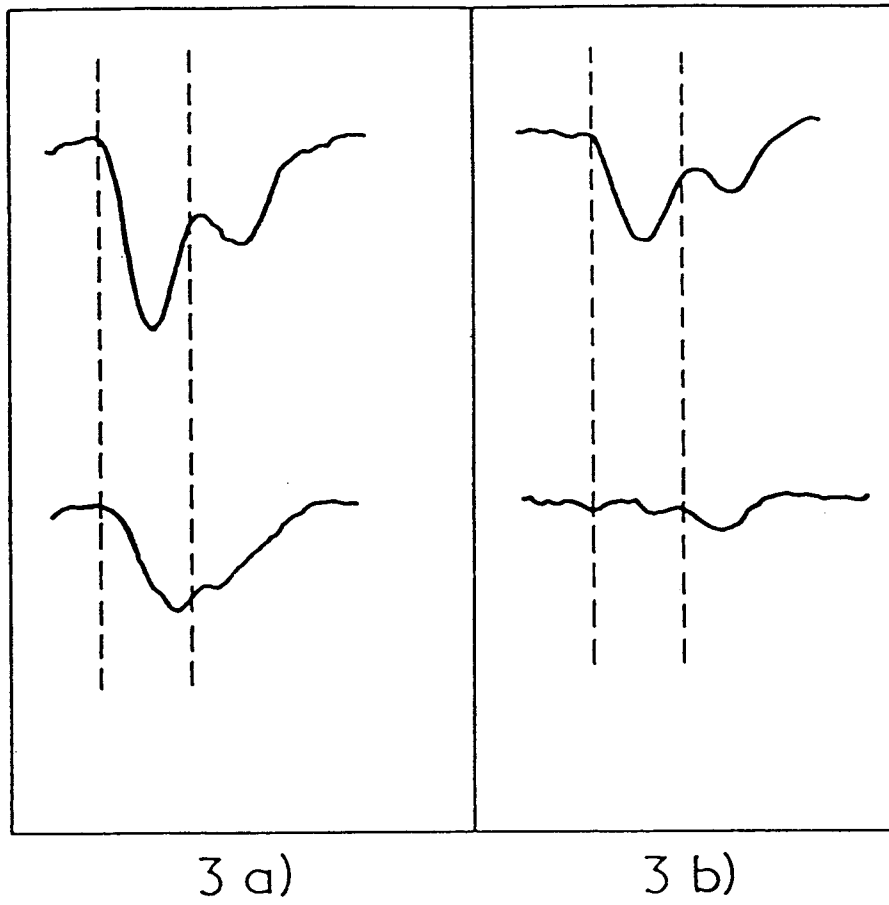


Fig. 3

J. Liang et C. Fabre

## REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- [1] C. FABRE, Thèse d'Etat, Paris VI (1980), ou Ann. Phys. Fr. 7 (1982)
- [2] F. PENENT, Thèse de 3ème cycle, Paris VI (1984)
- [3] C. CHARDONNET, Thèse de 3ème cycle, Paris VI (1983)
- [4] C. COHEN-TANNOUJDI, Mécanique Quantique
- [5] M. ABRAMOVITZ, I. STEGUN, "Handbook of Mathematical Functions", NBS (1964)
- [6] J. R. RYDBERG, Z. Phys. Chem. (Leipzig), 5, 227 (1890)
- [7] R. R. FREEMAN and D. KLEPPNER, Phys. Rev. A 14, 1614 (1976)
- [8] J. E. MAYER and M. G. MAYER, Phys. Rev. 43, 605 (1933)
- [9] W. GORDON, Ann. der Physik, 2, 1031 (1929)
- [10] A. MESSIAH, Mécanique Quantique
- [11] L. I. SCHIFF, Quantum Mechanics
- [12] H. A. BETHE and E. E. SALPETER, Quantum Mechanics of one and two electron atoms
- [13] L. LANDAU, Mécanique Quantique
- [14] C. COHEN-TANNOUJDI, Ann. Phys., 7, 423 et 469 (1962)
- [15] M. AYMAR, E. LUC-KOENIG et F. COMBET-FARNOUX, J. Phys. B, 9, n°8, 1279 (1976)
- [16] P. S. EPSTEIN, Phys. Rev. 28, 695 (1926)
- [17] R. J. DAMBURG and V. V. KOLOSOV, J. Phys. B, 12, n°16, 2637 (1979)
- [18] J. C. GAY, "Atoms in unusual situation", (1985)
- [19] M. L. ZIMMERMAN, M. M. KASH and D. KLEPPNER, Phys. Rev. Lett. 45, 1092 (1980)
- [20] D. DELANDE et J. C. GAY, communication privée
- [21] R. G. HULET and D. KLEPPNER, Phys. Rev. Lett. 51, 1430 (1983)
- [22] P. M. KOCH and D. R. MARIANI, J. Phys. B, 13, L-645 (1980)
- [23] J. R. RUBBMARK, M. M. KASH, M. G. LITTMAN and D. KLEPPNER, Phys. Rev. A, 23, 3107 (1981)
- [24] R. G. HULET, E. S. HILFER and D. KLEPPNER, Phys. Rev. Lett. 55, 2137 (1985)
- [25] J. LIANG, M. GROSS, P. GOY and S. HAROCHE, à paraître

- [26] C. FABRE, Y. KALUZNY, R. CALABRESE, LIANG JUN, P. GOY and S. HAROCHE, J. Phys. B, 17, 3217 (1984)
- [27] M. ZIMMERMAN, M. LITTMAN, M. KASH and D. KLEPPNER, Phys. Rev. A, 20, 2251 (1979)
- [28] P. AVAN, C. COHEN-TANNOUJDI, J. DUPONT-ROC et C. FABRE, J. Physique, 37, 993 (1976)
- [29] M. ENGLEFELD, Group Theory and the Coulomb Problem (New York, Wiley) (1972)
- [30] A. EDMONGS, Angular Momentum in Quantum Mechanics (Princeton, Princeton University Press) (1957)
- [31] S. FENEUILLE, S. LIBERMAN, J. PINARD et P. JACQUINOT, C. R. Acad. Sci. Paris B, 284, 291 (1977)
- [32] C. FABRE, P. GOY and S. HAROCHE, J. Phys. B, 10, L-183 (1977)
- [33] P. GOY, C. FABRE, M. GROSS and S. HAROCHE, J. Phys. B, L-83 (1980)
- [34] C. ZENER, Proc. Roy. Soc. London, ser. A 137, 696 (1932)
- [35] N. F. RAMSEY, Phys. Rev. 78, 695 (1950)
- [36] Takashi YOSHIZAWA and Michio MATSUZAWA, J. Phys. B, 17, L-485 (1984)
- [37] E. de PRUNELE, Phys. Rev. A, 31, 3593 (1985)
- [38] C. FABRE, P. GOY and S. HAROCHE, J. Phys. B, 10, L-183 (1977)
- [39] P. VALIRON, R. GAYET, R. MCCARROLL, F. MASNOU-SEEUWS and M. PHILIPPE, J. Phys. B, 12, 53 (1979)
- [40] A. LEZAMA, Thèse de 3ème cycle, Paris VI (1981)
- [41] P. CEREZ, communication privée (1984)
- [42] A. MOORADIAN, Lasers Physics, Systems and Techniques, SUSSP (1982)
- [43] T. DUCAS, M. LITTMAN, R. FREEMAN, D. KLEPPNER, Phys. Rev. Lett. 35, 366 (1975)
- [44] T. W. HANSCH, Appl. Optics, 11, 895 (1972)
- [45] M. LEVENSON and M. SALOUR, Phys. Lett. 48A, 331 (1974)
- [46] C. FABRE, M. GROSS, J. M. RAIMOND, S. HAROCHE, J. Phys. B16, L-671 (1983)
- [47] J. D. JACKSON, Classical Electrodynamics
- [48] N. BOHR, Phil. Mag. 26, I, 476, 857 (1913)
- [49] J. H. JEUS, G. W. FOLTZ, K. A. SMITH, E. J. BEITING, F. G. KELLERT, F. B. DUNNING and R. F. STEBBINGS, Phys. Rev. Lett. 44, 390 (1980)

