N° d'ordre

THÈSE

PRÉSENTÉE À L'UNIVERSITÉ DE PARIS-SUD

CENTRE D'ORSAY

PAR

Luc BARBIER

LABORATOIRE AIMÉ COTTON
C. N. R. S.

POUR OBTENIR

le titre de DOCTEUR de troisième cycle

SPECIALITE

Physique Atomique et Moléculaire - Optique quantique

Etude des niveaux de Rydberg de la série $4f^{14}6s$ nd de l'ytterbium. Mesure des champs critiques d'ionisation. Analyse expérimentale et théorique des structures hyperfines.

Soutenue le Septembre 1979 devant la Commission d'Examen

M.	S. FENEUILLE	Président
M.	B. CAGNAC	Rapporteur
MM.	J. BAUCHE R-J. CHAMPEAU C. MANUS	Examinateurs

N° d'ordre

THÈSE

PRÉSENTÉE À L'UNIVERSITÉ DE PARIS-SUD

CENTRE D'ORSAY

PAR

Luc BARBIER

LABORATOIRE AIMÉ COTTON
C. N. R. S.

POUR OBTENIR

le titre de DOCTEUR de troisième cycle

SPECIALITE

Physique Atomique et Moléculaire - Optique quantique

Etude des niveaux de Rydberg de la série $4f^{14}6s\ nd$ de l'ytterbium. Mesure des champs critiques d'ionisation. Analyse expérimentale et théorique des structures hyperfines.

Soutenue le Septembre 1979 devant la Commission d'Examen

M.	S. FENEUILLE	Président
M.	B. CAGNAC	Rapporteur
MM.	J. BAUCHE R-J. CHAMPEAU C. MANUS	Examinateurs

Je tiens à remercier, en tout premier lieu, MM. les Professeurs S. FENEUILLE et P. JACQUINOT qui m'ont accueilli dans leur laboratoire et m'ont permis ainsi de faire mes premiers pas dans la recherche.

René-Jean CHAMPEAU, par un soutien sûr et quotidien, a su me guider tout au long de mon travail ; je l'en remercie vivement.

Je voudrais exprimer aussi toute ma reconnaissance à Jacques BAUCHE ; son enseignement, puis ses précieux conseils lors de la réalisation de la partie théorique de ce travail, m'ont été d'une aide essentielle.

Je ne peux oublier tous ceux qui m'ont soutenu par leurs conseils avisés ou leurs compétences techniques : je citerai plus particulièrement Sylvain LIBERMAN et Jacques PINARD, Abdelouahab TALEB, Louis CABARET, Jocelyne SINZELLE, ainsi que tous les membres du service d'électronique du laboratoire.

Il me faut citer aussi Mme FONTAINE qui a transformé le manuscrit en ces pages belles et claires, MM. B. DEMARETS et M. REY qui se sont chargés de leurs illustrations.

Tous les membres du Laboratoire Aimé Cotton m'ont offert leurs compétences et leur savoir, qu'ils en soient tous ici remerciés.

TABLE des MATIERES

INTRODUCTION 2

Chapitre I : METHODES EXPERIMENTALES 6

I-A PROCESSUS EXPERIMENTAL 7

I-A-1 Principe de la méthode d'excitation de l'ytterbium dans les états de Rydberg 7

I-A-2 Principe de la détection par ionisation à l'aide d'un champ électrique 9

I-B LE JET ATOMIQUE 10

I-B-1 Description générale de l'enceinte 10

I-B-2 Réalisation du jet d'atomes métastables 11

a) Principe de l'excitation 11

b) Description du four et du dispositif de décharge 12

I-B-3 Difficultés liées à l'utilisation d'une décharge 13

I-C L'EXCITATION OPTIQUE 15

I-C-1 Qualités exigées des lasers 15

I-C-2 Description du premier laser (mesure des champs critiques) 17

I-C-3 Description du laser monomode pulsé 18

I-C-4 Doublage en fréquence 20

I-C-5 Etalonnage en nombre d'ondes des spectres 21

I-D DETECTION et COMPTAGE des IONS 22
I-D-1 Principe et montage 22
I-D-2 Le détecteur 23
I-D-3 Comptage des ions. Traitement du signal 24
a) Principe physique 24
b) Montage général 26

Chapitre II : MESURES des CHAMPS CRITIQUES d'IONISATION - RESULTATS 28

II-A PROCESSUS EXPERIMENTAL 28
II-A-1 Mesure des champs critiques d'ionisation .. 28
II-A-2 Détermination des nombres quantiques effectifs (n*) 31

II-B RESULTATS EXPERIMENTAUX et INTERPRETATION 33
II-B-1 Résultats 33
II-B-2 Interprétation et commentaires 34

Chapitre III : ETUDE EXPERIMENTALE et THEORIQUE des ETATS de RYDBERG 6snd $^3D_1$ de l'YTTERBIUM 36

III-A RESULTATS EXPERIMENTAUX 38
III-A-1 Enregistrement des structures 39
III-A-2 Mesure des écarts d'énergie entre composantes. Résultats expérimentaux 40
III-A-3 Incertitude sur la mesure des écarts entre composantes 42
III-A-4 Mesure des intensités relatives des composantes. Incertitudes 44

III-B IDENTIFICATION des COMPOSANTES. ETUDE THEORIQUE des STRUCTURES 46
III-B-1 Interprétation qualitative des structures.. 46

III-B-2 Déplacement isotopique des isotopes pairs.. 49
III-B-3 Principaux termes de l'Hamiltonien 52
III-B-4 a) Comparaison des différents éléments d'interaction 54
b) Couplage des différents moments cinétiques 55
III-B-5 Calcul théorique des structures 56
a) Principe du calcul 56
b) Calcul des éléments de matrice 57
c) Calcul de l'expression littérale des intensités 59
III-B-6 Les différentes étapes du calcul numérique 61
a) Les programmes de calcul 61
b) Le calcul des paramètres 63
III-C RESULTATS 64
III-C-1 Valeurs des paramètres 64
III-C-2 Autres résultats 65
III-C-3 Perturbation du niveau n=26 67
III-C-4 Commentaires sur les résultats 68

CONCLUSION de la PARTIE THEORIQUE 70

CONCLUSION 71

REFERENCES 73

APPENDICE I I

APPENDICE II VIII

INTRODUCTION

Les propriétés générales des états de Rydberg, communes à tous les éléments atomiques, sont connues depuis très longtemps ; par contre, l'étude des propriétés fines de ces états très excités a soulevé de nombreux problèmes expérimentaux et n'a pu être entreprise que depuis une dizaine d'années [1]. Il faut en effet disposer de méthodes d'excitation puissantes et sélectives (la probabilité de transition entre un état de basse énergie et un état de Rydberg est très faible), de méthodes de détection efficaces, et conserver l'atome dans son état excité suffisamment longtemps malgré sa fragilité. Enfin ces expériences exigent souvent une très haute résolution spectrale.

Ce n'est qu'avec le développement des lasers à colorant accordables et la mise au point de nouvelles techniques de détection comme la méthode d'amplification par phénomène de charge d'espace (en phase vapeur) ou la méthode d'ionisation par un champ électrique statique (sur jet atomique) que toutes ces conditions expérimentales, extrêmement sévères ont pu être remplies.

Ces méthodes ont permis de recueillir des données très abondantes : mesure de précision de structures fines et hyperfines atteignant des niveaux de n élevés, mesures de durées de vie, études de procédés de collisions, etc.. effectuées sur des éléments très variés : alcalins, alcalino-terreux, gaz rares, lanthanides, etc. En même temps s'est posé le problème du mécanisme physique du processus d'ionisation par champ électrique. Les premières études portent sur la mesure de la valeur minimale du champ nécessaire pour produire l'ionisation (champ critique d'ionisation), qui dépend de la valeur du nombre quantique principal (n)

[7][8][10][12], puis sur la façon dont se produit cette ionisation, en particulier en comparaison avec le cas théorique simple de l'hydrogène [13]. Par extension s'est posé le problème d'un atome très excité, soumis à l'influence d'un champ électrique (effet Stark des niveaux de Rydberg), et celui de la "structure" du "continuum" pour un atome placé dans un champ d'intensité supérieure au champ critique d'ionisation. Ces expériences ont été étudiées expérimentalement sur les atomes alcalins, sodium [12][13] et rubidium [7][14].

Parallèlement, la théorie du défaut quantique a été appliquée avec succès à l'interprétation des données spectroscopiques recueillies sur les atomes alcalins, et la théorie du défaut quantique à plusieurs voies a permis de rendre compte des mesures d'énergie effectuées dans plusieurs séries de Rydberg, en général perturbées, de divers éléments comme le baryum [2][3][4] ou l'ytterbium [5][6].

Les expériences effectuées dans le cadre de ce travail, étude du phénomène d'ionisation par un champ électrique et étude à très haute résolution de la structure des niveaux de Rydberg de l'ytterbium, constituent un prolongement de certains aspects des recherches actuelles dans le domaine des niveaux très excités des atomes.

En ce qui concerne les champs critiques d'ionisation, il s'agissait d'étendre à des atomes à plusieurs électrons optiques le type de mesures déjà effectuées sur les atomes alcalins. Les études effectuées à moyenne résolution sur les séries du baryum et de l'ytterbium devaient être poursuivies par des études à très haute résolution sur ces mêmes éléments.

L'intérêt d'étudier ce type d'atomes résulte du fait que les propriétés fines des états de Rydberg proviennent de la manière dont l'électron externe interagit avec le coeur de l'atome. Dans le cas des alcalins ce coeur est constitué de couches électroniques fermées, tandis que dans les atomes à plusieurs électrons optiques les propriétés simples communes aux alcalins sont altérées par le présence d'un ou de plusieurs électrons internes situés sur des couches ouvertes. Un autre intérêt

de ces atomes provient de la possibilité d'observer des perturbations d'une série de Rydberg par un état de valence.

Les atomes à plusieurs électrons les plus simples sont les alcalino-terreux (2 électrons périphériques). L'élément choisi pour notre étude, l'ytterbium ($Z = 70$), est une terre rare, mais il présente le caractère simple d'un alcalino-terreux, dans tout un système de niveaux appartenant à la configuration fondamentale $4f^{14}6s^2$ et aux configurations excitées du type $4f^{14}\ n\ell\ n'\ell'$, et le caractère d'une terre rare par les configurations où un éléctron de la couche 4f est excité (par exemple du type $4f^{13}5d6s6p$). Cet élément semble donc favorable à l'étude de l'influence de l'électron interne (ici 6s) sur les états de Rydberg et son caractère de terre rare laisse espérer de nombreuses perturbations.

Mais le choix de l'ytterbium a été aussi guidé par des considérations pratiques telles que l'existence de niveaux métastables relais et le domaine de longueurs d'onde bien adapté à l'excitation par laser. De plus, la composition isotopique du mélange naturel, qui comporte deux isotopes de nombres de masse impairs abondants permet d'étudier la structure hyperfine sans avoir à utiliser des mélanges enrichis.

La première expérience réalisée porte sur la mesure des champs critiques d'ionisation ; pour les différents niveaux d'une série de Rydberg, un des objectifs fixé consiste à étudier ce phénomène pour des niveaux perturbés, agin de mieux comprendre le mécanisme physique de ce processus déjà bien étudié dans le cas des alcalins.

Une deuxième partie porte sur l'étude expérimentale et l'interprétation théorique de la structure des niveaux d'une série de Rydberg. En réalisant cette étude à haute résolution on a la possibilité d'observer l'évolution de la structure hyperfine.

Le choix des méthodes et la réalisation de ces expériences sont exposés dans le premier chapitre. Les résultats obtenus sur la mesure

des champs critiques sont donnés dans le chapitre deux. Enfin le chapitre trois rassemble les résultats expérimentaux sur la structure des états de Rydberg et leur interprétation théorique.

CHAPITRE I

Chapitre 1

METHODES EXPERIMENTALES

Après une brève description de l'ytterbium, on présente dans ce chapitre le processus expérimental choisi pour l'étude des états de Rydberg de cet élément. La première partie porte sur le choix de la méthode d'excitation et expose le principe général de la detection (I-A). La seconde partie (I-B) décrit le montage réalisé ainsi que les problèmes rencontrés au cours de l'expérience et les solutions adoptées. Les deux lasers utilisés successivement, le premier pour l'expérience de mesure des champs critiques d'ionisation, le second pour les enregistrements de la structure des états de Rydberg, sont décrits au chapitre (I-C). Enfin, le chapitre (I-D) est consacré à la partie détection du montage expérimental.

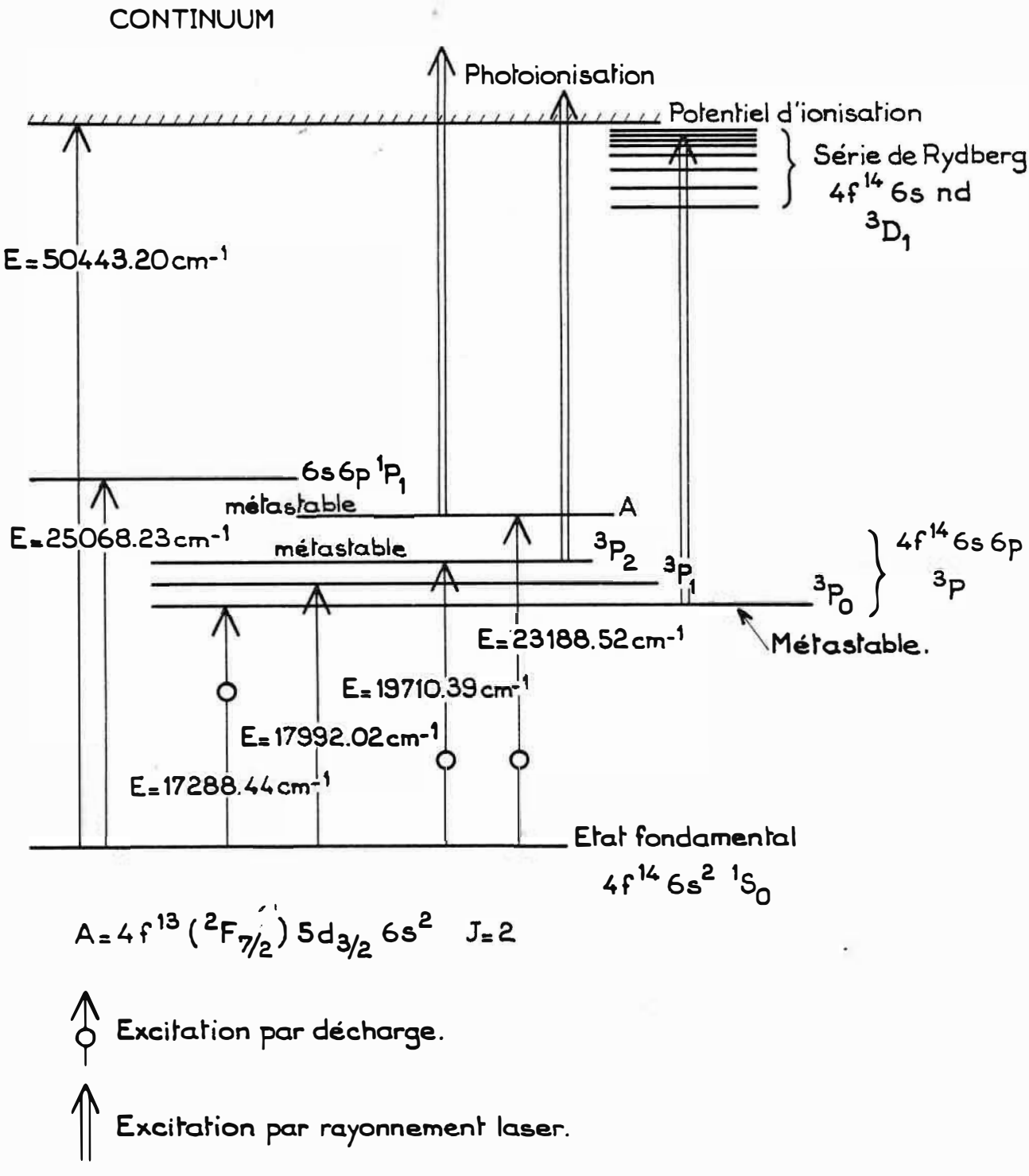


Figure 1

Schéma général des niveaux de l'ytterbium.

I-A PROCESSUS EXPERIMENTAL

I-A-1 PRINÇIPE DE LA METHODE D'EXCITATION DE L'YTTERBIUM DANS LES ETATS DE RYDBERG.

L'ytterbium est l'élément de numéro atomique Z=70 . L'ytterbium naturel est constitué de plusieurs isotopes stables de nombre de masse (A) : A = 168, 170, 171, 172, 173, 174, 176. L'abondance de chacun de ces isotopes est donnée en pourcentage dans le tableau ci-dessous [16].

nombre de masse	168	170	171	172	173	174	176
abondance %	0,14	3,03	14,31	21,82	16,13	31,84	12,73

Les spins nucléaires des deux isotopes impairs sont respectivement 1/2 et 5/2 pour ^{171}Yb et ^{173}Yb . Leurs moments nucléaires valent respectivement +0,49 et -0,68 .

Un schéma général des niveaux de Yb utilisés dans les expériences effectuées est donné à la Figure 1. L'état fondamental correspond à la configuration $4f^{14}6s^2\ {}^1S_0$. Deux états métastables sont situés respectivement à 17288,44 cm^{-1} et 19710,39 cm^{-1}, tous deux appartiennent à la configuration 6s6p et en sont les termes $^3P_2$ et $^3P_0$. Un autre état métastable est situé à une énergie de 23188,52 cm^{-1} et appartient à la configuration $4f^{13}5d6s^2$.

Les atomes sont portés sur les états de Rydberg par l'excitation d'un faisceau laser éclairant à angle droit un jet atomique. Comme le montre la Figure 2, la détection se fait perpendiculairement au plan défini par le faisceau lumineux et le jet.

Pour exciter les atomes d'ytterbium dans les états de Rydberg proches du potentiel d'ionisation, il est nécessaire de procéder en

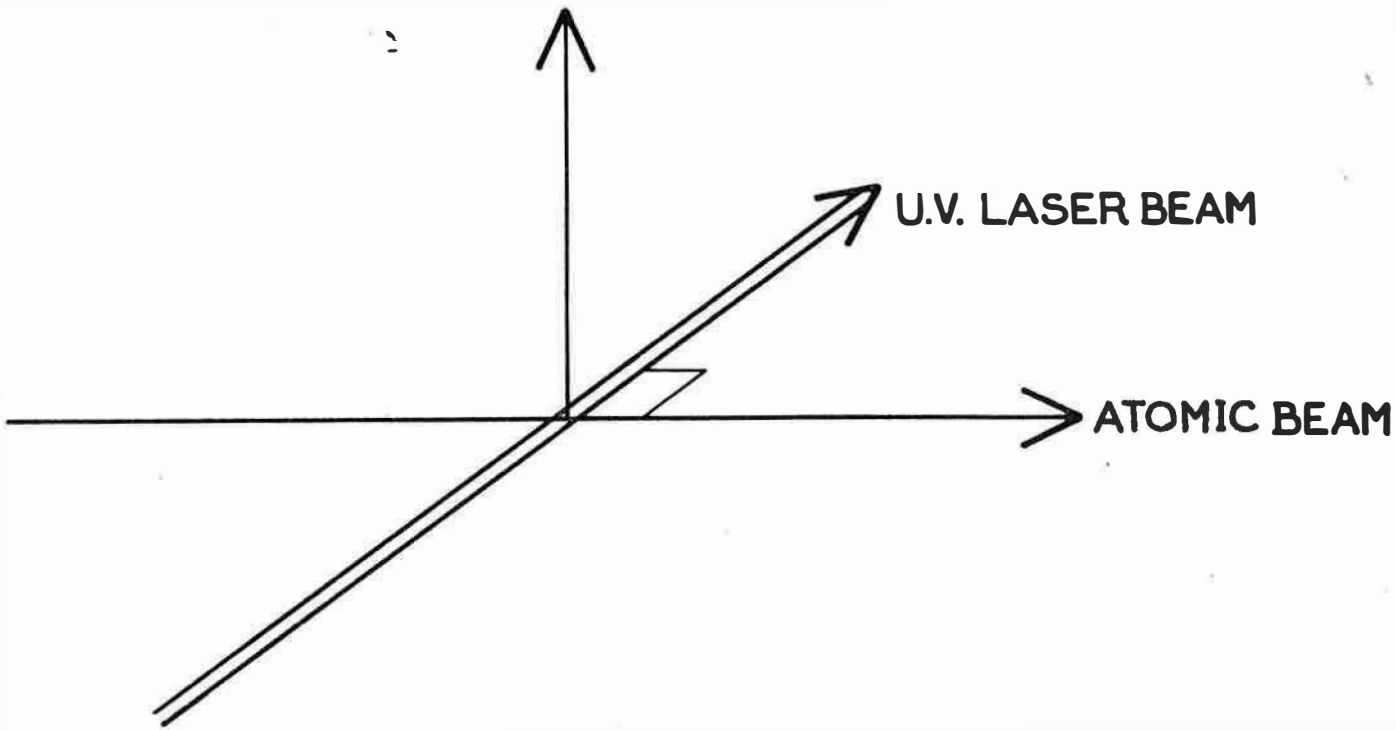


Figure 2

Disposition spatiale du faisceau laser et du jet atomique (la détection des ions se fait perpendiculairement au plan défini par le faisceau laser et le jet atomique).

plusieurs étapes. En effet, la longueur d'onde d'excitation à un photon à partir du fondamental vers un état proche du potentiel d'ionisation (σ_I = 50443,20 cm^{-1}) est dans l'ultraviolet lointain (λ_I = 198 nm) et ne peut donc être atteinte par un rayonnement laser. Le choix de la méthode de détection (cf. Chapitre I-A-2, ionisation par un champ électrique) et l'étude à haute résolution de la structure hyperfine qui exige de s'affranchir de l'effet Doppler, imposent l'utilisation d'un jet atomique. Sur un jet atomique les processus multiphotoniques sont inapplicables, les probabilités de transition étant trop faibles pour obtenir un signal détectable. Il faudra donc procéder à une excitation en échelon.

Deux processus expérimentaux sont possibles : la première méthode utilise un niveau relais (par exemple $6s6p\ ^3P_1$) et nécessite un premier laser accordé sur la transition $6s^2\ ^1S_0 \rightarrow 6s6p\ ^3P_1$ puis un second permettant d'atteindre le niveau de Rydberg à étudier [17]. La deuxième possibilité consiste à exciter l'ytterbium dans un de ses états métastables par une décharge, un laser accordable permettant ensuite d'atteindre les niveaux très excités. Cette dernière solution a été retenue pour sa simplicité et son faible coût. L'état métastable utilisé est l'état $^3P_0$ de la configuration 6s6p . Il est situé à une énergie de 17288,44 cm^{-1} par rapport à l'état fondamental. Cette méthode nous a été suggérée par les expériences de Brinkmann et al.[18].

Pour exciter les atomes dans les états de Rydberg, à partir de l'état métastable, la longueur d'onde du laser à colorant est de l'ordre de 302,5 nm. Ceci est réalisé par un laser accordable dont le rayonnement est doublé en fréquence.

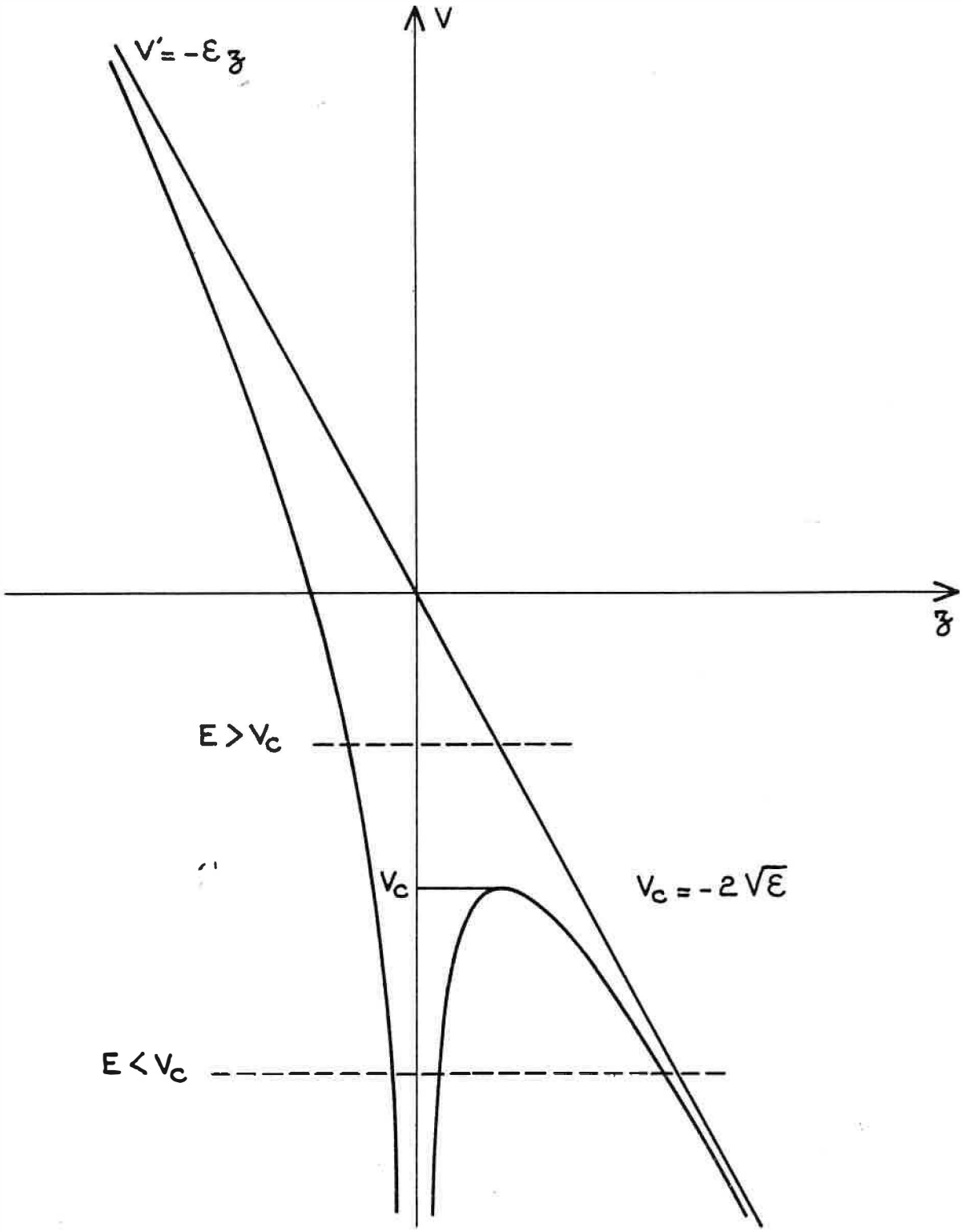


Figure 3

Représentation de la fonction V(0,0,z)

I-A-2 PRINCIPE DE LA DETECTION PAR IONISATION à L'AIDE D'UN CHAMP ELECTRIQUE.

Une première approche de cette méthode de détection est donnée par un modèle classique rendant bien compte du phénomène [19] : l'atome étant dans un état de Rydberg, le potentiel électrostatique auquel est soumis l'électron périphérique est pratiquement coulombien (hydrogénoïde) donc de la forme :

$$V = -\frac{1}{r} \qquad \text{(en unités atomiques)} \ .$$

Lorsque l'on applique un champ électrique extérieur ε , parallèle à Oz , le potentiel (**) résultant est :

$$V(x,y,z) = -\frac{1}{r} - \varepsilon.z \qquad \text{(en unités atomiques)} \ .$$

La courbe représentant $V(0,0,z)$ est tracée sur la Figure 3 . Elle présente un maximum relatif de $-2\sqrt{\varepsilon}$. Si l'énergie associée à l'état étudié est supérieure à ce maximum, l'électron est libre. Si elle est inférieure, l'électron est lié au noyau. On est donc en présence d'une valeur critique du champ (ε_c) caractéristique du niveau d'énergie E . L'énergie E du niveau que l'on considère (l'origine des énergies étant l'énergie de la première limite d'ionisation) s'exprime en fonction du nombre quantique principal effectif par la relation :

$$n^* = \sqrt{\frac{R}{-E}} \qquad (R = \text{constante de Rydberg} = 109737 \ cm^{-1} = 1 \text{ en unités atomiques}).$$

On obtient alors la loi classique reliant ε_c à n^* :

$$\varepsilon_c = \frac{1}{16(n^*)^4}$$

(dans le système S.I , on a : $\varepsilon_c = \frac{51,3\ 10^8}{16(n^*)^4}$).

(**) En fait, il s'agit ici de l'énergie potentielle de l'électron exprimée en unités atomiques (e=1) .

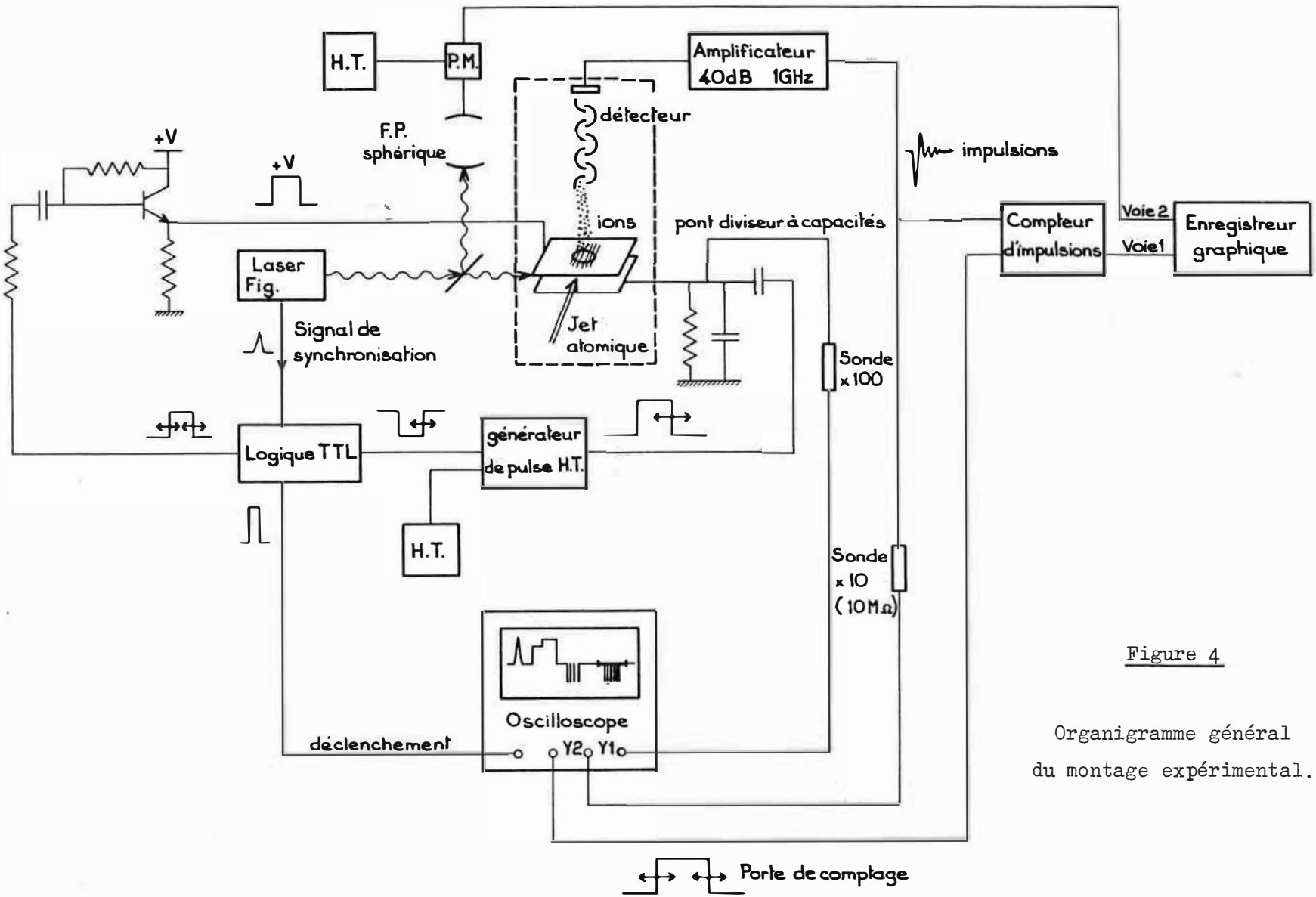


Figure 4

Organigramme général
du montage expérimental.

Ce modèle, non quantique, et ne s'appliquant en toute rigueur qu'à l'atome d'hydrogène, ne rend pas compte du processus réel de l'ionisation, mais permet de comprendre le principe de cette méthode de détection sélective.

I-B LE JET ATOMIQUE

Le schéma de la Figure 4 donne l'organigramme général du montage expérimental. Les différentes parties seront décrites successivement dans l'ordre donné par leur place dans l'expérience. Les schémas de détails des différents éléments (enceinte, four, laser) sont donnés à l'endroit de la description correspondante.

I-B-1 DESCRIPTION GENERALE DE L'ENCEINTE.

Les conditions de vide pour avoir un jet atomique, avec une pression du gaz résiduel faible, sont assez rigoureuses. Le jet est produit dans une enceinte pompée par une pompe à diffusion d'huile. Un piège en cuivre refroidi à l'azote liquide condense les vapeurs résiduelles. On obtient ainsi une pression de quelques 10^{-7} torrs le four étant froid, et de quelques 10^{-6} torrs quand le four est en fonctionnement.

Le corps de l'enceinte est un cylindre horizontal en acier inoxydable ayant le jet atomique suivant son axe. La Figure 5 donne le schéma général du montage. Le four est placé à une extrémité et la zone d'interaction, entre le laser et les atomes du jet, se situe à 10 cm de la sortie du four. Ces deux parties sont séparées par une plaque percée de trous pour assurer le pompage, ainsi que d'un trou central délimitant

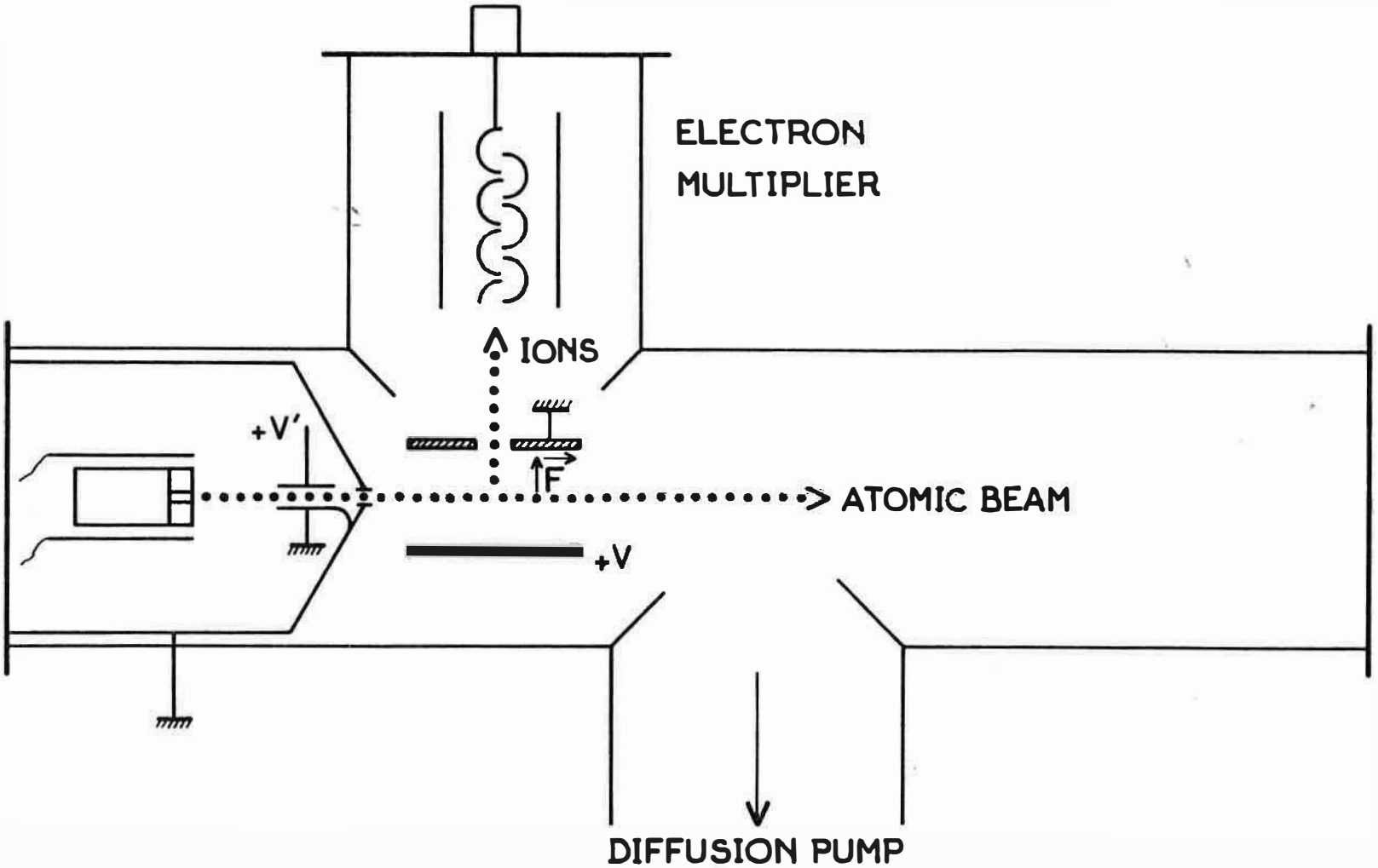


Figure 5

1er montage du four dans l'enceinte.

le jet. La collimation ainsi obtenue est de 33 , le diaphragme ayant un diamètre de 3 mm.

De part et d'autre de la zone d'interaction, sur un axe horizontal perpendiculaire à l'axe de l'enceinte, deux fenêtres permettent le passage du rayonnement laser. Elles sont en silice fondue afin de transmettre l'ultraviolet avec le minimum d'absorption. Deux plaques horizontales parallèles au jet permettent de produire le champ électrique nécessaire à l'ionisation. Enfin le détecteur d'ions est placé verticalement au-dessus de la zone d'interaction.

I-B-2 REALISATION DU JET D'ATOMES METASTABLES - LA DECHARGE EXCITATRICE.

a) Principe de l'excitation.

La décharge dans le jet atomique est créée par deux rangées du fil de chauffage se croisant devant la sortie du four (Fig. 6). Ces fils émettent des électrons qui, accélérés entre les deux nappes, excitent les atomes par collision. Ceux-ci se désexcitent ensuite par voie radiative soit vers leur état fondamental, soit vers un des états métastables. La décharge est aussi suffisamment énergique pour ioniser une partie des atomes.

Quelques microsecondes après l'instant où les atomes sortent de la décharge, il n'y a plus dans le jet que, d'une part, des atomes dans leur état fondamental ou dans un des états métastables et, d'autre part, des ions. En effet la durée de vie d'un état pouvant se désexciter par voie radiative est typiquement de l'ordre de 10 ns, tandis que celle des états métastables est de quelques millisecondes au moins. On peut déterminer grossièrement la distance à laquelle les atomes seront désexcités. La vitesse des atomes constituant le jet est la vitesse d'agitation thermique ; la température du four étant de 700°C environ, cela donne

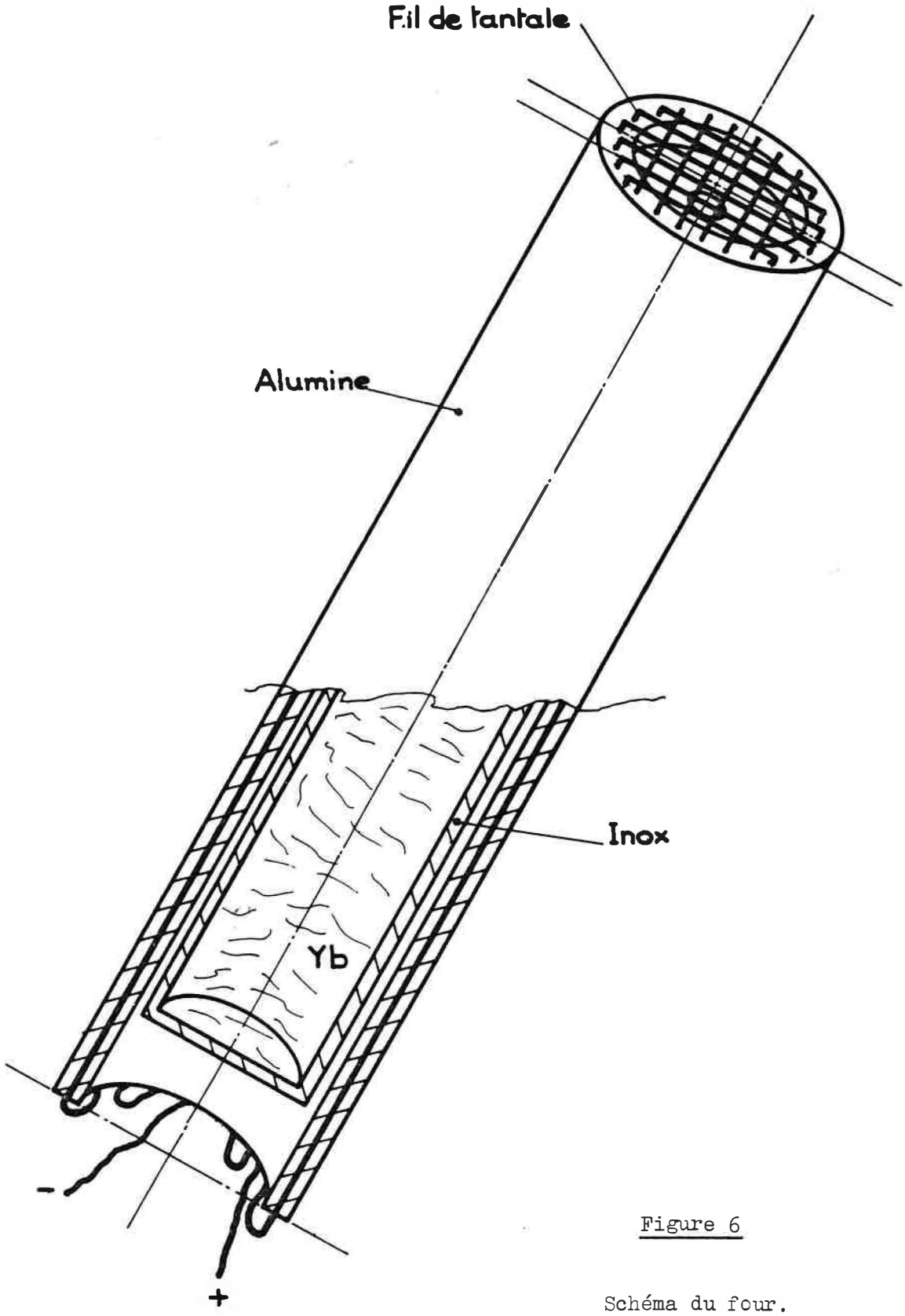


Figure 6

Schéma du four.

une vitesse moyenne pour les atomes $(\bar{v})$:

$$\bar{v} = 1,13 \quad \frac{2KT}{m} = 345 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1} \qquad [20] \ .$$

A quelques millimètres de la sortie de la décharge, le jet ne contiendra plus d'atomes excités de faible durée de vie.

b) Description du four et du dispositif de décharge.

Le four est constitué de trois parties (voir Figure 6) :

- Un creuset d'acier inoxydable cylindrique que l'on remplit d'ytterbium (20 g en moyenne). L'orifice de sortie a un diamètre de 2 mm et la longueur du cylindre est de 6 cm.

- Un tube d'alumine entoure ce creuset. Il est percé longitudinalement de 24 canaux dans lesquels est cablé un fil résistant de tantale destiné au chauffage et à la production de la décharge.

- Un support en cuivre, en contact thermique avec la paroi de l'enceinte refroidie par une circulation d'eau. La seule fonction de ce refroidissement est d'éviter l'échauffement des parois de l'enceinte.

Le cablage du four est réalisé de façon que le fil passe devant l'orifice de sortie du four en une première nappe, puis en une seconde de direction perpendiculaire (voir Figure 6). Ces deux rangées de fils sont séparées par une distance de 1 à 2 mm. Le cablage est réalisé de manière que les deux extrémités du fil, entre lesquelles la différence de potentiel est maximale, se croisent devant le trou de sortie du creuset, c'est-à-dire sur le jet atomique ; cette disposition permet d'exciter la décharge le plus efficacement possible.

L'alimentation du four est assurée par un générateur continu régulé en courant. Le bon fonctionnement de l'ensemble est déterminé par l'obtention d'une décharge stable et suffisamment intense pour fournir une proportion de métastables donnant un signal d'amplitude convenable.

On apprécie le régime optimum de la décharge en observant dans l'axe du jet sa couleur et son étendue : elle doit être blanche et uniforme. Ces conditions sont réalisées pour une différence de potentiel aux bornes de l'enroulement de tantale de 70 V et un courant de 1,7 A. La puissance fournie pour le chauffage est ainsi de 120 W. Pour des valeurs de courant plus élevées (1,9 A) la décharge augmente d'intensité mais on observe alors une proportion de plus en plus grande d'ions formés. Or ces ions sont détectés de la même manière que les ions formant le signal (cf. I-D-3-a)). Ils produisent donc un signal parasite qui détériore le rapport signal sur bruit. L'intensité de la décharge doit donc être réglée de manière que le nombre de ces ions ne devienne pas excessif.

I-B-3 DIFFICULTES LIEES à L'UTILISATION D'UNE DECHARGE.

La simplicité apparente du système de décharge utilisé comporte en réalité de nombreux problèmes qui ont conduit à diverses modifications du montage initial.

Le premier problème rencontré a été la grande consommation d'ytterbium. En effet, la décharge ne peut s'amorcer que si la densité d'atomes entre les fils est suffisante. Ceci impose d'augmenter fortement le chauffage du four par rapport au cas d'un jet atomique classique. Un remplissage de plus en plus dense du creuset a permis d'obtenir un bon fonctionnement pendant 8 à 9 h. consécutives avec 20 g l'ytterbium. La rareté, et donc le prix de l'ytterbium, oblige à le recycler. Un diaphragme en cuivre solidaire du support refroidi placé après le four recueille l'ytterbium ne formant pas le jet (environ 70% de la contenance du creuset).

Le fil de tantale doit être changé assez souvent. Après une quinzaine d'heures de fonctionnement, il faut augmenter peu à peu le courant de 0,1 à 0,2 A pour obtenir la même intensité de décharge car des dépôts se forment sur le fil perturbant le fonctionnement. Mais l'on augmente

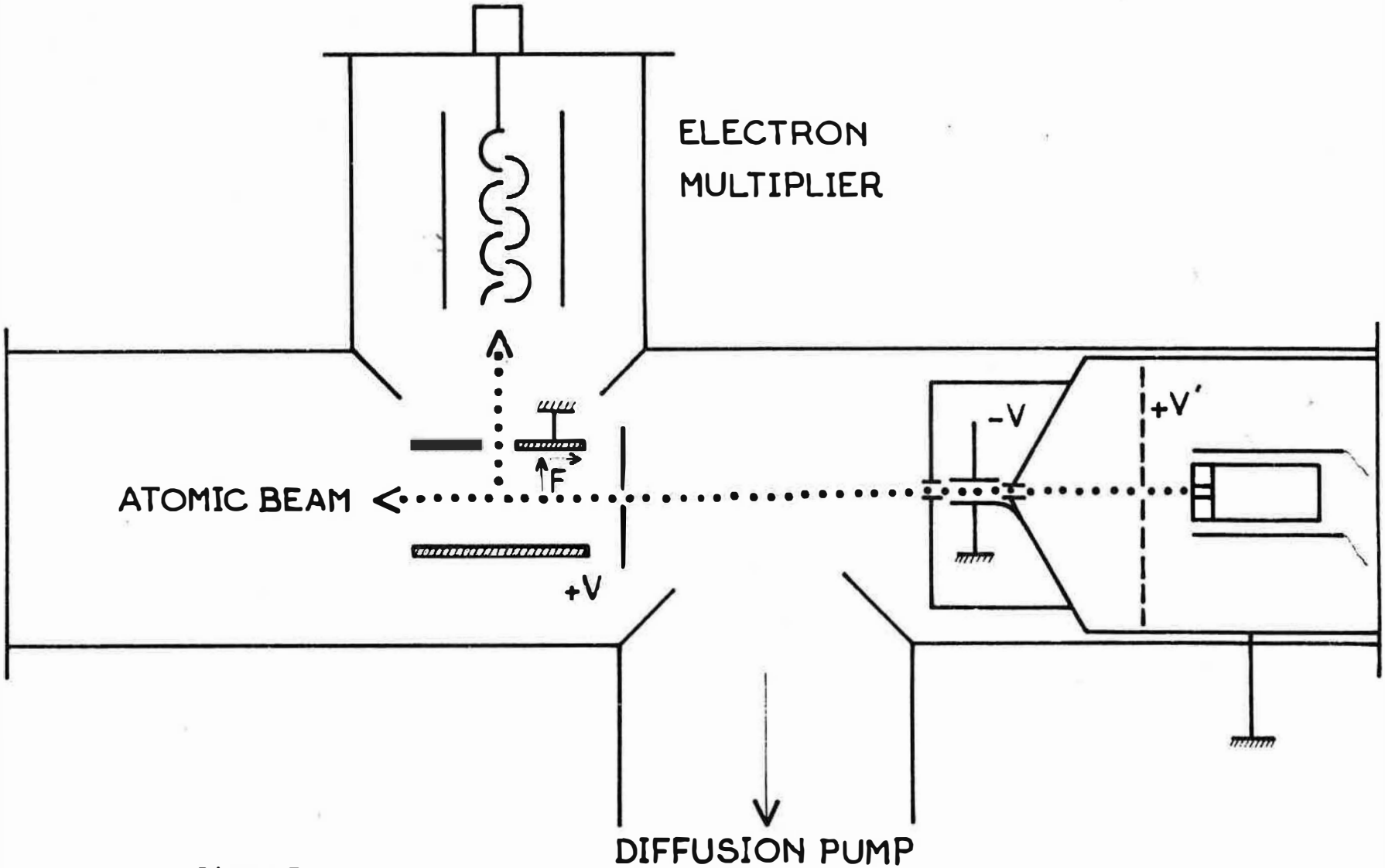


Figure 7

2ème montage du four dans l'enceinte.

ainsi la puissance de chauffage. Finalement, un cablage ne permet de disposer que de 24 h de fonctionnement dans de bonnes conditions.

Comme cela a été signalé dans le paragraphe précédent, les ions créés par la décharge sont une cause importante de signal parasite qui diminue la sensibilité de l'expérience. On réussit à éliminer une très forte proportion de ces ions parasites en les déviant par un champ électrique. Le champ déflecteur est créé en appliquant une différence de potentiel de 300 V sur deux plaques disposées de part et d'autre du jet (cf. Figure 5).

Le dispositif tel qu'il vient d'être décrit a servi à mesurer les valeurs du champ critique d'ionisation. Mais lors des expériences à haute résolution sur la structure des états de Rydberg, on a observé l'apparition de résonances d'intensités et de positions variables suivant les conditions de fonctionnement de la décharge. Ces résonances ont été attribuées à l'effet Stark dû à un champ électrique parasite créé par les ions résiduels issus de la décharge. Un effet du même ordre de grandeur a été obtenu en appliquant un champ continu de $1 V.cm^{-1}$ entre les plaques. Ce champ déplace aussi les résonances observées en champ nul. Il a donc fallu modifier le dispositif expérimental.

Le nouveau dispositif est représenté à la Figure 7. On remarque que le four a été éloigné de la zone d'interaction. Un diaphragme de 3 mm de diamètre définit le jet juste avant la zone d'interaction. La distance entre la sortie du four et la zone d'interaction est portée à 30 cm, la collimation est donc de 100 . On diminue ainsi le nombre d'ions parasites résiduels donc l'intensité du champ parasite. Le signal utile a diminué dans le rapport du carré des collimations, donc d'un facteur proche de 10, mais reste suffisant pour observer les composantes faibles de la structure. De plus, l'élimination des ions a été rendue plus efficace en plaçant une grille portée à un potentiel de +100 V en travers du jet. Les ions sont repoussés par cette grille ; deux plaques, entre lesquelles une différence de potentiel de 300 V est

appliquée, achèvent d'"épurer" le jet. Un diaphragme sépare ces deux dispositifs. Enfin un autre diaphragme relié à la masse forme un blindage électrostatique ; on évite ainsi d'avoir des champs parasites, créés par les tensions appliquées aux différentes électrodes, dans la zone d'interaction.

I-C L'EXCITATION OPTIQUE

Elle est effectuée à l'aide de lasers pulsés dont le rayonnement est doublé en fréquence par un cristal non linéaire. Le premier laser, utilisé pour la mesure des champs critiques d'ionisation, est décrit au paragraphe I-C-2 . Le second laser, permettant l'étude de la structure des états de Rydberg, est décrit ensuite (I-C-3).

I-C-1 QUALITES EXIGEES DES LASERS.

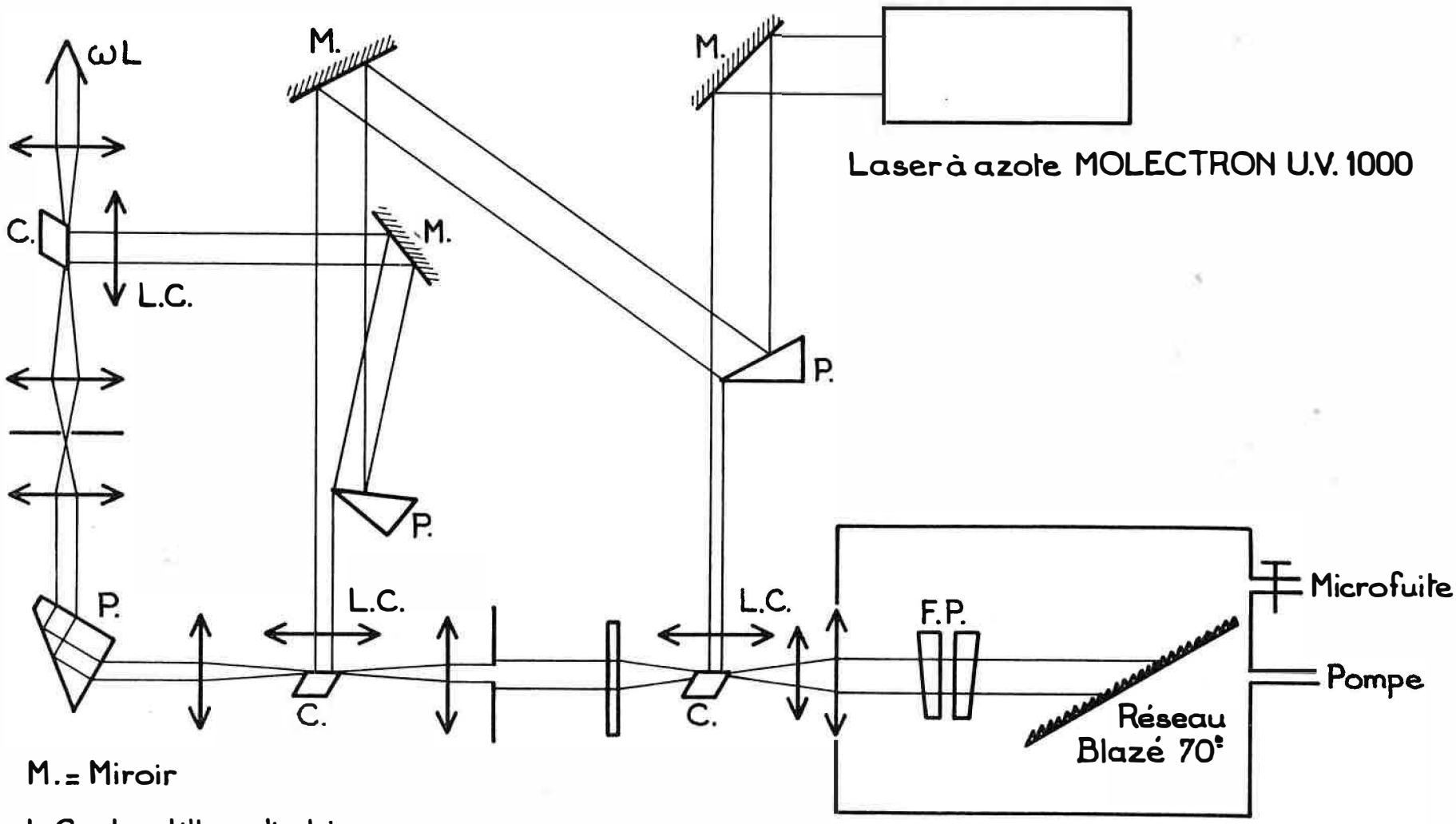
Dans la première expérience, la largeur de la raie laser importe peu puisque l'on ne cherche pas à exciter sélectivement un isotope donné ou à isoler une composante de la structure. Seule compte la puissance disponible sur la largeur de la résonance, qui doit être suffisante pour peupler efficacement les états de Rydberg à étudier. Les largeurs intervenant dans le profil des raies étudiées comprennent la largeur naturelle (10 kHz pour un état de Rydberg de n égal à 30) et la largeur Doppler résiduelle qui est de 40 MHz (1,3 mK) pour une collimation de 30. La largeur des raies résultante est donc pratiquement égale à la largeur Doppler. Pour ne pas perdre une partie de la puissance lumineuse disponible, il faut concentrer l'énergie sur une faible étendue spectrale pour disposer d'une puissance maximum sur la largeur de la résonance.

D'autre part les probabilités de transition sont très faibles et la durée de l'excitation est très inférieure à la durée de vie du niveau supérieur (de l'ordre de 300 µs pour n=30). Il faut donc des puissances lumineuses très fortes pour porter sur le niveau supérieur une proportion convenable d'atomes.

De plus, ces conditions de largeur et de puissance doivent être obtenues pour la longueur d'onde associée aux transitions entre l'état métastable choisi ($6s6p\ ^3P_0$) et les états de la série de Rydberg à observer, qui se situe dans l'ultraviolet (303 nm pour la configuration 6s30d). Le meilleur procédé pour obtenir un rayonnement laser intense dans ce domaine de longueur d'onde consiste à doubler en fréquence le rayonnement d'un laser à colorant dont la longueur d'onde est voisine de 606 nm. Ceci est réalisé dans un cristal non linéaire (cf. I-C-4). Mais ce processus expérimental produit un doublage de la largeur de la raie à la fréquence fondamentale et, d'autre part, le rendement des cristaux doubleurs est faible (au mieux de l'ordre de 20%). Les conditions de puissance, pour le rayonnement produit par le laser à colorant, seront donc plus sévères encore que les conditions définies au début de ce paragraphe.

Dans la seconde expérience, les qualités exigées du rayonnement laser excitateur sont encore plus difficiles à réunir : le laser doit être puissant pour les raisons développées précédemment et sa largeur doit être suffisamment réduite pour résoudre la structure des états de Rydberg. Dans cette expérience la collimation du jet atomique est de 100 . La largeur Doppler résiduelle des raies est donc de 10 MHz (0,3 mK) et le laser doit avoir une largeur aussi proche que possible de cet ordre de grandeur pour ne pas diminuer le pouvoir de résolution.

Montage de principe du LASER A COLORANT utilisé pour la mesure des champs critiques.



M. = Miroir

L.C. = Lentille cylindrique

P. = Prisme

C. = Cuve à colorant

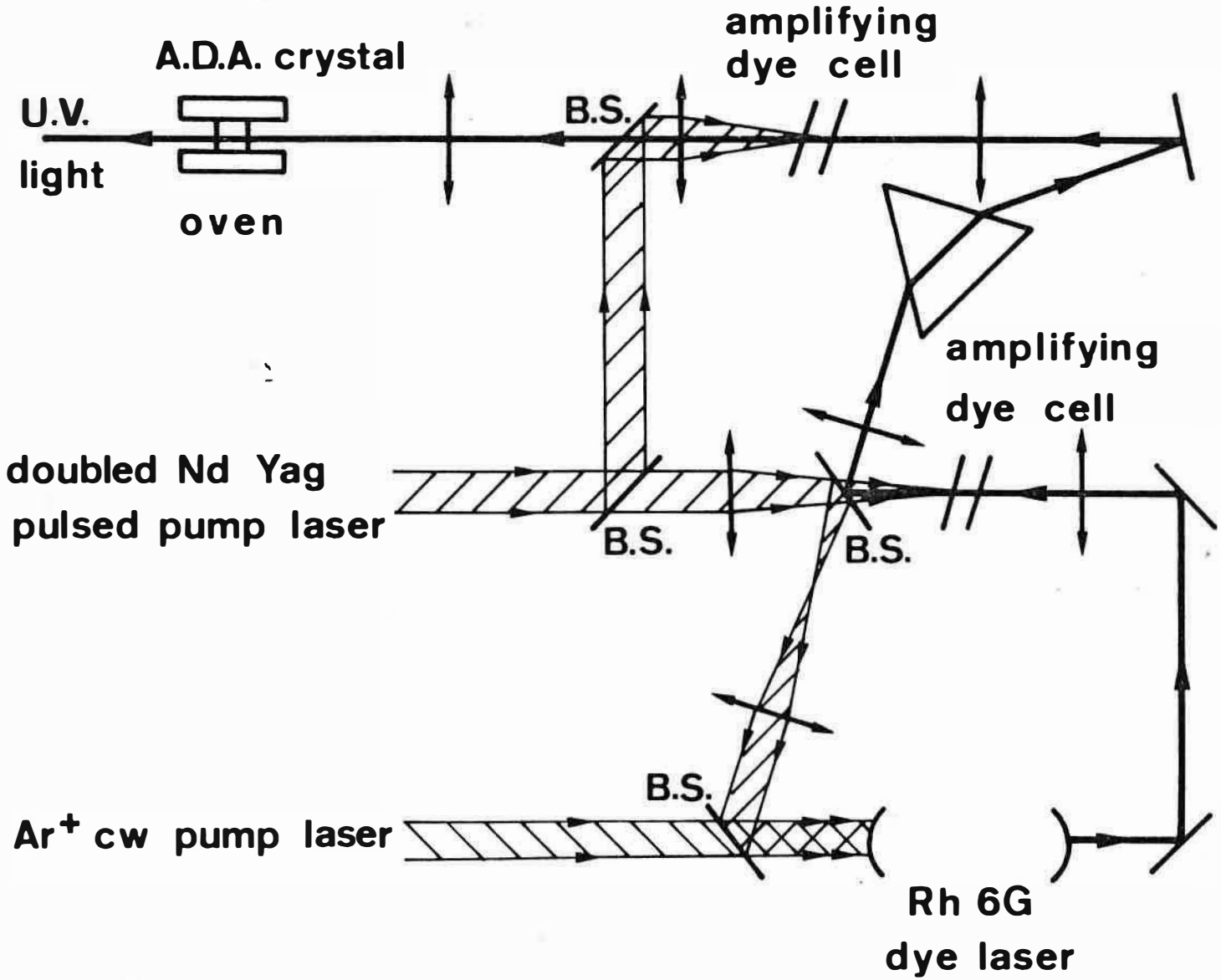
Figure 8

I-C-2 DESCRIPTION DU PREMIER LASER (Mesure des champs critiques d'ionisation).

Le schéma de principe de ce laser à colorant est donné à la Figure 8.

La méthode de détection et les conditions de puissance imposent l'utilisation d'un laser pulsé. Ces lasers concentrent l'énergie qui leur est fournie pendant un temps très court. Le laser de pompe est un laser à azote (Molectron U. V. 1000) dont les impulsions ont une puissance crête de 800 kW et une durée de 10 ns . Le taux de répétition est de 15 Hz, la puissance moyenne est donc 120 mW. Le colorant utilisé pour obtenir les longueurs d'onde comprises entre 600 et 610 nm est la rhodamine B . Une cuve à circulation évite la détérioration rapide du milieu actif. La cavité résonnante est fermée à une extrémité par un miroir en verre nu (pouvoir réflecteur 4%) et à l'autre par un réseau blazé travaillant dans l'ordre 7 ou 8 . Un dispositif afocal permet d'étaler le faisceau sur toute la longueur du réseau afin d'augmenter la résolution. La largeur de la raie laser obtenue est fonction de la puissance de pompe. De plus, si l'on injecte une trop grande puissance dans la cavité, une partie de celle-ci est perdue une fois que le colorant est saturé. Donc, pour obtenir une largeur de raie de 40 mK et ne pas perdre de puissance de pompe, seule une partie du faisceau laser sert au pompage du colorant de la cavité. Le reste du faisceau sert à exciter le colorant de deux amplificateurs placés en série. La balayage en longueur d'onde s'obtient en faisant varier la pression dans la cuve contenant le réseau.

Le rendement de la rhodamine B se modifie au cours du temps. Dans les premières heures de fonctionnement, on obtient une pointe de puissance de 15 kW par impulsion (2,25 mW en moyenne). Puis cette puissance décroît et se stabilise pendant plusieurs jours à 3 kW par impulsion (0,45 mW en moyenne). Pour se placer dans de bonnes conditions de puissance, on a utilisé le colorant dans son maximum de rendement, ce qui oblige à le renouveler chaque jour.



B.S. : beam separator

Figure 9

Schéma général du laser monomode pulsé.

Le rayonnement laser obtenu à la sortie de ce dispositif est ensuite doublé en fréquence (cf. §. I-C-4) .

I-C-3 DESCRIPTION DU LASER MONOMODE PULSE.

Ce laser est celui construit par S. Liberman et J. Pinard au laboratoire [21]. Le montage représenté à la Figure 9 montre les différents éléments de ce dispositif conçu spécialement pour l'étude à très haute résolution des états de Rydberg.

Dans ce laser, le colorant est soumis à deux faisceaux de pompage. L'un, continu, est fourni par un laser à argon ionisé, l'autre, pulsé, est fourni par un laser à néodyme Yag . La puissance du laser à argon ionisé est de 1 W sur la raie $\lambda = 514{,}5$ nm . Le laser à néodyme a un taux de répétition de 40 à 50 Hz. La longueur d'onde normalement délivrée par ce laser est 1064 nm, mais, pour notre utilisation, on double la fréquence du rayonnement par un cristal non linéaire placé dans la cavité. La longueur d'onde fournie est donc 532 nm. La puissance crête, après doublage, de chaque impulsion est de 5 kW, pour une durée de 120 ns (la puissance moyenne est donc 30 mW).

La cavité du laser à colorant comporte comme éléments sélecteurs un prisme et un étalon de Fabry-Perot. Par déplacement d'un miroir fermant la cavité, on peut faire varier continûment la fréquence d'oscillation du laser.

Pour obtenir un intervalle de balayage beaucoup plus grand, on fait subit au miroir de la cavité un déplacement "en dents de scie". Pendant le retour, très rapide, du miroir à sa position initiale, l'épaisseur du Fabry-Perot reste constante. Le laser effectue alors un saut de mode et sa fréquence d'oscillation, après le retour du miroir, est proche de la valeur atteinte quand la dent de scie est à son amplitude maximum. Cette amplitude est ajustée de façon que l'écart en

fréquence obtenu entre les deux positions du miroir soit le plus faible possible, c'est-à-dire telle qu'elle corresponde au balayage d'un nombre entier d'intervalle entre modes de la cavité laser. De cette façon, on parvient à faire varier de manière continue la fréquence du laser sur un intervalle de 180 GHz (6000 mK).

Le milieu actif du laser à longueur d'onde variable est de la rhodamine 6G. Une circulation de ce colorant sous forme d'un jet laminaire évite qu'il ne soit détruit du fait des grandes puissances de pompe injectées dans la cavité.

Sous l'action du double pompage décrit précédemment, l'oscillation du laser à colorant comporte un rayonnement continu auquel se superposent des impulsions intenses. Si le laser oscille en continu de façon monomode, les impulsions s'accordent sur le mode unique excité de la cavité ; mais, si l'on supprime le pompage continu, l'oscillation du laser à colorant se fait sur plusieurs modes. C'est donc le rayonnement continu qui est responsable du "verrouillage" des oscillations pulsées sur un seul mode. Ce fait remarquable et fondamental pour le fonctionnement de ce laser monomode pulsé s'explique de la manière suivante : l'oscillation qui prend naissance sous l'effet des impulsions de pompage se forme beaucoup plus vite pour le mode oscillant en continu que pour les autres modes (pour ces derniers elle doit, en effet, démarrer sur le bruit). Ensuite le gain du milieu actif est saturé et le gain pour les longueurs d'ondes en dehors du mode diminue. Les autres modes sont fortement défavorisés et l'oscillation pulsée reste monomode. Cependant une telle situation ne se maintient que si la puissance crête de l'impulsion de pompage n'est pas trop élevée et si sa durée n'est pas trop grande, sinon l'effet laser se produira sur d'autres modes. Il en résulte que la puissance crête obtenue est relativement modeste (de l'ordre de 1 W). On doit donc, comme dans le montage précédent (I-C-2) procéder à une double amplification afin d'avoir une puissance suffisante pour réaliser un doublage en fréquence efficace.

La partie du faisceau du laser à Yag non injectée dans la cavité est séparée en deux par une lame semi transparente à 532 nm. Chaque faisceau ainsi obtenu sert à pomper un colorant placé dans une cuve sans circulation. Le milieu actif de ces amplificateurs est de la rhodamine 640 dissoute dans de l'eau distillée ; de l'ammonix, en faible proportion, évite la polymérisation des molécules de colorant. Le faisceau à amplifier est colinéaire mais de sens de propagation contraire au faisceau pompe. Le gain en puissance obtenu est de 30 à 50 par amplificateur. Les deux amplificateurs sont placés en série et, pour éviter d'amplifier la fluorescence d'une cuve par l'autre, il est nécessaire de les découpler par un train de prismes.

A la sortie de ces deux amplificateurs, la puissance obtenue est suffisante pour obtenir un doublage en fréquence avec un rendement convenable. Cette puissance est de 200 W par impulsion de durée 50 ns (0,5 mW en moyenne) sur une largeur de raie inférieure à 30 MHz (1 mK).

I-C-4 LE DOUBLAGE EN FREQUENCE.

Le premier cristal doubleur utilisé est un cristal d'ADA ($NH_4H_2AsO_4$). L'onde incidente de pulsation ω produit dans le cristal une polarisation $\vec{P}$. Le cristal a une susceptibilité électrique (χ) comportant une partie tensorielle du second ordre. La polarisation induite par l'onde incidente aura donc une composante à la fréquence 2ω qui pourra engendrer une onde à la même pulsation.

Mais, pour obtenir une intensité notable pour l'onde à la fréquence double, il faut que le faisceau incident et le faisceau doublé en fréquence se propagent de la même manière dans le cristal. En particulier les indices à la fréquence ω et à la fréquence double (2ω) doivent être les mêmes. C'est la condition d'accord de phase (phase matching). Pour le cristal d'ADA cet accord est réalisé en faisant varier la température. La courbe donnant la température d'accord de phase en fonction

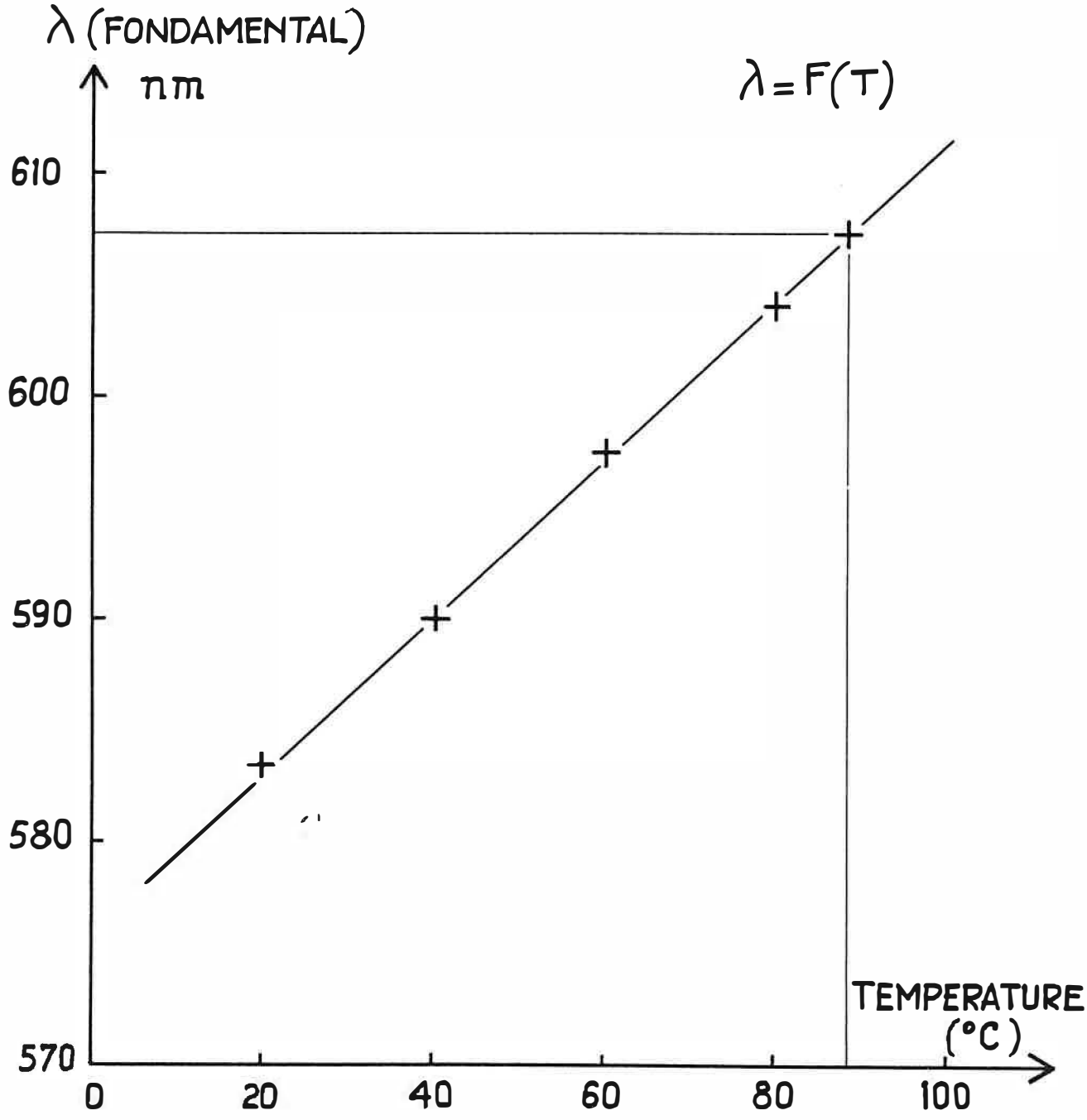


Figure 10

Variation de la température d'accord de phase
en fonction de la longueur d'onde pour le cristal d'ADA.

de la longueur d'onde est donnée à la Figure 10 [22]. Le cristal se déshydrate à haute température, on ne doit pas le maintenir à une température supérieure à 100°C environ. Pour prévenir toute détérioration du cristal, nous avons préféré nous limiter à 90°C pour la température du liquide de régulation. La longueur d'onde limite ainsi définie est 606 nm .

Pour les longueurs d'onde supérieures on a utilisé un cristal d'ADP ($NH_4H_2PO_4$) ; l'accord de phase était réalisé maintenant par rotation du cristal.

Pour ces deux cristaux, l'intensité U.V. obtenue est proportionnelle au carré de la densité d'énergie incidente. D'où l'importance du choix de la lentille focalisant le faisceau incident dans le cristal. Celle-ci doit assurer la focalisation la plus forte possible, mais sur toute la longueur du cristal.

Le rayonnement laser ultraviolet obtenu est ensuite focalisé au centre de la zone d'interaction. Un miroir renvoie la partie non absorbée sur le jet, permettant ainsi de multiplier le signal par un facteur 1,2 à 1,3 .

I-C-5 ÉTALONNAGE EN NOMBRE D'ONDES DES SPECTRES.

Pour étalonner le spectre, en nombre d'ondes, on prélève une partie du faisceau du laser à colorant et on l'envoie sur un étalon de Fabry-Perot dont on enregistre les pics de transmission. Pour les expériences à moyenne résolution (mesure des champs critiques), on a utilisé un Fabry-Perot plan dont l'intervalle entre-ordres est 200 mK, pour les expériences à haute résolution, un Fabry-Perot sphérique dont l'intervalle entre-ordres est 25 mK (0,75 GHz). Puisque le rayonnement laser est ensuite doublé en fréquence, l'intervalle en fréquence entre deux pics successifs enregistrés est le double de ces intervalles entre-ordres.

I-D LA DETECTION.

I-D-1 PRINCIPE ET MONTAGE GENERAL.

Les atomes métastables excités par le rayonnement laser, donc placés dans un état de Rydberg, peuvent subir une ionisation par un champ électrique. Conformément au modèle décrit précédemment (I-A-2), il faut que l'intensité du champ soit supérieure à une valeur critique ε_c . Ce champ est créé par l'application d'une différence de potentiel entre les deux plaques situées de part et d'autre de la zone d'interaction (Fig. 5 et 7). Ce champ sert aussi à accélérer verticalement les ions formés en direction du détecteur.

Afin de laisser passer les ions, la plaque supérieure est percée d'un trou. Le diamètre de ce trou doit satisfaire à deux exigences contradictoires : le trou doit être assez grand pour laisser passer une partie importante des ions, mais il doit être assez petit, devant la distance entre les plaques, pour que le champ électrique reste pratiquement homogène et pour que la région d'interaction reste protégée contre les champs parasites dus à des corps chargés situés à l'extérieur des plaques (en particulier les dynodes du détecteur qui sont portées à une tension élevée et qui sont assez proches). On a finalement été conduit à utiliser non pas un simple trou, mais une grille constituée de fils métalliques parallèles tendus en travers d'un trou de 1 cm de diamètre et soudés à chaque extrémité sur la plaque. Ces plaques sont séparées par une distance de 0,99 ± 0,02 cm.

Le champ critique d'ionisation varie entre 38 $V \cdot cm^{-1}$ pour n=57 et 1550 $V \cdot cm^{-1}$ pour n=38 (ces deux valeurs étant les limites inférieure et supérieure des nombres quantiques principaux des niveaux observés). La vitesse des ions, lors du passage par le trou de la plaque supérieure est la résultante de la vitesse thermique horizontale (350 $m \cdot s^{-1}$) et de la vitesse verticale acquise après l'ionisation : les

ions sont formés au centre des plaques (lieu de focalisation du faisceau laser) et sont accélérés tant qu'ils sont entre les plaques. Dans ces conditions, pour un champ de 38 $V \cdot cm^{-1}$ (respectivement 1550 $V \cdot cm^{-1}$), la composante verticale de la vitesse est environ 5000 $m \cdot s^{-1}$ (30000 $m \cdot s^{-1}$). La vitesse des ions est donc pratiquement verticale.

I-D-2 LE DETECTEUR.

Le détecteur est placé verticalement à 13 cm de la zone d'interaction. C'est un multiplicateur d'électrons secondaires à 17 dynodes (Balzers SEV 317). Le principe de fonctionnement de ce détecteur est bien connu : un ion arrivant sur la première dynode arrache un électron. Celui-ci est accéléré vers la seconde dynode où l'électron produit une émission secondaire de plusieurs électrons. Ce processus se répète sur les dynodes suivantes. On obtient ainsi un gain de 10^8 pour une tension accélératrice de 3,4 KV (200 V entre dynodes). A chaque ion arrivant sur le détecteur, on a une impulsion de courant. Sur une impédance de charge de 50 Ω, on obtient une impulsion de tension de 400 mV, crête à crête, d'une durée de 2 ns à mi-hauteur.

Ce détecteur est évidemment à structure ouverte, c'est-à-dire qu'il n'est pas enfermé dans une enceinte de verre. Les vapeurs résiduelles dans l'enceinte, ou l'air introduit lorsque l'on ouvre l'enceinte, peuvent donc polluer les dynodes ce qui diminue le gain. Pour compenser cette perte de gain on amplifie les impulsions de courant par un amplificateur rapide (bande passante 0,2 à 500 MHz) de gain 40 dB (×100) (Nuclétude 5-40-2 MH2). La tension appliquée sur les dynodes est ensuite réglée de manière que les impulsions de courant aient toujours la même amplitude.

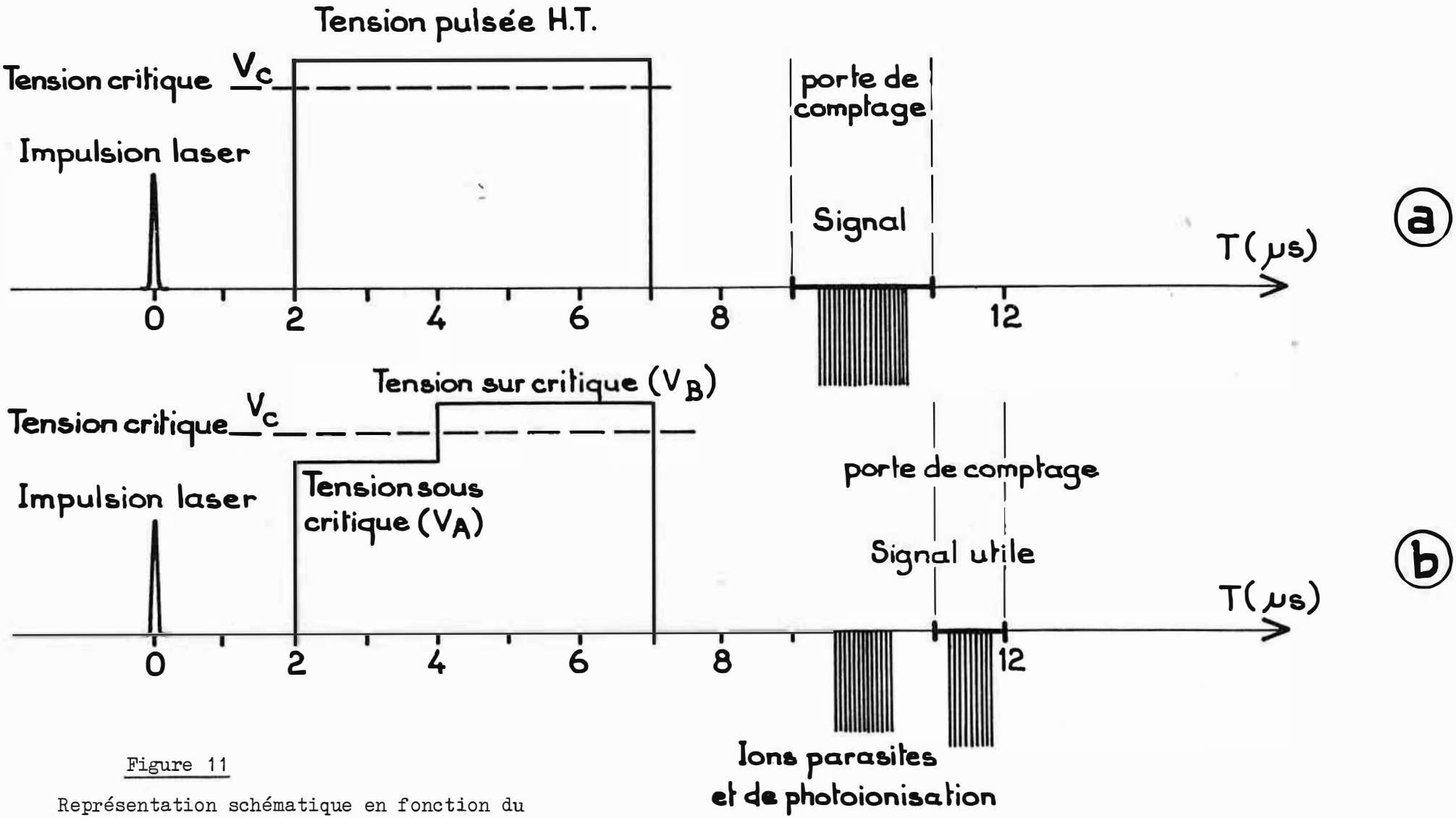


Figure 11

Représentation schématique en fonction du temps des différentes étapes de l'expérience.

I-D-3 COMPTAGE DES IONS - TRAITEMENT DU SIGNAL.

a) Principe physique du traitement du signal.

Le schéma (a) de la Figure 11 montre les différentes étapes de l'expérience telles qu'elles sont observées au cours du temps sur l'écran d'un oscilloscope. Les atomes sont excités par le laser pulsé. Si la fréquence du laser est résonnante, les atomes sont portés dans l'état de Rydberg choisi. On applique ensuite le champ ionisant surcritique. Les ions sont détectés et l'instant de leur arrivée repéré sur l'écran de l'oscilloscope. On peut ainsi placer une porte déclenchant le comptage uniquement sur le signal utile. Les ions arrivant sur le détecteur en dehors du temps délimité par cette porte, donc ne correspondant pas au phénomène étudié, ne sont pas comptés. De cette façon la sensibilité de l'expérience est considérablement augmentée car il est plus difficile d'observer un signal superposé à un fond continu important. Le rapport signal sur bruit est aussi meilleur car le fond continu a évidemment des fluctuations.

Pour être sûr que, lors de l'excitation des atomes par le rayonnement laser, le champ électrique appliqué est bien nul, on est amené à retarder l'impulsion de champ électrique. Ce retard correspond au temps de déclenchement de l'électronique et au temps de montée de la tension appliquée sur les plaques. Comme celà est montré à la Figure 11-a ce retard est d'environ 2 μs, donc très inférieur à la durée de vie des atomes portés sur un niveau de Rydberg (quelques centaines de microsecondes) et n'entraîne donc aucune perte de signal par désexcitation radiative de ces atomes.

Lors des premières expériences réalisées avec ce dispositif, les ions constituant le signal pris en compte, dans le temps défini par la porte de comptage, se sont révélés être de trois origines :

α) des ions parasites issus principalement de la décharge,

β) les ions de photoionisation à partir des niveaux métastables

$6s6p\ ^3P_2$ situé à une énergie de 19710,39 cm^{-1} du fondamental et $4f^{13}(^2F_{7/2})5d_{3/2}6s^2$ (J=2) situé à une énergie de 23188,52 cm^{-1} ,

γ) les ions formés par le champ électrique surcritique qui forment le signal utile.

Les deux premières sortes d'ions (α et β) forment un fond continu fluctuant superposé au signal proprement dit (γ) et gênant la détection des raies les plus faibles.

Pour éliminer les ions du type β , on applique, après l'impulsion laser, un créneau de champ sous critique (cf. Figure 11-b). Ce champ accélère les ions déjà formés vers le détecteur, mais son intensité est insuffisante pour ioniser les atomes excités sur le niveau de Rydberg étudié. Après un retard de 2 μs, on applique un créneau de champ, cette fois surcritique, donc ionisant les atomes placés dans l'état de Rydberg. Les ions utiles arrivent ainsi sur le détecteur plus tard que ceux formant le fond continu. La porte de comptage peut être placée de manière à éviter que ces derniers soient comptés.

Par ce procédé, on élimine pratiquement tous les ions de photoionisation (β) . Une certaine proportion des ions parasites du type (α) est également éliminée. La sensibilité et le rapport signal sur bruit sont ainsi nettement améliorés.

Mais pour que cette séparation entre les ions utiles et les ions "parasites" soit efficace, leurs arrivées sur le détecteur doivent être séparées par un intervalle de temps suffisant. Pour ceci les tensions successivement appliquées doivent être légèrement souscritique pour le premier créneau et légèrement surcritique pour le second. En effet, si l'écart entre les deux valeurs est trop grand, les deux groupes d'ions (α et β d'une part, γ d'autre part) seront accélérés différemment et auront tendance à se rejoindre. Inversement, si l'écart est trop faible, une partie du signal utile sera perdu, soit que la valeur de la tension surcritique soit insuffisante pour provoquer une ionisation

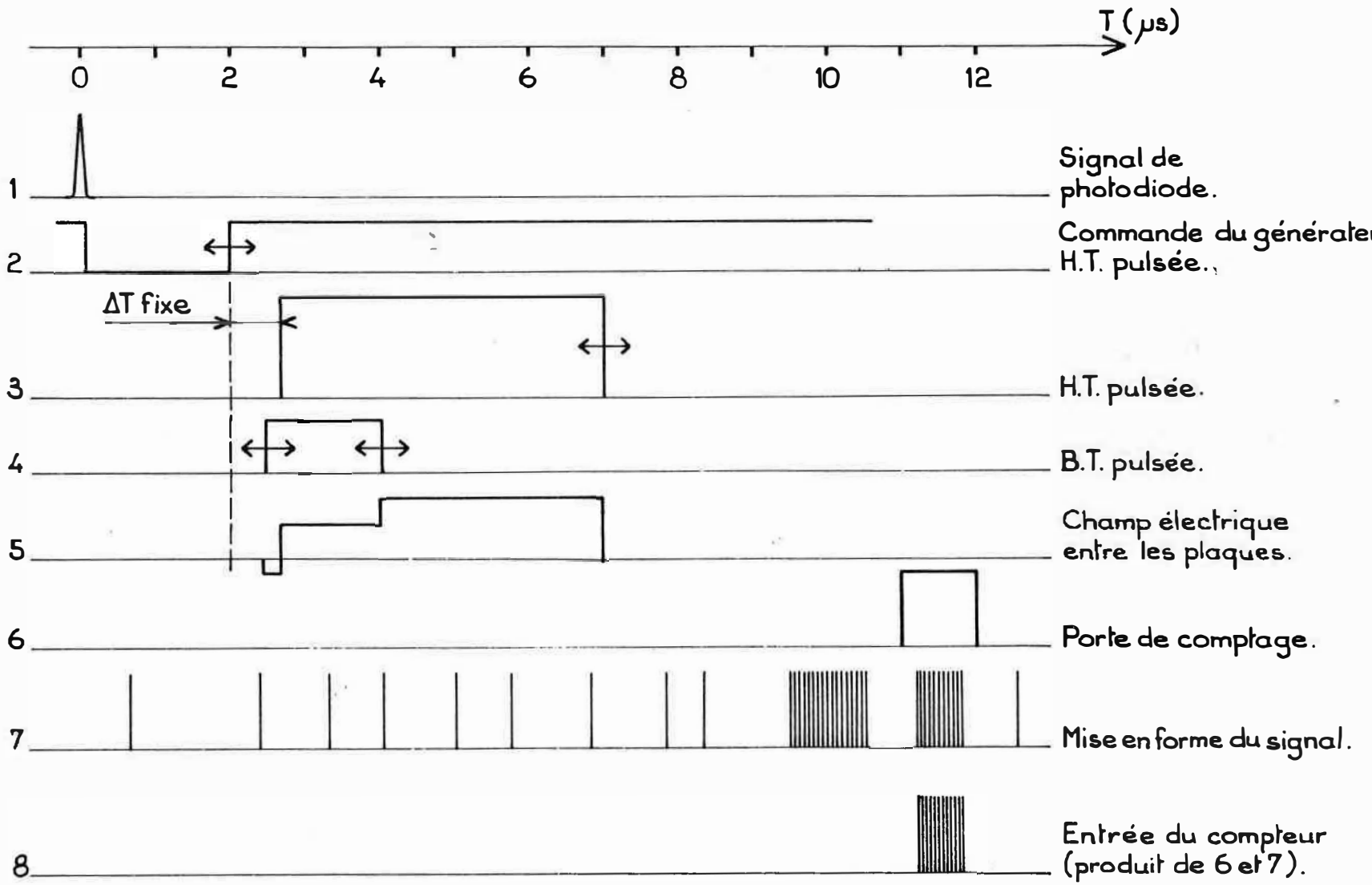


Figure 12 : Diagramme temporel des différentes fonctions électroniques.

efficace, soit que le champ souscritique soit trop proche de la valeur critique et puisse ioniser, par effet tunnel, une partie des atomes. Le réglage optimal a été obtenu pour un écart entre les deux tensions égal à 10% environ de la valeur critique.

b) Montage général.

La Fig. 3 montre les différents éléments ainsi que leurs connexions.

Une photodiode délivre un signal synchrone de l'impulsion laser (Fig. 12-1) . Après mise en forme, ce signal déclenche l'oscilloscope qui permet de visualiser au cours du temps la haute tension pulsée et les impulsions délivrées par le détecteur d'ions. Un système logique T.T.L. permet d'obtenir un front de déclenchement réglable en position dans le temps pour le générateur d'impulsions haute tension (cf. Fig. 12-2) ainsi qu'un créneau basse tension de durée et de position réglables.

Le double créneau de tension (souscritique puis surcritique) est obtenu à partir d'une impulsion haute tension (cf. Fig. 12-3) et du créneau basse tension amplifié (cf. Fig. 12-4) . La haute tension, positive, est appliquée sur la plaque inférieure tandis que la basse tension, également positive, est connectée à la plaque supérieure. Les retards et les durées de ces deux impulsions sont réglés de façon que le champ électrique dans la zone d'interaction soit de la forme désirée (cf. Fig. 12-5) .

Pour les tensions inférieures à 1,2 kV, la commutation de la haute tension est assurée par des composants électroniques spéciaux : des krytrons (E.G.G. KN22). Pour les amplitudes de tension supérieures il a fallu utiliser un thyratron (C.F.T.H. TH4C35). Les deux appareils utilisant ces composants ont été réalisés au laboratoire. La plage de commutation des krytrons est comprise entre un seuil de 400 V et le maximum de 1,2 kV . Pour obtenir des tensions inférieures au seuil,

on a utilisé un pont diviseur à capacités. On a pu ainsi couvrir toute l'étendue des tensions pulsées d'amplitude comprise entre 38 V et 1550 V.

Le compteur reçoit les impulsions du détecteur (cf. Fig. 12-7) . Ces impulsions sont mises en forme puis sont comptées pendant le temps d'ouverture de la porte de comptage (cf. Fig. 12-8) . Cette porte correspond à un signal, fourni par l'oscilloscope, synchrone de sa base de temps et réglable en position dans le temps et en durée. Pendant la durée d'ouverture de cette porte, la trace de l'oscilloscope est plus brillante, ce qui permet de la régler facilement. Pour s'affranchir des fluctuations de l'intensité du laser entre chaque impulsion successive, il est nécessaire d'intégrer le signal obtenu sur un grand nombre de coups. Le compteur a un temps d'intégration réglable suivant la fréquence de répétition du laser. On le fixe à 5s quand on utilise le premier laser pulsé à 15 Hz et à 3s lors de l'utilisation du laser monomode pulsé à 45 Hz.

En sortie du compteur, un convertisseur digital analogique délivre une tension continue proportionnelle au nombre d'ions comptés. Cette tension est ensuite enregistrée sur un enregistreur graphique dont le papier défile linéairement au cours du temps.

CHAPITRE II

Chapitre II

ETUDE DES CHAMPS CRITIQUES D'IONISATION - RESULTATS

Le but de cette expérience est de mesurer le champ critique (ε_c) d'ionisation pour chaque configuration (6snd) et de comparer le résultat obtenu avec la valeur calculée à l'aide de la loi classique (cf. I-A-2). Pour ceci, il faut donc disposer de deux informations : la valeur du champ critique du niveau que l'on considère et l'énergie de ce niveau (reliée simplement au nombre quantique principal effectif).

II-A RESULTAT DES MESURES - INCERTITUDES

II-A-1 MESURE DES CHAMPS CRITIQUES D'IONISATION.

La méthode généralement utilisée [7][12], pour mesurer le champ critique d'ionisation consiste à mesurer l'intensité de la résonance observée en fonction de la valeur du champ appliqué. En effet, le passage d'une valeur du champ surcritique, où 100% des atomes excités dans

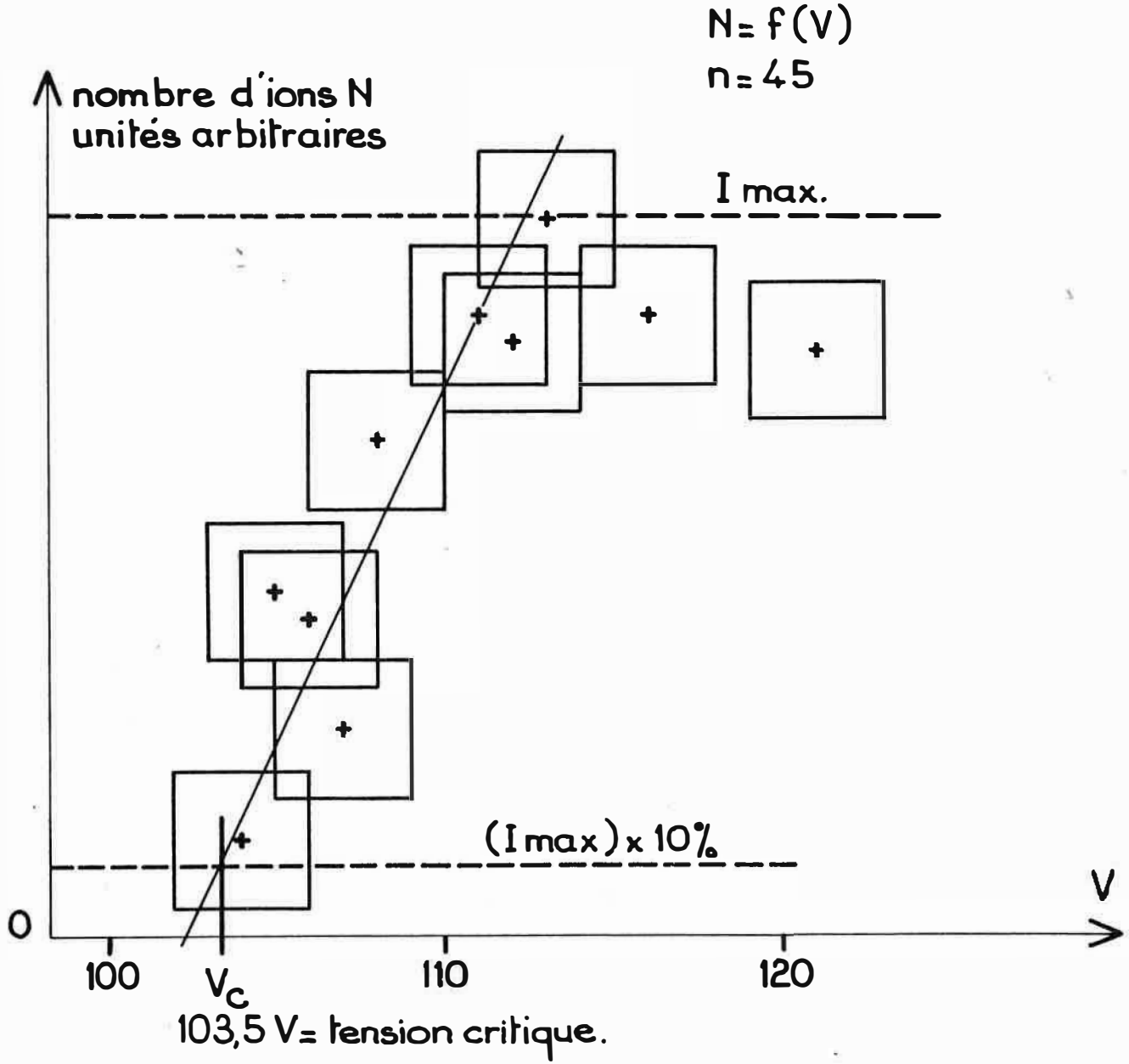


Figure 13 : Nombre d'ions comptés en fonction de la valeur de la tension appliquée pour la configuration 6s45d .

l'état de Rydberg sont ionisés, à une valeur souscritique se traduit par une variation du nombre d'ions observés.

On cherche tout d'abord à accorder la longueur d'onde du laser sur celle de la transition étudiée. A l'aide d'un spectromètre à réseau on se place au voisinage de la résonance (à quelques centaines de millikaisers près). Ce spectromètre est étalonné, en longueur d'onde, par interpolation linéaire entre deux raies intenses du néon (602,999 nm et 607,433 nm). Puis l'on fait varier continûment la longueur d'onde du laser jusqu'à ce que l'on observe la résonance sur les raies les plus intenses du spectre, c'est-à-dire celles associées aux isotopes pairs. Du fait du balayage du laser par variation de pression (I-B-3-b) , la longueur d'onde ne reste pas fixe, mais dérive au cours du temps. On enregistre alors par des balayages successifs le profil de la raie et on mesure la hauteur du maximum, ceci pour différentes valeurs du champ.

La courbe de la Fig. 13 illustre cette procédure sur le niveau n=45 . Sur cette figure on a porté en abscisse la valeur de la tension appliquée sur les plaques et en ordonnée l'intensité de la résonance observée, proportionnelle au nombre d'ions détectés.

La mesure de l'intensité est rendue plus difficile par la présence d'un fond continu d'ions parasites, dont la valeur peut être mesurée quand la longueur d'onde du laser n'est plus accordée à la résonance. Les amplitudes reportées sur la courbe sont mesurées par rapport au fond moyen (zéro de signal). Pour donner un ordre de grandeur, le rapport entre le signal maximum et le fond continu résiduel est de 10 environ.

Sur la courbe de la Fig. 13, on remarque que pour les valeurs du champ très supérieures au champ critique, l'intensité du signal observé décroît. En effet, quand le nombre d'ions formés augmente, les impulsions délivrées par le détecteur d'ions deviennent plus serrées et la probabilité pour que deux de ces impulsions ne soient pas séparées dans le temps augmente. Ces deux impulsions ne compteront alors que pour

un seul évènement. Cela se traduit par une "saturation" du compteur.

De plus, pour les valeurs du champ appliqué très proche de la valeur critique, le temps d'ionisation n'est pas négligeable devant la durée du créneau de champ électrique ; les impulsions sont alors réparties de manière assez uniforme sur toute l'étendue de la porte de comptage. Au contraire, quand le champ est nettement surcritique, l'ionisation est immédiate et les impulsions ont tendance à se grouper. Ce phenomène augmente, bien sûr, l'effet de "saturation" du comptage.

On remarque aussi, sur l'exemple choisi, que le saut d'une valeur de l'intensité nulle à l'intensité maximum se fait pour une variation de la tension de l'ordre de 10 V. Ceci introduit une part d'arbitraire dans la définition du champ critique. Nous avons pris la convention suivante : le champ critique est la valeur du champ pour laquelle on n'observe plus que 10% du signal maximum observé.

En fait la méthode qui vient d'être décrite n'a été utilisée que dans les premières expériences. En effet cette méthode a le désavantage d'être longue. Or, sur de longues périodes (plusieurs dizaines de minutes) le laser fluctue en intensité ainsi que la décharge. Les incertitudes sur les intensités de la résonance reportées sur le graphe de la Figure 13 représentent la dispersion observée au cours d'une même série d'enregistrements sur ces intensités. L'erreur relative pour des conditions optimales de fonctionnement est de 20% quand le signal est maximum. D'autre part, l'erreur donnée pour les différentes mesures de la tension est celle obtenue par rapport à une mesure absolue de la tension pulsée à l'oscilloscope (2%). Cette erreur se reporte entièrement sur la mesure du champ critique qui comporte en plus l'erreur sur la distance entre les plaques (2%) et l'erreur sur l'appréciation du maximum que l'on peut négliger.

Par la suite, on a préféré utiliser le processus suivant : on laisse le laser accordé sur la transition et l'on fait varier continûment

le champ électrique. Simultanément, on observe à l'oscilloscope les impulsions dues aux ions détectés. La valeur du champ critique est celle où 'lon observe sur l'écran une petite fraction seulement du signal obtenu avec un champ nettement surcritique.

Cette méthode peut paraître, a priori, moins précise que la précédente car l'appréciation de la disparition du signal est assez subjective. Mais des mesures répétées et effectuées par plusieurs observateurs donnent un bon résultat : la dispersion sur la mesure obtenue (1%) reste du même ordre de grandeur que l'incertitude faite sur la détermination de cette valeur par la première méthode (ceci a été vérifié en effectuant la mesure par les deux procédés sur 10 niveaux).

Finalement l'incertitude relative sur les mesures de champ critique, compte tenu des différents facteurs est de 5% que la mesure soit effectuée par la première méthode ou par la seconde.

II-A-2 DETERMINATION DES NOMBRES QUANTIQUES EFFECTIFS (n*) .

Lorsque la longueur d'onde du laser est résonnante, on mesure cette longueur d'onde sur le spectromètre à réseau. On en déduit le nombre d'ondes $\sigma = 1/\lambda$ (λ = Longueur d'onde dans le vide) qui, doublé, donne l'écart en nombre d'ondes associé à la transition. Connaissant l'énergie de l'état métastable de départ ($6s6p\ ^3P_0$; 17288,44 cm^{-1}) , et celle de la première limite d'ionisation (50443,20 cm^{-1}) on en déduit l'énergie E de l'état de Rydberg rapportée à cette limite, et la valeur du nombre quantique principal effectif n* : $n^* = \sqrt{-\frac{R}{E}}$.

Mais les incertitudes sur la longueur d'onde ne permettent pas de déterminer avec une grande précision la valeur de ce nombre quantique effectif pour les niveaux élevés. L'incertitude absolue sur l'énergie ainsi mesurée est, en effet, de 0,5 cm^{-1} environ. On en déduit l'incertitude sur la valeur de n* :

$$\Delta n^* = \frac{1}{2} \frac{n^*}{E} \Delta E = \frac{1}{2} \frac{(n^*)^3}{R} \Delta E \quad .$$

On remarque par cette formule que l'incertitude absolue sur n^* varie proportionnellement à $(n^*)^3$. Ainsi la mesure effectuée donne :

pour $n=24$ $\quad n^* = 21,26 \pm 0,02$

pour $n=53$ $\quad n^* = 50,3 \pm 0,3$.

La précision obtenue est suffisante pour les faibles valeurs de n^* (correspondant à : $24 \leqslant n \leqslant 33$), mais l'incertitude est trop importante pour les valeurs de n plus élevées. On a préféré alors utiliser, pour toutes les valeurs de n , les valeurs des énergies publiées par A. Débarre [5][6] dans le cadre de son étude sur les niveaux 6snd $^3D_2$ de l'ytterbium .

Ces niveaux sont en effet très proches des niveaux concernés par nos mesures de champ critique. L'écart 6snd $^3D_1$ - 6snd $^3D_2$ est au maximum de 70 mK (ceci est confirmé a posteriori par l'étude paramétrique exposée au Chapitre III-C). Cet écart est de l'ordre de grandeur de l'incertitude sur les valeurs des énergies des niveaux $^3D_2$. Ces valeurs sont, en effet, des valeurs théoriques obtenues par la méthode M.Q.D.T. (Multi Channel Quantum Defect Theory) et dans le domaine d'énergie où ces valeurs théoriques peuvent être confrontées à des données expérimentales l'écart quadratique moyen entre théorie et expérience est de 100 mK .

La mesure effectuée au spectromètre ne sert donc plus qu'à identifier le nombre quantique principal du niveau que l'on considère.

II-B RESULTATS EXPERIMENTAUX ET INTERPRETATION

II-B-1 RESULTATS.

On a reporté dans le Tableau I les différentes valeurs des champs critiques mesurés en fonction de la valeur du nombre quantique effectif (n^*) correspondant. Les mesures ont été effectuées de $n=24$ à $n=57$ dans la série de Rydberg $6snd\ ^3D_1$.

Dans la dernière colonne de ce tableau, on compare la valeur mesurée (ε_c) à la valeur théorique (ε_t) obtenue par la loi classique en $(n^*)^{-4}$ donnée au paragraphe (I-A-2). Pour ceci on donne le rapport α entre la valeur mesurée et la valeur théorique :

$$\alpha = \frac{\varepsilon_c}{\varepsilon_t} = \varepsilon_c \times 16(n^*)^4 \qquad \text{(en unités atomiques).}$$

La courbe tracée à la Figure 14 illustre ces résultats. Les incertitudes sur la valeur de α sont données sur cette courbe. La valeur moyenne de α obtenue $(\langle\alpha\rangle)$ est 1.01 .

Des mesures du champ critique d'ionisation ont aussi été effectuées dans le cadre de l'expérience à haute résolution sur les différentes composantes de la structure des états de Rydberg. Une valeur identique a été trouvée pour toutes les composantes de chaque structure. En particulier, les composantes associées aux isotopes impairs du niveau $n=26$ sont perturbées par le niveau de valence $4f^{13}5d6s6p\ ^1D_2$ alors que celles dues aux isotopes pairs ne sont pas affectées par cette perturbation (cf. III-C-3). Néanmoins, même dans ce cas le champ critique est identique, à la précision des mesures près, pour toutes les composantes, y compris celles dont la position est modifiée par la perturbation.

TABLEAU I

n	n*	ε_c incertitude 5%	α
24	21,26 ± 0,02	1550	0,99
25	22,26 ± 0,02	1360	1,04
26	23,26 ± 0,02	1110	1,01
27	24,26 ± 0,02	940	1,01
28	25,26 ± 0,05	810	1,03
29	26,26 ± 0,05	674	1,00
30	27,26 ± 0,05	580	1,00
31	28,26 ± 0,05	502	1,00
32	29,26 ± 0,05	420	1,04
33	30,3 ± 0,1	375	1,03
34	31,3 ± 0,1	339	1,00
35	32,3 ± 0,1	298	1,01
36	33,3 ± 0,1	275	1,04
37	34,3 ± 0,1	240	1,02
38	35,3 ± 0,1	210	1,01
39	36,3 ± 0,1	189	1,01
40	37,3 ± 0,1	172	1,03

Valeur du champ critique d'ionisation (ε_c)
en fonction du nombre quantique effectif (n) .

TABLEAU I (suite)

n	n*	ε_c incertitude 5%	α
41	38,3 ± 0,1	156	1,03
42	39,3 ± 0,1	141	1,04
43	40,3 ± 0,15	127	1,03
44	41,3 ± 0,15	115	1,03
45	42,3 ± 0,15	103,5	1,02
46	43,3 ± 0,15	92	1,00
47	44,3 ± 0,20	82,5	0,98
48	45,3 ± 0,20	75	0,98
49	46,3 ± 0,20	71	1,01
50	47,3 ± 0,25	65	1,01
51	48,3 ± 0,25	59,5	1,00
52	49,3 ± 0,25	56	1,02
53	50,3 ± 0,3	51	1,01
54	51,3 ± 0,3	47	1,01
55	52,3 ± 0,3	44	1,02
56	53,3 ± 0,35	41	1,02
57	54,3 ± 0,35	38	1,02

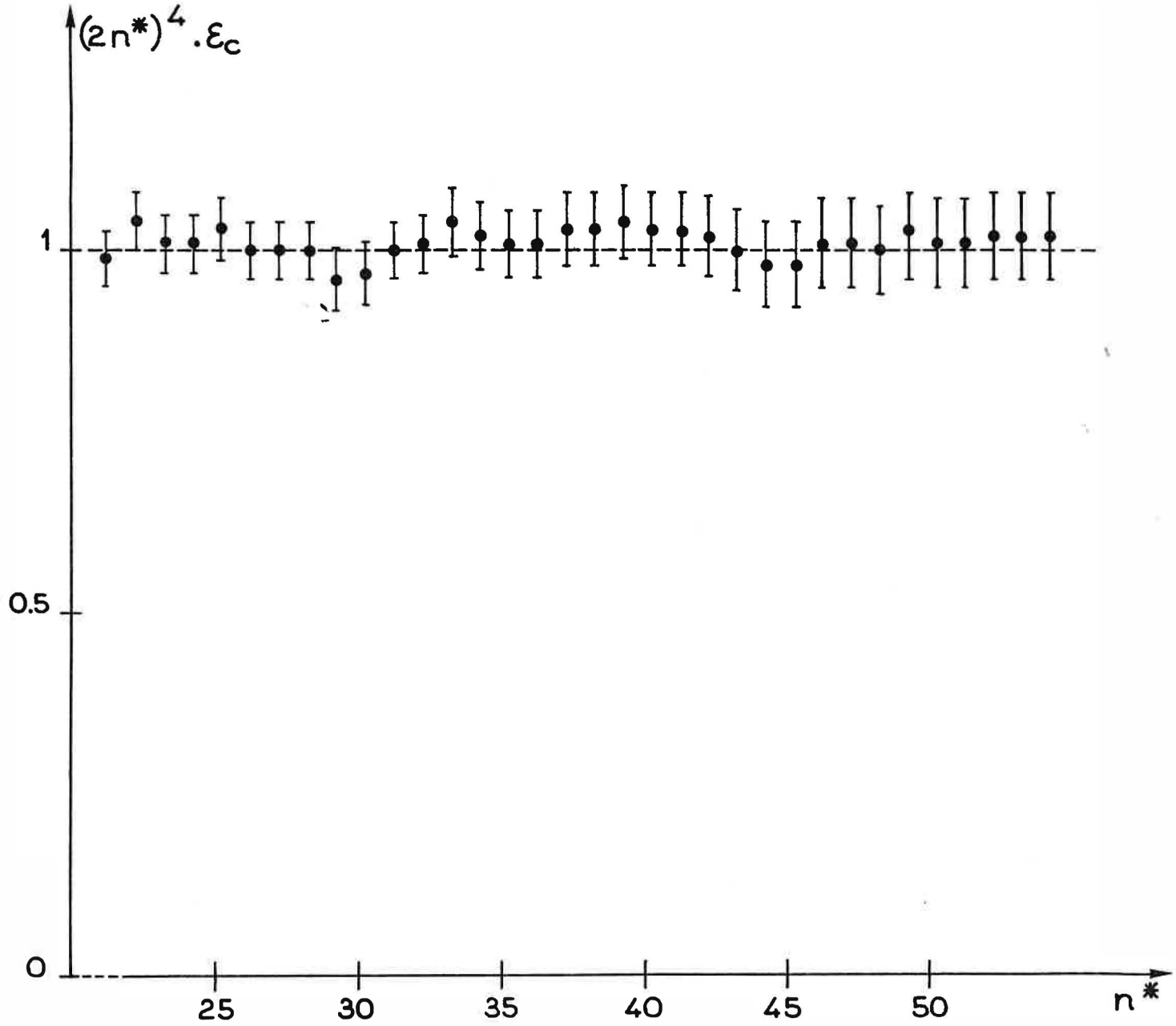


Figure 14

II-B-2 INTERPRETATION ET COMMENTAIRES.

L'accord entre la loi classique, en $(n^*)^{-4}$, et l'expérience est très bien réalisé, tout au long de la série, comme le montre la Figure 13. Cette loi ne fait que traduire une analyse non quantique du processus d'ionisation par champ et cependant rend compte de manière, en général, très satisfaisante des résultats des mesures de champ critique, comme c'est le cas dans le rubidium [7] ou comme cela vient d'être montré dans le cas de l'ytterbium.

Mais cette loi classique ne suffit pas à rendre compte de la réalité physique du phénomène : la courbe de la Figure 13 montre une évolution continue quand le champ varie de part et d'autre de la valeur critique, alors que la théorie classique prévoit un saut brutal de l'intensité du signal. Pour comprendre ce phénomène il faut analyser le problème quantiquement : on ne peut plus alors parler strictement de seuil critique d'ionisation, car un électron dont l'énergie est sous-critique a la possibilité de franchir la barrière de potentiel par effet tunnel. On remarque ainsi que pour un atome soumis à un champ électrique, aucun état n'est rigoureusement stable. Il est préférable alors d'analyser le problème en terme de durée de vie.

Pour une valeur du champ nettement inférieure à la valeur critique (ε_c) la durée de vie de l'atome neutre est très longue (i.e. la probabilité d'ionisation est très faible) et l'on peut considérer, par rapport à l'échelle de temps de l'expérience (la microseconde), que ces niveaux sont stables. Lorsque le champ est de l'ordre du champ critique, cette durée de vie varie brusquement et pour une valeur du champ nettement supérieure à ε_c l'ionisation est très rapide.

Il faut alors comprendre l'expérience ainsi : dans le processus expérimental représenté à la Figure 11-b, on applique sur les plaques une tension successivement sous-critique $(V_A < V_C)$ pendant 2 µs, puis surcritique $(V_B > V_C)$ pendant 2 µs .

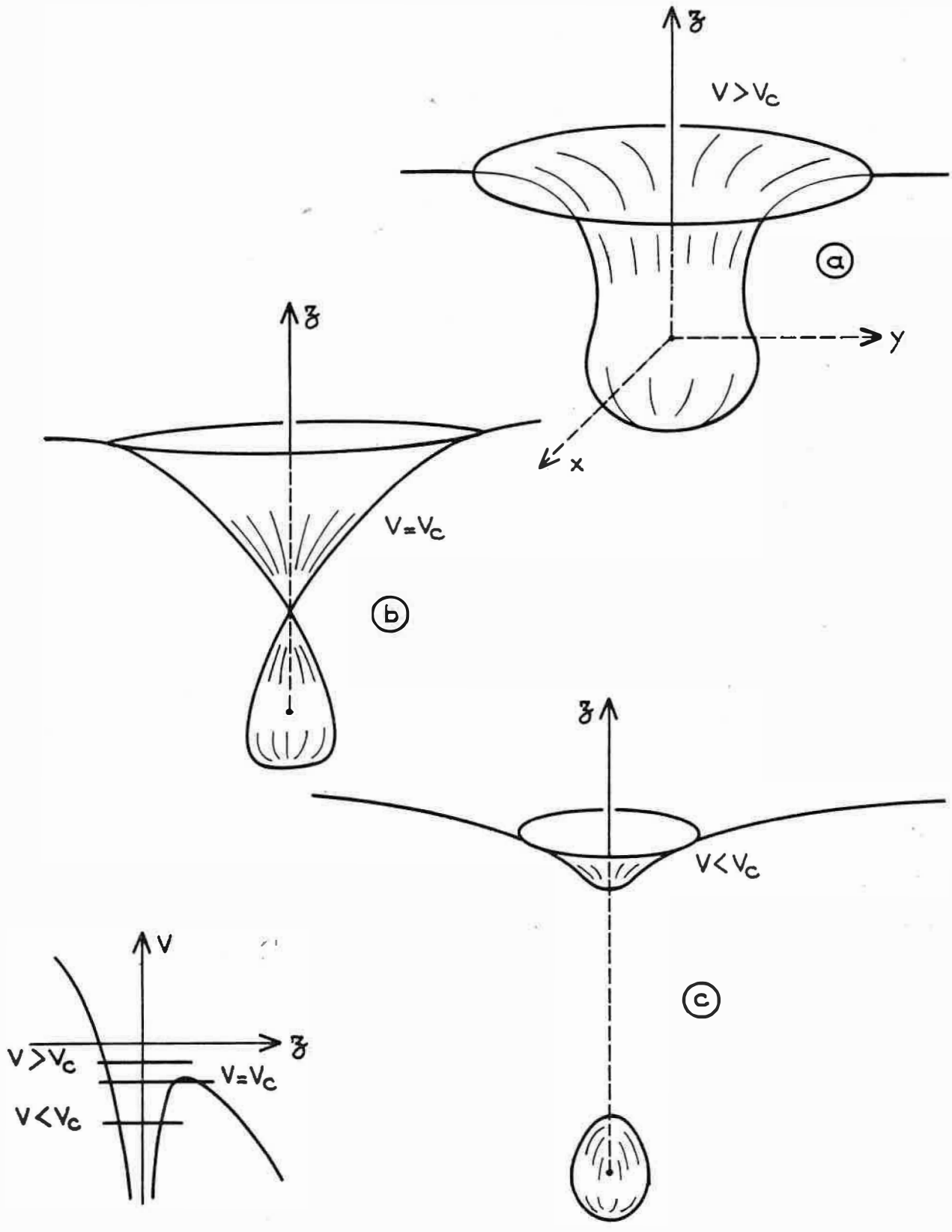


Figure 15

Représentation schématique des surfaces équipotentielles
dans un atome hydrogénoïde soumis à un champ électrique extérieur.

Les ions comptés correspondent alors à des atomes neutres dont la durée de vie en champ nul est très longue. En présence d'un champ légèrement sous-critique (correspondant à la tension V_A) cette durée de vie reste supérieure à 2 µs ; elle devient très inférieure à 2 µs en présence du champ surcritique (correspondant à la tension V_B).

Si maintenant l'on enregistre l'amplitude du signal en fonction de la valeur de la tension maximale appliquée (V_B) , on observe donc le passage d'une durée de vie supérieure à 2 µs, à une durée de vie inférieure à 2 µs.

L'étude de l'ionisation par champ est étroitement liée à l'étude de l'effet Stark en présence d'un champ de l'ordre de grandeur de la valeur critique. Des études à la fois théorique [7] et expérimentale [7] [14] ont été réalisées sur le rubidium.

Les résultats expérimentaux mettent en évidence les différences de durée de vie suivant les valeurs du nombre quantique $|m_\ell|$ des niveaux atteints (i.e. suivant la polarisation du laser).

Sur la Figure 15, on a représenté les surfaces équipotentielles correspondant à un potentiel supérieur (a), égal (b) et inférieur (c) à la valeur critique V_C . On remarque sur la Figure 15-a que la probabilité d'ionisation sera plus faible pour un électron dont la densité de probabilité de présence est située principalement dans le plan xOy , que pour un électron dont la densité de probabilité de présence est maximale suivant la direction Oz .

Pour un atome à un électron optique excité à partir d'un état s ($\ell=0$) , suivant la polarisation du laser l'électron sera placé dans l'une ou l'autre de ces situations : en polarisation σ (polarisation rectiligne perpendiculaire à la direction du champ) on atteint des états de $|m_\ell| = 1$, pour lesquels la densité de probabilité de présence est concentrée au voisinage du plan xOy , en polarisation π (polarisation

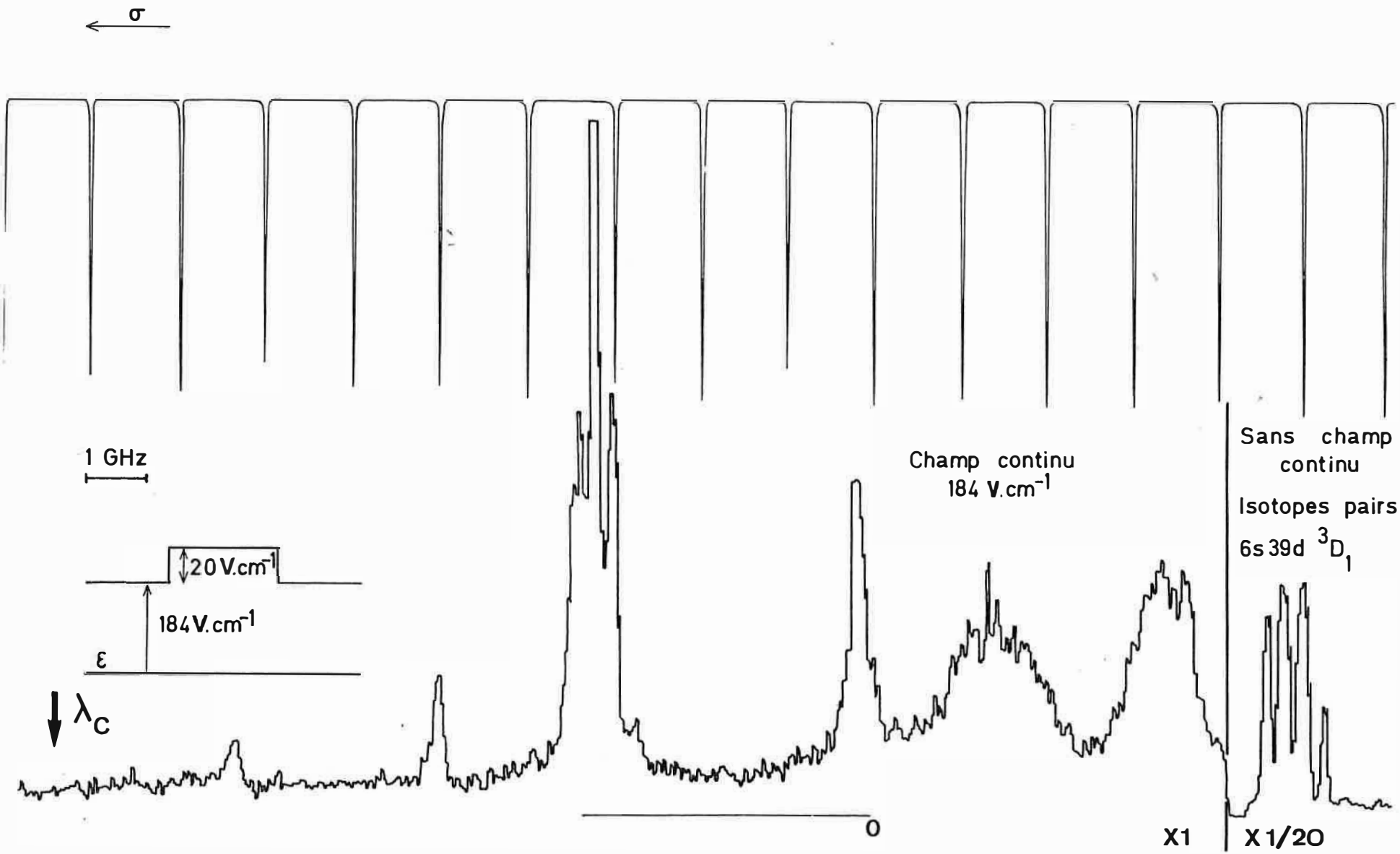


Figure 16 : Enregistrement du spectre obtenu en présence d'un champ continu.

parallèle à la direction du champ) on atteint les niveaux pour lesquels $m_\ell=0$ dont la densité de probabilité de présence est concentrée au voisinage de l'axe Oz .

On obtiendra donc deux sortes de spectres : en polarisation σ un spectre présentant des résonances étroites du fait de la longue durée de vie de l'état excité, en polarisation π on doit observer un continuum seulement.

II-B-3 ENREGISTREMENT DES STRUCTURES EN PRESENCE D'UN CHAMP CONTINU.

On a tenté de reprendre l'expérience décrite à la fin du chapitre précédent dans le cas de l'ytterbium. La principale difficulté expérimentale vient du fait que l'intensité initialement concentrée sur les niveaux en champ nul est répartie sur toutes les composantes Stark. Les intensités observées seront donc très faibles.

Pour avoir une référence d'énergie précise, on cherche tout d'abord une résonance en champ continu nul et on enregistre les composantes associées aux isotopes pairs de la configuration que l'on considère (cf. Fig. 16). On applique ensuite entre les plaques un champ d'une valeur inférieure à la valeur critique ainsi qu'un faible champ pulsé, synchronisé avec l'impulsion laser et retardé d'environ 2 µs afin d'ioniser les états stables en présence du champ continu (cf. Fig. 16), ceci sans arrêter le balayage du laser pour garder la référence en énergie.

Dans une première partie de l'expérience, on compte les ions dus à la présence de ce champ pulsé. On enregistre alors, comme cela est montré à la Figure 16, une structure Stark. On remarque sur cet enregistrement que certains niveaux observés donnent une structure proche de la structure observée sans champ. Ceci a été observé pour différentes valeurs du champ continu appliqué (182 $V\text{-}cm^{-1}$, 183 $V\text{-}cm^{-1}$ et 184 $V\text{-}cm^{-1}$).

Quand le nombre d'ondes du laser est suffisamment grand pour qu'on atteigne les états d'une énergie supérieure à la limite E_c correspondant, par la loi classique en $(n^*)^{-4}$, au champ continu appliqué (ce nombre d'onde est noté σ_c à la Figure 16), ce dernier suffit à ioniser les atomes. Du fait du retard de 2 µs entre l'application du champ pulsé et l'impulsion laser on n'observe plus d'ions durant l'ouverture de la porte de comptage mais, par contre, on observe les ions formés par le champ continu, 2 µs plus tôt, dès le passage de l'impulsion laser. Si l'on règle l'ouverture de la porte de comptage au moment de l'arrivée de ces ions on enregistre une structure.

L'expérience réalisée en polarisation σ montre, comme cela a été observé dans le cas du rubidium, des résonances étroites (d'une largeur inférieure à 10 mK). Le principal problème dans les enregistrements de ce type vient de la présence de photoionisation à partie des états métastables supérieurs à l'état $6s6p\ ^3P_0$ (cf. Figure 1). Ce fond de photoionisation rend très difficile l'observation des résonances (très faibles).

On a donc montré que cette expérience était réalisable par ce processus expérimental. Mais, pour procéder à une étude plus complète de la structure Stark ou du continuum créé par le champ électrique continu, il serait souhaitable de modifier le principe de l'excitation en procédant à une excitation à deux étages. Un premier laser continu permettrait, à partir du niveau fondamental $6s^2$, d'atteindre l'état $6s6p\ ^3P_1$ (17992,02 cm^{-1}) puis une seconde excitation par le rayonnement du laser monomode pulsé utilisé permettrait d'atteindre les états de Rydberg.

Cette solution a l'avantage d'éliminer complètement le fond parasite dû aux ions créés par la décharge ainsi que les ions de photoionisation à partir des états métastables (situés à 19710,39 cm^{-1} et 23188,52 cm^{-1}) que l'on ne peut éliminer quand on enregistre un champ continu seul.

CHAPITRE III

Chapitre III

ETUDE EXPERIMENTALE ET THEORIQUE DE LA STRUCTURE DES ETATS DE RYDBERG $6snd\ ^3D_1$ DE L'YTTERBIUM

L'expérience réalisée consiste à mesurer les écarts d'énergie entre les différentes composantes de la structure des états de Rydberg appartenant à la série $6snd\ ^3D_1$, ainsi que leurs intensités relatives. Après avoir décrit le procédé de mesure (III-A-1), on examine ensuite les incertitudes de chacune de ces mesures. La deuxième partie de ce chapitre (III-B) porte sur l'étude paramétrique des niveaux observés. Les résultats de cette étude sont donnés et commentés dans le chapitre (III-C).

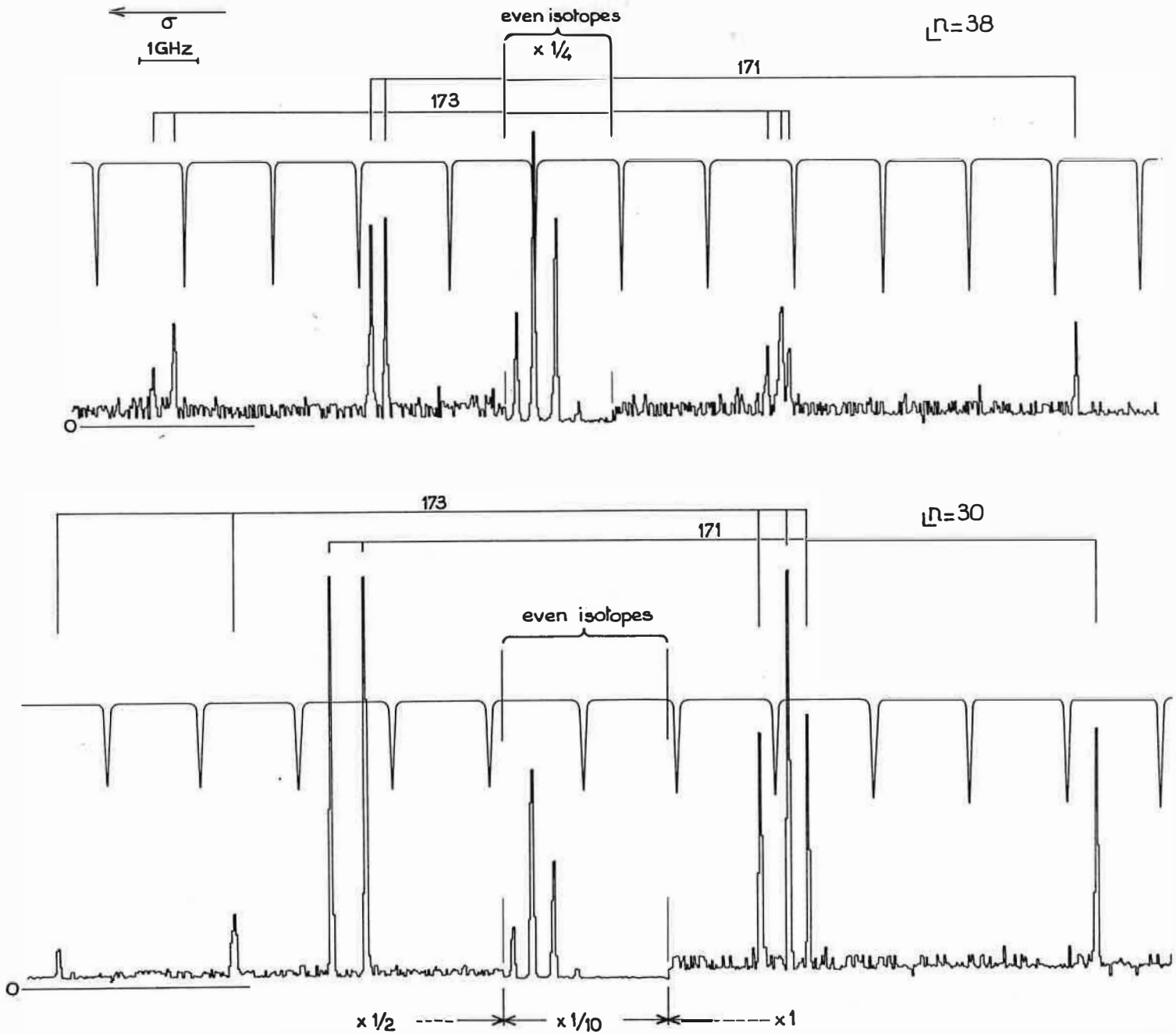


Figure 17 : Enregistrement de la structure des configurations 6s38d et 6s30d .

III-A RESULTATS EXPERIMENTAUX

III-A-1 ENREGISTREMENT DES STRUCTURES.

Dans cette expérience on enregistre graphiquement au cours du temps le nombre d'ions comptés pendant que l'on fait varier de manière continue la fréquence du laser. Lorsque le laser est accordé sur une transition entre l'état métastable de départ ($6s6p\ ^3P_0$) et l'état de Rydberg choisi, une partie des atomes est excitée. L'intensité de la transition correspond au nombre d'atomes excités.

Le processus d'ionisation est celui représenté à la Figure 10-b et décrit dans le paragraphe I-B-5. La durée d'un enregistrement est de 30 mn environ, la structure s'étendant sur un intervalle spectral de 600 mK. Le balayage du laser est assez lent (20 mK/mn) pour fournir un nombre de points suffisant (7) sur la largeur des résonances, le temps d'intégration étant de 3 s et la largeur à mi-hauteur des raies de 2 mK en moyenne.

Deux enregistrements typiques sont donnés comme exemple à la Figure 17. Le premier correspond à la configuration $6s38d$, le second à la configuration $6s30d$.

Comme on peut le remarquer sur ces enregistrements, le rapport des intensités de la raie la plus forte et de la raie la plus faible est de l'ordre de 30. Pour avoir une meilleure précision lors du pointé de chaque raie, on modifie le gain de l'amplificateur de l'enregistreur graphique en conséquence. De même la vitesse de défilement du papier est choisie de façon à réduire l'erreur de pointé (20 mm/mn).

III-A-2 MESURE DES ECARTS D'ENERGIE ENTRE COMPOSANTES - RESULTATS EXPERIMENTAUX.

Sur les enregistrements donnés à la Figure 17 on reconnaît immédiatement, au centre de la structure, les résonances associées aux quatre-isotopes pairs les plus abondants, séparées par le déplacement isotopique. Les intensités relatives de ces raies permettent d'identifier les 4 isotopes pairs connaissant leur abondance relative dans le mélange naturel utilisé (cf. §.I-A-1). On a ainsi dans l'ordre des énergies croissantes les composantes correspondant aux isotopes de nombres de masse : 170, 172, 174 et 176. Comme le montre le facteur d'échelle, ces raies sont très intenses. Ceci se comprend bien puisque les niveaux associés à ces isotopes ne sont pas affectés par la structure hyperfine (I=0) de sorte que toute l'intensité associée à la transition $6s6p\ ^3P_0 \rightarrow 6snd\ ^3D_1$ est concentrée sur une seule résonance. Ces quatre raies apparaissent de la même manière sur tous les enregistrements.

Les autres raies du spectre correspondent aux isotopes de nombres de masse 171 et 173 .

Pour comparer les structures correspondant à des niveaux différents il est nécessaire de donner les positions des composantes par rapport à l'une d'elle choisie comme origine. Le repère d'énergie choisi pour chaque enregistrement est la raie associée au dernier isotope pair ^{176}Yb.

Le pointé d'une raie du spectre est réalisé ainsi : on repère la position de la raie entre les pics de transmission du Fabry-Perot sphérique et l'on en déduit par interpolation linéaire l'écart entre nombre d'onde entre la raie et une des franges entourant cette raie. En additionnant les valeurs obtenues pour deux raies et le nombre d'onde associé au nombre entier d'interfrange les séparant, on obtient l'écart en énergie entre ces deux raies.

TABLEAU II

n	Position des différentes raies observées (mK)																			
	+				+			+			Ref.		-			-			-	
24					215,2	208,7		110,3	78,3		0	10,8	23,1	35,3		120,1	143,5	156,5		296,0
25					206,9	200,4		103,6	75,4		0	9,8	20,2	34,0		116,1	138,2	152,8		292,8
26			208,2	203,6				79,3	35,0		0	11,2	21,9	35,1		157,8	160,5	163,2		346,2
27					190,7			105,0	76,7		0	11,0	20,8	33,5		119,5	142,4	155,2		292,4
28				287,8	177,0			98,7	75,9		0	10,3	20,7	34,5		122,4	141,4	153,2		296,5
29			306,5	255,5	162,5			97,0	76,3		0	9,5	18,5	32,5		126,1	141,3	152,2		297,9
30			285,3	239,5	146,2			94,2	76,4		0	10,3	21,6	33,6		130,4	144,6	154,6		303,5
31			259,2	221,7	129,1	119,1		89,7	75,1		0	10,2	20,6	33,1		131,4	145,8	154,2		305,6
32	273,1	243,0	213,7		106,1	98,5		89,4	75,0		0	10,9	20,9	33,6		135,6	147,6	155,0		307,9
33	259,5	236,1	210,4					91,8	78,8		0	10,1	21,27	32,98		137,8	148,4	155,3		312,9
34	250,0	229,0	207,7					89,3	77,8		0	9,8	20,9	33,3		140,3	150,9	158,3		318,0
35	242,2	223,2	204,7					86,8	75,1		0	9,6	20,5	33,4		139,9	149,8	156,4		314,5
38	218,5	206,8	195,1					82,7	74,6		0	11,1	23,2	36,1		145,0	153,0	157,3		323,0
43	208,0	201,1	194,0					80,9	76,1		0	11,0	21,0	35,1		148,8	154,9	157,8		333,3
48		206,2	200,8					85,0	79,9		0	11,5	22,0	35,2		157,5	161,6	163,4		344,9
53			187,9						76,0		0	10,6	21,5	33,1			151,6			

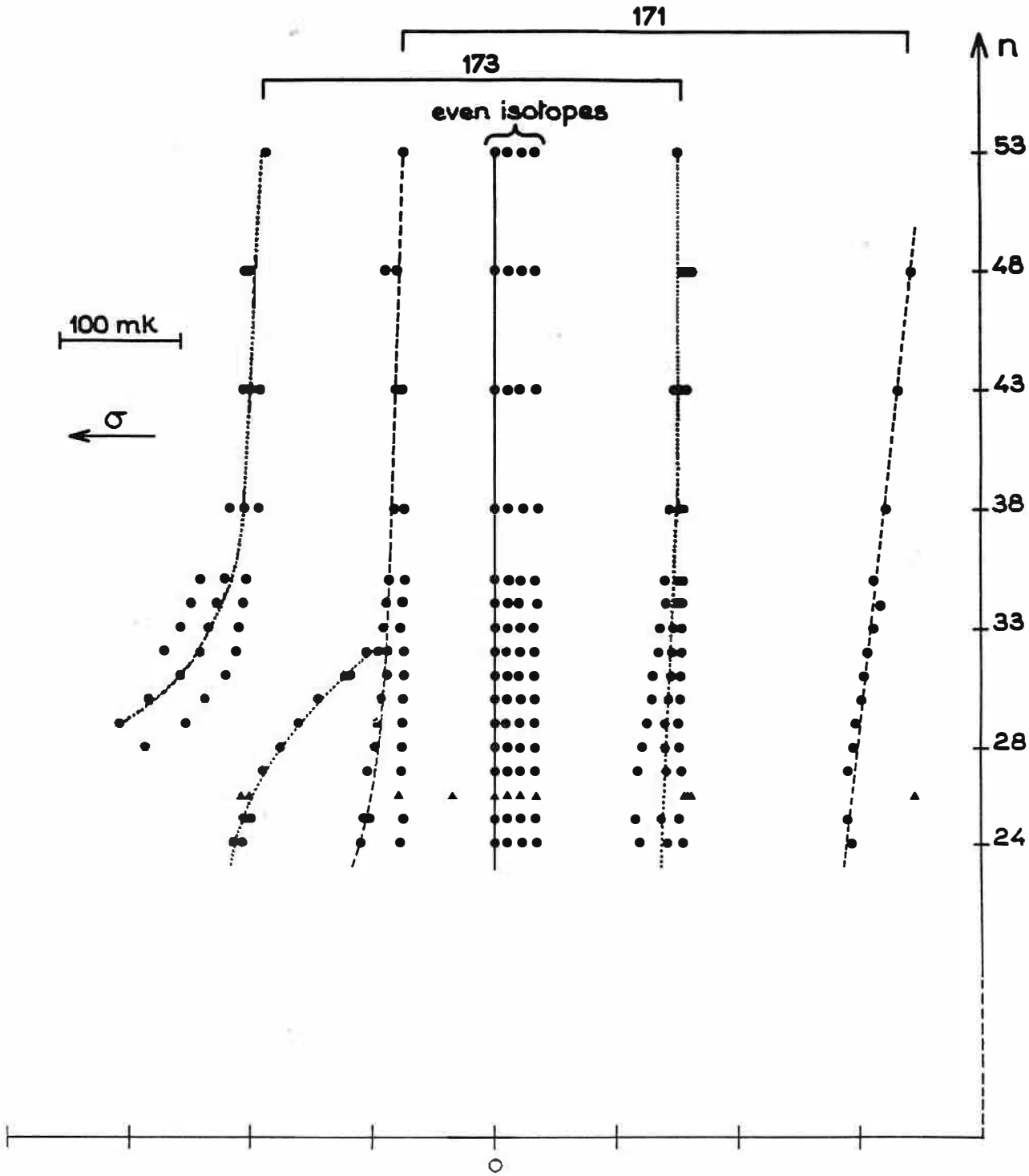


Figure 18

Position en énergie des résonances pour toutes les configurations observées.

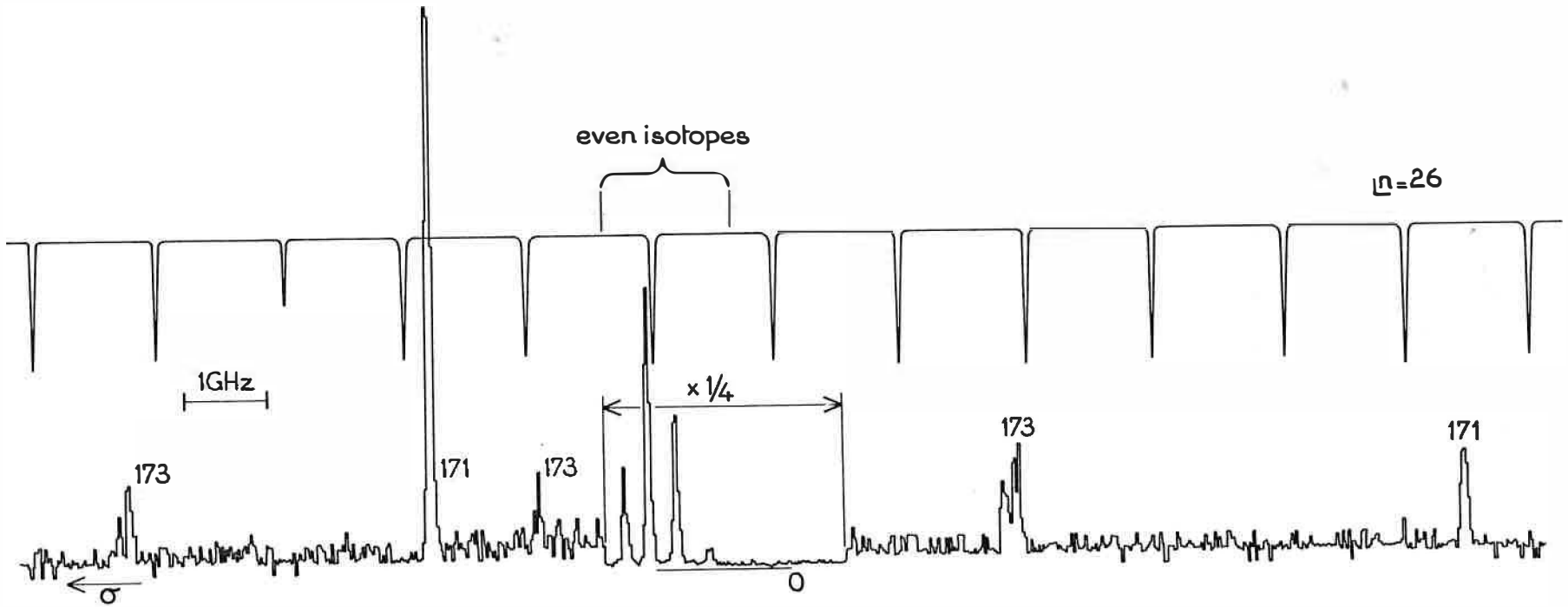


Figure 19

Enregistrement de la configuration 6s26d .

Le Tableau II donne les valeurs numériques des positions des résonances observées, en fonction du numéro de l'état de Rydberg. Ces valeurs correspondent à la moyenne des valeurs obtenues sur plusieurs enregistrements (2 à 4). Dans ce tableau, on a séparé les différents groupes de raies, comme ils apparaissent à l'enregistrement. La Figure 18 illustre les résultats de ce tableau : on donne le pointé de chaque raie en fonction du niveau observé. L'affectation aux différents isotopes sera discutée dans le paragraphe III-B-1.

Comme le montre l'analyse du paragraphe III-B-3 , sur les ordres de grandeur des différentes interactions, il faut, pour observer une modification de la structure, enregistrer les spectres des configurations situées de part et d'autre de n=30 . Sur ces indications on a enregistré les niveaux entre n = 24 et 53. Entre n = 24 et 35 chaque configuration a été étudiée afin de suivre l'évolution de la structure. Puis, pour les valeurs de n plus grandes, la structure se modifie peu et seules les configurations (6snd) n = 38, 43, 48 et 53 ont été enregistrées plusieurs fois afin de faire des mesures de structure hyperfine. On a simplement vérifié sur les autres valeurs de n que la structure est proche de celle de ces niveaux. En particulier on a pu constater ainsi qu'il n'existait pas de perturbation de la série (6snd) entre n = 35 et 53.

On remarque immédiatement sur la Figure 18 que la configuration n=36 est perturbée car sa structure est très différent de cette des configurations n=26 et n=27 . La Figure 19 donne le spectre enregistré de cette configuration. L'analyse de cette perturbation est faite au paragraphe III-C-3.

III-A-3 INCERTITUDES SUR LA MESURE DES ECARTS D'ENERGIE ENTRE COMPOSANTES.

L'incertitude sur la mesure des écarts en énergie entre composantes est la somme des incertitudes sur la détermination des positions de chaque composante. Ces incertitudes proviennent de plusieurs sortes d'erreurs possibles. On distingue principalement :

- les incertitudes sur le pointé des raies et des franges,
- les incertitudes dues à la non-linéarité du balayage en fréquence du laser.

Un ordre de grandeur de l'incertitude totale sur la mesure des écarts d'énergie est donné en comparant les différents enregistrements (4) d'un même niveau, correspondants à des réglages différents, et en regardant la dispersion de ces mesures. Les valeurs obtenues successivement sont comprises dans un intervalle de 6 mK au maximum centré sur la valeur moyenne.

On peut estimer la part d'incertitude introduite dans le pointé des raies : cette erreur varie avec l'intensité de la résonance ; on trace l'axe de la raie avec moins de précision pour une raie d'intensité faible que pour une raie intense. Ainsi l'incertitude sur la position de l'axe d'une raie (δb) varie de 0,25 mm à 0,5 mm ; d'autre part, celle sur la position des axes des franges est fixée à 0,25 mm. Un calcul simple montre que l'incertitude $d(\Delta_\sigma)$ sur l'écart en nombre d'ondes Δ_σ est :

$$d(\Delta_\sigma) = 2 \frac{(\delta a + \delta b)}{L} \Delta_\sigma$$

(L est de l'ordre de 50 mm).

On a donc une incertitude comprise entre 1 et 1,5 mK, uniquement due au pointé de chaque raie sur le papier enregistreur.

L'incertitude due à la non-linéarité du balayage est plus difficile à estimer. Le balayage se fait en appliquant une tension en dent de scie sur une céramique placée sur le miroir de sortie de la cavité (cf. I-C-3). La réponse de cette céramique à la tension appliquée n'étant pas linéaire, l'interfrange n'est donc pas balayé en fréquence à vitesse constante, ce qui introduit une erreur possible lors de l'interpolation linéaire.

D'autre part, l'amplitude de la dent de scie est ajustée de façon à balayer un nombre entier de modes du Fabry-Perot intracavité. Mais lors du passage du maximum au minimum de la tension, la fréquence n'est pas forcément exactement la même pour les deux positions du miroir.

On peut avoir une idée de l'ordre de grandeur de l'incertitude totale due à la non-linéarité du balayage en comparant les interfranges successifs obtenus pour un balayage sur un grand intervalle (1,5 cm^{-1}). La valeur de l'interfrange est 50 ± 2 mm. L'incertitude relative est donc certainement inférieure à 5% (incertitude absolue de l'ordre de 1,5 mK).

Dans le cas des mesures de l'écart en nombre d'onde entre les résonances associées aux isotopes pairs (mesure du déplacement isotopique), l'intensité totale est plus faible. En effet ces raies sont très proches l'une de l'autre ce qui réduit l'incertitude due à la non-linéarité du balayage et d'autre part ces raies sont très intenses ce qui réduit l'incertitude sur le pointé.

Les résultats obtenus pour le déplacement isotopique entre les composantes de nombre de masse pair sont donnés au paragraphe III-B-2. La précision sur ces résultats est encore meilleure, car les valeurs données résultent de la moyenne sur les mesures faites sur toutes les configurations enregistrées (16). Cette erreur peut être fixée à 1 mK. Les résultats faisant intervenir un isotope impair sont issus de l'analyse par la méthode paramétrique. On ne peut donc estimer directement

l'incertitude sur ces valeurs, mais on peut raisonnablement la fixer à celle obtenue dans le cas des isotopes pairs.

III-A-4 MESURE DES INTENSITES RELATIVES DES COMPOSANTES. INCERTITUDES.

Les intensités sont mesurées par rapport au fond moyen, à l'emplacement de la raie, sur l'enregistrement. Ces intensités observées ne sont pas rigoureusement comparables. Ceci est dû à plusieurs facteurs.

Tout d'abord le phénomène de "saturation" du compteur, évoqué au paragraphe II-A-1 est encore sensible et, d'autre part, il existe des fluctuations aléatoires dues principalement aux variations d'intensité du laser et de la décharge.

a) Saturation du comptage des ions.

Par exemple les intensités relatives des résonances associées aux isotopes pairs ne sont pas dans le rapport de leur abondance dans le mélange naturel utilisé (toutefois l'ordre des abondances isotopiques est conservé). Mais l'on n'observe pas une diminution du signal de sortie du compteur quand le nombre d'ions devient trop élevé (ceci conduirait à un dédoublement des raies), comme dans la mesure des champs critiques (cf. Fig. 13). En effet la collimation étant plus forte, on compte, ici, un moins grand nombre d'ions.

Au cours du balayage la saturation augmente au fur et à mesure que l'on se rapproche du maximum de la résonance. Les raies saturées auront donc une largeur à mi-hauteur plus importante que les raies non saturées. Avec ce critère, on remarque que ce phénomène n'est pas toujours négligeable sur les raies les plus intenses associées aux isotopes impairs. Pour éviter cet inconvénient il faudrait remplacer le procédé digital de comptage d'impulsions par l'intégration du courant de sortie du

détecteur pendant la durée d'ouverture de la porte temporelle correspondant au temps de comptage. Ce dispositif a eu un début de réalisation mais n'a pas encore été essayé expérimentalement.

b) Fluctuations d'intensité du laser.

Les impulsions de lumière délivrées par le laser ne sont pas constantes en intensité dans le temps. On observe des variations de cette intensité entre chaque impulsion, dues surtout aux fluctuations de l'intensité du laser de pompe YAG. Ces variations sont amplifiées au moment du doublage en fréquence, car la réponse en intensité du cristal doubleur est quadratique (cf. le dispositif expérimental §.I-C-4 .

Mais ces variations sont compensées par une intégration du nombre d'ions formés sur 150 impulsions de laser (temps d'intégration de 3 s). Seules sont donc à prendre en compte les variations lentes de cette moyenne : le rendement du doublage en fréquence dans le cristal non linéaire est fonction de la longueur d'onde, pour une température du cristal fixée. Au cours du balayage la température est constante, on a donc une lente variation de l'intensité du faisceau ultraviolet obtenu.

Une mesure de ces variations d'intensité au cours du balayage a été effectuée. Pour cela on accorde la longueur d'onde du laser à la valeur correspondant au maximum de rendement du cristal puis on la fait varier de part et d'autre de cette valeur sur 300 mK environ (la largeur de la structure est de 600 mK). Un photomultiplicateur reçoit une partie du faisceau ultraviolet de façon à ce que sa réponse soit linéaire. Les variations observées sont de 5% au maximum.

Les fluctuations d'intensité de la décharge donnent le principal facteur d'incertitude : la proportion d'atomes dans leur état métastable évolue au cours du temps. Ces variations peuvent être importantes. Quand les conditions de fonctionnement sont optimales , le temps

caractéristique des fluctuations lentes de la décharge est de l'ordre de grandeur du temps d'enregistrement (20 à 30 mn). Ainsi, pour les résonances peu séparées en fréquence ($\Delta\sigma \simeq 50$ mK), l'erreur sur le rapport des intensités est beaucoup plus faible que pour deux raies éloignées ($\Delta\sigma \simeq 500$ mK). Des enregistrements différents (4) d'une même configuration (6snd) donnent un ordre de grandeur des fluctuations totales. Pour deux raies proches d'intensité moyenne (on néglige la saturation), l'incertitude relative sur le rapport d'intensité est d'environ 20%, cette incertitude pouvant atteindre la valeur 40% si les raies que l'on considère sont éloignées l'une de l'autre.

Ainsi pour comparer les intensités expérimentales et théoriques il faudra tenir compte des incertitudes importantes apportées par les fluctuations aléatoires.

III-B IDENTIFICATION DES COMPOSANTES. ETUDE THEORIQUE DES STRUCTURES.

III-B-1 INTERPRETATION QUALITATIVE DES STRUCTURES.

Les niveaux étudiés correspondent à la configuration 6snd . En effet :

(i) Le défaut quantique mesuré sur les niveaux les plus bas en énergie (là où l'erreur commise est la plus faible) correspond à celui donné par A. Débarre [5] pour le terme 6snd $^3D_2$, qui est très proche du niveau 6snd $^3D_1$ étudié ici (cf. II-A-2).

(ii) De plus, le nombre de résonances observé dans certaines structures est supérieur à celui des transitions possibles entre le

niveau $6s6p\ ^3P_0$ et les niveaux de la configuration 6sns , compte tenu de la structure hyperfine.

(iii) Enfin des arguments tant théoriques (comparaison des intensités des transitions 2p ns et 2p nd pour l'hydrogène dans le livre de H. A. Bethe et E. E. Salpeter, p. 267 [19]) qu'expérimentaux (expériences sur les alcalins et sur l'ytterbium [5][11]) montrent que les transitions correspondant au saut 6p - nd sont beaucoup plus intenses que celles correspondant au saut 6p - ns .

Ces trois arguments excluent donc la possibilité que les niveaux observés appartiennent à la configuration 6sns .

Dans le cadre théorique habituel des études de la structure hyperfine on peut prévoir a priori le nombre de composantes de la structure. L'état métastable de départ ne présente pas de structure hyperfine (J=0). Le nombre de composantes observées correspondra au nombre de niveaux hyperfins de l'état $6snd\ ^3D_1$:

Pour ^{171}Yb : J=1 I = 1/2 → F = 1/2 ou 3/2 2 niveaux ,

Pour ^{173}Yb : J=1 I = 5/2 → F = 3/2 , 5/2 ou 7/2 3 niveaux ,

où I est le moment de spin nucléaire,
et F le moment cinétique total.

Or, comme le montre la Figure 18 :

(i) Le nombre de composantes associées aux isotopes impairs est supérieur à 5 .

(ii) Pour les grandes valeurs de n , les composantes ont tendance à se regrouper mais en formant 4 ensembles seulement et non 5 .

Ces deux arguments suffisent à montrer que le couplage habituel [(S,L)J,I]F ne convient pas pour décrire le système. Cette forme de couplage résulte de l'ordre de grandeur des différentes interactions : dans ce modèle, l'interaction hyperfine est la plus petite interaction

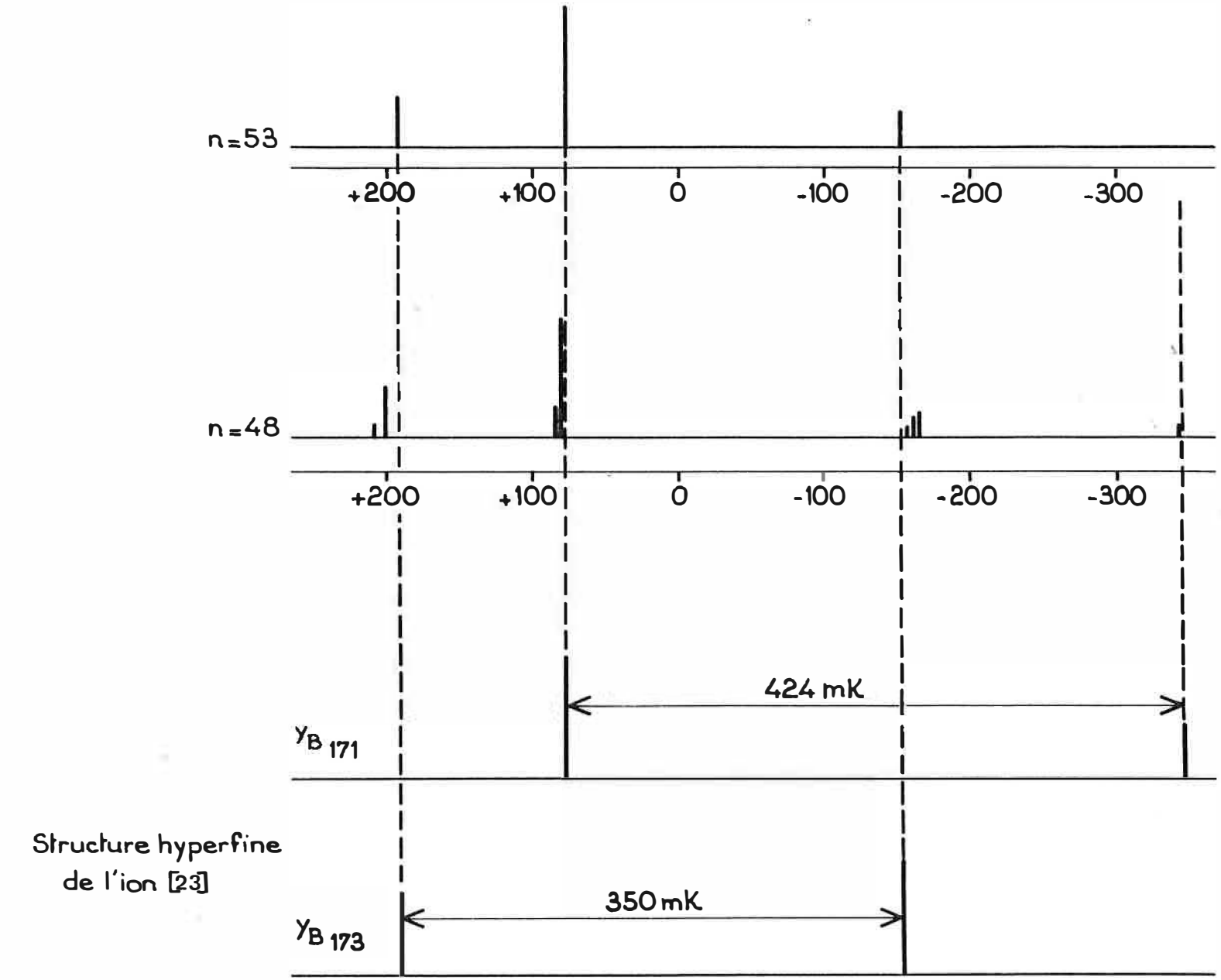


Figure 20 : Comparaison entre la structure hyperfine de l'ion Yb II et la structure des configurations 6s53d et 6s48d .

que l'on considère. On est donc conduit à admettre que, dans le cas présent, l'interaction hyperfine n'est plus très inférieure aux interactions telles que les interactions électrostatique biélectronique et spin-orbite.

Une étude de l'ordre de grandeur des différents termes de l'Hamiltonien du système est faite au paragraphe III-B-4 a) . Une des conclusions de cette étude est que, pour les niveaux de grande valeur du nombre quantique principal ($n \simeq 50$) , la structure hyperfine de l'électron 6s domine les autres interactions. De plus cette structure doit être très voisine de celle du niveau $4f^{14}6s\ ^2S_{1/2}$ de Yb II, qui comporte deux sous-niveaux hyperfine pour chaque isotope impair :

Pour ^{171}Yb $J = 1/2$ $I = 1/2 \rightarrow F = 0$ ou 1 2 niveaux ,

Pour ^{173}Yb $J = 1/2$ $I = 5/2 \rightarrow F = 2$ ou 3 2 niveaux .

La grandeur qui détermine l'écart des sous-niveaux hyperfins est en effet la densité de probabilité de présence au noyau de l'électron 6s qui est peu perturbée par la présence de l'électron de Rydberg nd (effet d'écran très peu marqué).

Effectivement on observe bien expérimentalement que, pour $n=53$, la seule interaction visible, à notre résolution expérimentale, est la structure hyperfine. On remarque pour $n=48$, que la structure est déjà plus complexe, les interactions autres que l'interaction hyperfine ne devenant plus négligeables (cf. Figure 20). Ces structures présentent bien des composantes groupées en 4 ensembles distincts.

Il faut maintenant attribuer chaque composante,à chacun des isotopes impairs.

Les écarts de structure hyperfine du niveau fondamental de l'ion Yb^+ sont connus pour chaque isotope [23] : pour ^{171}Yb cet écart est de 424 mK tandis que pour ^{173}Yb il est de 350 mK. En comparant ces écarts avec le spectre obtenu pour $n=53$ et 48 (Fig. 20), l'attribution

des raies est immédiate. (Pour n=53 la raie de plus basse énergie n'a jamais été observée. Ceci peut s'expliquer théoriquement (cf. §.III-C-4)).

Pour les valeurs de n comprises entre 33 et 48 , on observe que chaque raie associée aux isotopes impairs se sépare en sous-composantes (Fig. 13). Mais l'allure générale de la structure est encore proche de celle de l'ion. Ceci permet l'affectation des différentes raies à l'un ou à l'autre des isotopes impairs sans ambiguïté.

De n=32 à 24 , la structure se modifie peu à peu (Fig. 18). En particulier on observe que les raies de plus grand nombre d'ondes associées à ^{173}Yb s'éloignent du centre de la structure. Leur intensité décroît peu à peu et elles finissent par ne plus être observables à partir de n=27 . Mais l'intensité relative totale associée à cet isotope doit rester fixe. On en déduit que les raies apparaissant à partir de n=32 doivent appartenir à ce même isotope ; les intensités des autres raies étant peu modifiées. L'affectation des autres raies se fait en suivant l'évolution de la structure numéro après numéro sauf pour n=26 qui est perturbé (cf. III-C-3 ou Fig. 19).

III-B-2 DEPLACEMENT ISOTOPIQUE DES ISOTOPES PAIRS ET IMPAIRS.

Dans le Tableau II on donne les écarts d'énergie entre les différents isotopes pairs et ^{176}Yb pour tous les niveaux enregistrés. Toutes les transitions étudiées doivent avoir le même déplacement isotopique car le facteur d'écran de l'électron nd est négligeable pour les valeurs de n que l'on considère. Pour obtenir une valeur précise de ce déplacement isotopique, il est donc justifié de faire la moyenne des valeurs mesurées sur l'ensemble des transitions enregistrées.

Pour les isotopes impairs, le déplacement isotopique est déduit, pour chaque niveau, de l'interprétation paramétrique de la structure hyperfine (cf. III-C-2) . Pour la même raison que précédemment, les

TABLEAU III-a)

176	174	173	172	171	170	
0	-10,6	-16,4	-21,2	-29,9	-34,1	(mK)

Déplacement isotopique par rapport à ^{176}Yb (± 1 mK)

TABLEAU III-b)

nombres de masse	Δσ (mK)
176 - 174	10,6
174 - 172	10,6
172 - 170	12,9
174 - 173	5,8
173 - 172	4,8
172 - 171	8,7
171 - 170	4,1

Déplacement isotopique entre chaque paire d'isotopes (± 1 mK)

valeurs données sont les moyennes des valeurs obtenues pour toutes les configurations.

Les valeurs ainsi obtenues sont données aux Tableaux IIIa et IIIb. Le Tableau IIIa donne les écarts en nombre d'ondes pour chaque isotope par rapport à ^{176}Yb , le Tableau IIIb donne les écarts entre chaque isotope.

On remarque que les isotopes impairs se placent du côté de l'isotope pair adjacent le plus léger, conformément à ce que l'on observe généralement dans les éléments lourds (odd-even staggering) ; mais l'incertitude avec laquelle chacun de ces écarts est connu ne permet pas d'affirmer ceci sans réserves dans le cas de ^{173}Yb .

Dans les éléments lourds le principal effet de déplacement isotopique provient de l'effet de volume qui, le plus souvent, est beaucoup plus grand que l'effet de masse.

L'effet de masse comprend deux parties :

- l'effet de masse normal $\delta\sigma$ donné par la formule :

$$\delta\sigma = \sigma\, m_\ell \left(\frac{1}{M_1} - \frac{1}{M_2}\right) \approx \sigma \frac{m_\ell}{m_p} \left(\frac{A_2 - A_1}{A_1\, A_2}\right)$$

où A_1 , A_2 , M_1 , M_2 sont les nombres de masse et les masses des noyaux des deux isotopes que l'on considère, m_ℓ et m_p , la masse de l'électron et du proton ; σ est le nombre d'onde de la transition (ici $\sigma \approx 33.000\ cm^{-1}$) ;

- l'effet de masse spécifique est très difficile à évaluer. Mais on considère, en général, que cet effet ne devrait pas excéder 2 à 3 mK pour un couple d'isotopes dont le nombre de masse diffère de 2 unités, pour les transitions du type de celles étudiées ici (correspondant au saut $6p \rightarrow nd$). On n'en tiendra donc pas compte pour le reste de cette étude.

TABLEAU IV

	$6s6p \rightarrow 6snd$ (mK)	$6s^2 \rightarrow 6s6p$ (556,6 nm) [23] (mK)	rapport
176 - 174	9,4	-32,24	-0,29
174 - 172	9,4	-33,75	-0,28
172 - 170	11,6	-43,77	-0,27
173 - 171	12,3	-44,06	-0,28

Comme il est d'usage dans ce type d'étude, on déduit l'effet de masse normal des valeurs mesurées et l'on obtient ainsi les valeurs des déplacements isotopiques résiduels dont les valeurs sont reportées au Tableau IV.

Dans ce tableau, on compare les mesures obtenues aux valeurs publiées par Y. Chafko pour la transition $6s^2\ {}^1S_0 \rightarrow 6s6p\ {}^3P_1$ [23] ($\lambda = 556{,}6$ nm) . On admet que l'effet de masse spécifique est également peu important pour cette transition et on a déduit aussi l'effet de masse normal sur ces valeurs.

L'effet de volume est proportionnel à la probabilité de présence des électrons au noyau. On considère d'abord la transition $6s6p \rightarrow 6snd$. Si l'électron 6s a, dans la configuration $4f^{14}6s$ de Yb , une densité de probabilité de présence (D.P.P.) à l'intérieur du noyau égale à P , la présence de l'électron 6p réduit d'environ 10% cette D.P.P. (on a un facteur d'écran de 0,1). La D.P.P. au noyau de l'électron 6s dans la configuration 6s6p est donc 0,9 P . Dans la configuration 6snd , le facteur d'écran de l'électron nd est négligeable. La D.P.P. de l'électron 6s est donc égale à P . La variation de D.P.P., au noyau, entre les deux configurations est donc 0,1 P .

Pour la transition $6s^2 \rightarrow 6s6p$, les deux électrons s de la configuration fondamentale ont un facteur d'écran mutuel tel que la D.P.P. au noyau est 1,6 P , la différence de D.P.P. est donc dans ce cas de -0,7 P .

Le rapport entre les déplacements isotopiques mesurés sur les deux transitions doivent être dans le rapport des différences de D.P.P. , c'est-à-dire -0,14 . Ce rapport est donné dans la dernière colonne du Tableau IV . Le rapport n'est pas celui attendu, mais l'incertitude sur les divers facteurs d'écran permet d'expliquer ce désaccord.

Les coefficients d'écran dont nous avons fait usage ci-dessus

sont, en effet, évalués empiriquement par l'examen systématique des déplacements isotopiques mesurés dans divers spectres [28]. On admet, en général, que leurs valeurs sont susceptibles de varier de 0,1 en plus ou en moins. Or on constate qu'il suffit de prendre pour le facteur d'écran de l'électron 6p , la valeur 0,2 au lieu de la valeur 0,1 pour que l'accord soit établi aux précisions expérimentales près.

Il faut observer, d'autre part, que les déplacements isotopiques relatifs (rapports des déplacements de deux paires d'isotopes), ont les mêmes valeurs dans les deux transitions, puisque les nombres de la dernière colonne restent constants dans la limite des incertitudes expérimentales. Ceci justifie, a posteriori, le fait d'avoir négligé l'effet de masse spécifique.

III-B-3 PRINCIPAUX TERMES DE L'HAMILTONIEN.

Pour décrire les niveaux d'un atome il faut tout d'abord écrire l'hamiltonien de système dont les valeurs propres fourniront l'énergie des niveaux et dont les vecteurs propres seront les fonctions d'onde de ces niveaux.

L'Hamiltonien utilisé pour décrire les configurations 6snd comprend, tout d'abord, l'énergie cinétique des deux électrons optiques et leur énergie potentielle dans le champ central (V) . Ce terme principal (H_0) donne l'énergie moyenne de la configuration (6snd) . Il s'écrit :

$$H_0 = \sum_{i=1}^{2} -\frac{\hbar^2}{2m} \vec{\nabla}_i^{\,2} + V(r_i) \quad .$$

A cet Hamiltonien s'ajoutent trois termes perturbateurs principaux : le terme d'interaction coulombienne biélectronique (G) , le terme d'interaction spin-orbite (Λ) pour l'électron nd et le terme d'interaction hyperfine (H_m) pour l'électron 6s .

D'autres termes perturbatifs, habituellement d'un ordre de grandeur plus faible, sont susceptibles d'être pris en compte, tel que l'interaction hyperfine associée à l'électron nd , l'interaction spin-spin et spin autre-orbite. Mais ces interactions sont soit négligeable (ce qui sera confirmé par l'étude paramétrique (III-C-5)), soit prises en compte de manière effective dans l'Hamiltonien, pour celles qui ont une dépendance angulaire identique à l'un des termes que l'on considère.

On a donc l'Hamiltonien :

$$H = H_0 + G + \Lambda + H_m \qquad \text{(on note : } H' = G + \Lambda + H_m\text{)} \ .$$

Les trois derniers termes perturbateurs ont pour expressions :

$$G = \frac{e^2}{r_{12}}$$

$$\Lambda = \zeta_d \, \vec{l} \, \vec{s} \qquad \text{avec} \quad \zeta_d = \int_0^\infty (R_{n,d})^2 \, \frac{1}{r} \frac{\partial V}{\partial r}$$

$$H_m = a_s \, \vec{s}.\vec{I} \qquad \text{avec} \quad a_s = \int_0^\infty (R_{n,s})^2 \, \frac{8\pi}{3} \, \frac{2\beta \, \beta_N \, \mu_N}{I} \, \delta(\vec{r}) \, dr \ .$$

(Ce terme est usuellement appelé terme de contact de Fermi [29]).

Dans l'expression de a_s , β et β_N sont respectivement le magnéton de Bohr et le magnéton nucléaire, μ_N est la valeur du moment magnétique exprimé en magnétons nucléaires et I est le spin nucléaire.

Pour les isotopes pairs, de spin nucléaire nul, le terme d'interaction hyperfine est identiquement nul. L'Hamiltonien s'écrit dans ce cas :

$$H = H_0 + G + \Lambda \ .$$

On peut tout de suite remarquer que $\vec{J}$ (moment cinétique électronique total) commute avec ces trois opérateurs. J sera donc un bon nombre quantique. D'après les règles de sélection associées aux transitions dipolaires électriques ($\Delta J = 0, \pm 1 \quad 0 \not\leftrightarrow 0$) on ne peut peupler à partir de l'état métastable ($6s6p \ ^3P_0$) que des états de $J=1$. La

configuration 6snd comprend les niveaux $^3D_1$, $^3D_2$, $^3D_3$ et $^1D_2$. On n'observera donc que le seul niveau de J égal à 1 ($^3D_1$) .

III-B-4 a) ORDRE DE GRANDEUR DES DIFFERENTS TERMES DE L'HAMILTONIEN.

Avant d'effectuer le calcul des énergies, il faut connaître les ordres de grandeur relatifs des différents termes pris en compte dans l'Hamiltonien. En effet, si certains termes ont une contribution à l'énergie faible devant celle des autres termes, il sera possible de faire, pour eux, un traitement en perturbation "en cascade".

La contribution aux écarts d'énergie du terme d'interaction électrostatique G est de l'ordre de grandeur de l'intégrale de Slater G^2 (cf. §.III-B-5 b)). La variation des intégrales radiales F^k ($k\neq0$) et G^k , en fonction de la valeur du nombre quantique principal (n) est en $1/(n^*)^3$, n^* étant le nombre quantique principal effectif (cf. Appendice I) et donc l'ordre de grandeur de G varie de la même façon en fonction de n .

Pour la partie radiale de l'interaction spin-orbite (ζ_d) , on a la même dépendance, en fonction de n , en $1/n^{*3}$ (cf. Appendice I).

Un calcul de Hartree-Fock sur la configuration 6s6d donne les valeurs de départ pour ces lois de variation en $1/n^{*3}$. Les paramètres obtenus sont :

$$G_2 = \frac{G^2}{5} = 469 \text{ cm}^{-1} \qquad \zeta_d = 56,1 \text{ cm}^{-1}$$

n=6 donc $n^*=3,26$ le défaut quantique étant de 2,74 [5][11].
On a donc pour n=30 ($n^*=27,26$) les ordres de grandeur :

$$G_2 = 0,8 \text{ cm}^{-1} \qquad \zeta_d = 0,1 \text{ cm}^{-1}$$

et pour n=50 (n*=47,26)

$$G_2 = 0,15 \text{ cm}^{-1} \qquad \zeta_d = 0,02 \text{ cm}^{-1} .$$

Le rapport entre G_2 et ζ_d est estimé à : $\frac{\zeta_d}{G_2} = 0,12$.

La structure hyperfine de l'électron 6s est proche de celle de l'ion (cf. §.III-B-1) . Elle est donc de l'ordre de grandeur de 500 mK pour tous les niveaux que l'on considère.

En conclusion de cette approche quantitative on remarque que pour les niveaux élevés (n=50) la structure hyperfine est prépondérante. Par ordre décroissant d'importance viennent ensuite l'interaction coulombienne et l'interaction spin-orbite. Par contre pour les niveaux de $n \lesssim 15$ cet ordre est modifié. On a, dans l'ordre, les interactions coulombienne, spin-orbite et hyperfine. Pour les valeurs de n intermédiaires ($n \approx 30$) ces trois interactions sont a priori du même ordre de grandeur et seule une étude où l'on traite ensemble ces interactions pourra rendre compte du spectre. Il faudra donc traiter ces trois interactions comme une perturbation unique.

D'autre part, cette étude justifie le domaine d'énergie où ont été effectués les enregistrements. C'est entre n = 20 et 50 que se produit le changement d'ordre de grandeur entre les interactions (cf. III-A-2).

III-B-4 b) <u>COUPLAGE DES DIFFERENTS MOMENTS CINETIQUES</u>.

Il faut maintenant définir le couplage de base sur lequel sera fait le calcul des éléments de matrice de l'Hamiltonien. Pour les valeurs de n supérieures à 50, l'ordre des interactions conduit au couplage physique donnant des états de base de la forme :

$$|6s,nd\ \{[(I,j_s)K,s_d]K',\ell_d\}F,M_F\rangle$$

(on remarque que J n'est pas un bon nombre quantique car $[H_m,\vec{J}] \neq 0$).

Pour les configurations associées à des valeurs de $n < 15$, le couplage représentant correctement les états de la configuration est le couplage habituel $[(S,L)J,I]F$. Les états de base sont :

$$|6s,nd\ \{[s_1,s_2)S,(\ell_1,\ell_2)L]J,I\}\ F,M_F\rangle \quad .$$

Pour les états intermédiaires ($n \approx 30$) il n'existe pas de couplage physiquement représentatif des états. Seul F , qui est toujours un bon nombre quantique, pourra être affecté sans ambiguïté à chacun des niveaux. Ceci conduit aussi à remarquer que les fonctions d'ondes associées à chaque niveau correspondront à un mélange des différentes valeurs de J . On choisit alors de faire le calcul dans le couplage $[(S,L)J,I]F$ car c'est dans ce couplage que les expressions littérales des différentes interactions et des intensités sont le plus facile à établir. Les fonctions d'onde se décomposent sur la base associée à ce couplage et contiendront plusieurs termes correspondant aux différentes valeurs de J possibles.

III-B-5 a) PRINCIPE DU CALCUL.

On cherche les énergies propres et les états propres de l'Hamiltonien total H . Pour ceci on traite H' comme une perturbation de H_0 et l'on effectue un traitement perturbatif au 1er ordre : le niveau (dégénéré) de H_0 est la configuration 6snd . La théorie des perturbations au 1er ordre, appliquée à un niveau dégénéré, impose de former la matrice de la perturbation H à l'intérieur du sous-espace des états associé à l'état propre de H_0 , puis de la diagonaliser dans ce même sous-espace. Les valeurs propres et les états propres obtenus donneront les énergies et les fonctions d'onde de chacun des niveaux.

Pour calculer les éléments de matrice de la perturbation, on effectue tout d'abord le calcul littéral des éléments de matrice de chacune des interactions (G , A et H_m) (cf. III-B-5 b)). En fait on ne

calcule que les parties angulaires. Les éléments de matrice s'exprimeront donc en fonction des intégrales radiales associées à la partie radiale de chaque opérateur de la perturbation. Ces intégrales radiales sont des constantes pour chaque configuration et sont considérées comme des paramètres ajustables dont il faut trouver la valeur pour interpréter chaque structure enregistrée.

Les programmes et le principe du calcul des paramètres sont décrits au §.III-B-5 c) . Les résultats sont donnés au sous-chapitre III-C .

III-B-5 b) CALCUL DES ELEMENTS DE MATRICE.

Comme cela a été précisé dans le paragraphe sur l'ordre de grandeur des différents termes de l'Hamiltonien (III-B-4 b)), les états de base entre lesquels on calcule les éléments de matrice de chaque interaction sont ceux du couplage $[(S,L)J,I]F$. Le calcul de l'expression littérale des trois interactions est donné à l'Appendice II.

Le résultat du calcul pour l'interaction coulombienne montre que ses éléments de matrice s'expriment en fonction de deux paramètres F^0 et G_2 :

$$F^0 = F^0(6s,nd) = \int_0^\infty \int_0^\infty (R_{6s})^2_{(1)} (R_{nd})^2_{(2)} \frac{1}{r} \, dr_1 \, dr_2$$

$$G_2 = \frac{1}{5} G^2(6s,nd) = \int_0^\infty \int_0^\infty (R_{6s} R_{nd})_{(1)} (R_{6s} R_{nd})_{(2)} \frac{r_<^2}{r_>^3} \, dr_1 \, dr_2 \times \frac{1}{5} .$$

L'interaction spin-orbite s'exprime en fonction du paramètre ζ_d

$$\zeta_d = \int_0^\infty (R_{nd})^2 \frac{1}{r} \frac{\partial V}{\partial r} \, dr \quad .$$

L'application de l'expression littérale, obtenue pour ces deux interactions, à la configuration 6snd donne la matrice hermitique :

	$^3D_1, I, F$	$^1D_2, I, F$	$^3D_2, I, F$	$^3D_3, I, F$
$^3D_1$ I,F	$F^0 - G_2 - \frac{3}{2}\zeta_d$	0	0	0
$^1D_2$ I,F		$F^0 + G_2$	$\frac{\sqrt{6}}{2}\zeta_d$	0
$^3D_2$ I,F			$F^0 - G_2 - \frac{1}{2}\zeta_d$	0
$^3D_3$ I,F				$F^0 - G_2 + \zeta_d$

Pour compléter cette matrice il faut maintenant calculer les éléments de matrice de l'interaction hyperfine. Mais il faut remarquer que le nombre d'éléments distincts à calculer est assez élevé. Les valeurs du nombre quantique F sont comprises entre 1/2 et 7/2 pour ^{171}Yb ($I = 1/2$) et entre 1/2 et 11/2 pour ^{173}Yb ($I = 5/2$). On obtient ainsi, en remarquant que H_m est diagonal en F, que l'on a 12 termes à calculer pour ^{171}Yb et 35 pour ^{173}Yb. Ce grand nombre de termes oblige à faire le calcul numérique de l'expression littérale sur ordinateur. Le résultat de ce calcul est donné dans l'Appendice II. Ces éléments de matrice s'expriment en fonction de 2 paramètres, un pour chaque isotope : $a_s(171)$ et $a_s(173)$:

$$a_s(i) = \int_0^\infty \frac{8\pi}{3} \frac{2\beta\, \beta_N\, \mu_N(i)}{I(i)} (\mathcal{R}_{6s})^2\, \delta(\vec{r})\, dr \qquad \text{(cf. III-B-3)}.$$

L'origine des énergies choisies dans le dépouillement des spectres ne correspond pas à l'énergie moyenne de la configuration (donnée par H_0). On ajoute donc aux interactions, calculées précédemment, une constante additive, distincte pour chacun des isotopes impairs : ADD(171) et ADD(173). Ces constantes tiennent compte de manière

effective du déplacement isotopique entre ^{171}Yb et ^{173}Yb et de l'élément de matrice $F^{(0)}$ constant pour toute la configuration.

Le nombre de paramètres devant rendre compte de la structure dans le modèle choisi est donc égal à 6 :

ADD(171) et ADD(173)

$a_s(171)$ et $a_s(173)$

G_2

ζ_d .

III-B-5 c) CALCUL DE L'EXPRESSION LITTERALE DES INTENSITES.

Pour comparer sans ambiguïté le spectre théorique et expérimental il faut calculer les intensités relatives théoriques des transitions dipolaires électriques entre l'état métastable de départ $(6s6p\ ^3P_0)$ et les différents niveaux de la configuration (6snd) . Les règles générales de sélection associées à ce type de transition sont :

$$\Delta L = 0,\pm 1 \quad 0 \not\leftrightarrow 0 \ , \quad \Delta s = 0 \ , \quad \Delta J = 0,\pm 1 \quad 0 \not\leftrightarrow 0 \quad .$$

Les seuls niveaux que l'on peut atteindre sont donc de la forme $6sns\ ^3S_1$ et $6snd\ ^3D_1$. Comme cela a été précisé au §.III-B-1, on ne s'intéresse dans notre expérience qu'à la configuration 6snd . Dans cette configuration, on n'observera alors que les niveaux dont la fonction d'onde comprend une composante $^3D_1$ (cf. III-B-4 b)).

Le développement d'un état quelconque $|\Psi\rangle$, de la configuration 6snd , sur la base $|6snd[(S,L)J,I]F,M_F\rangle$ s'écrit :

$$|\Psi\rangle = \sum_{S,L,J} A_{\Psi\ ;\ S,L,J,F,M_F} \ |6snd[(S,L)J,I]F,M_F\rangle$$

(on ne somme pas sur F et M_F car ces deux nombres sont de bons nombres quantiques).

L'amplitude de la transition $(\Delta M_F = 0)$, $\mathcal{A}_{^3P_0,F,M_F\to\Psi}$, entre l'état de départ, $[6s6p\ ^3P_0, I, F = 1/2$ ou $5/2$ suivant l'isotope impair que l'on considère, $M_F\rangle$ et ce niveau $|\Psi\rangle$ est donnée par :

$$\mathcal{A}_{^3P_0,F,M_F\to\Psi} = \sum_{S,L,J} A_{\Psi\ ;\ S,L,J,F,M_F} \langle 6snd[(S,L)J,I]F,M_F | C_0^{(1)} | 6s6p[(S;L')J;I]F'M_F'\rangle$$

où $C_0^{(1)}$ est l'opérateur dipolaire électrique et où

$S' = 1$, $L' = 1$, $J' = 0$, $I = 1/2$ (pour ^{171}Yb) ou $5/2$ (pour ^{173}Yb).

Les règles de sélection imposent :

$$S=1 \quad , \quad J=1 \quad , \quad M_F = M_{F'} \quad .$$

De plus : $L=2$.

L'amplitude de la transition est donc :

$$\mathcal{A}_{^3P_0,F,M_F\to\Psi} = (-1)^{F-M_F} \begin{pmatrix} F & 1 & F' \\ -M_F & 0 & M_{F'} \end{pmatrix} \sqrt{[F][F']}\ A_{\Psi\ ;\ ^3D_1,F,M_F}\ (-1)^{J+I+F'+1} \begin{Bmatrix} J & F & I \\ F' & F' & 1 \end{Bmatrix} (^3D_1 \| C^{(1)} \| ^3P_0) \quad .$$

La polarisation du laser étant quelconque, l'intensité de la transition sera la somme des carrés des amplitudes ainsi calculées :

$$\mathcal{I} = \sum_{M_F} \left| \mathcal{A}_{^3P_0,F,M_F\to\Psi} \right|^2 \quad .$$

A l'aide des formules données par Edmonds [24] p. 47 (3-7-8) et p. 98 (6-3-2) on trouve que $\mathcal{I}$ est proportionnel à :

$$\mathcal{I} \propto \left[\sum_{M_F} \left| A_{\Psi\ ;\ ^3D_1,F,M_F} \right|^2 \right] [F] = I_{\Psi\ ;\ ^3D_1,F} \times [F] \quad .$$

Il faut maintenant pouvoir comparer les intensités obtenues pour les raies associées à chacun des isotopes. Pour ceci on remarque que l'intensité totale de la transition ($\mathcal{I}_T$) :

$$\mathcal{I}_T(^{A}Yb) = \sum_F \sum_\Psi I_{\Psi\,;\,^3D_1,F}\ [F] \propto \sum_F [F]$$

doit être la même pour les deux isotopes. Il faut alors multiplier toutes les intensités associées à l'isotope 171 (resp. 173) par le facteur $\mathcal{I}_T$ (^{173}Yb) (resp. $\mathcal{I}_T$ (^{171}Yb)). Puis il faut tenir compte des rapports d'abondance isotopique entre les deux éléments (abondance de ^{173}Yb / abondance de ^{171}Yb = 1,13) [16].

III-B-6 LES DIFFERENTES ETAPES DU CALCUL NUMERIQUE.

Pour obtenir les valeurs des paramètres permettant d'interpréter le spectre expérimental, on dispose au Laboratoire Aimé Cotton d'une chaîne de calcul adaptée à ce genre de problème. Nous allons décrire d'abord brièvement les méthodes de calcul utilisées dans chaque programme (a)) puis la façon dont les paramètres ont été introduits dans le calcul (b)).

a) Les programmes de calcul [31].

La chaîne de programme se compose de quatre éléments indépendants, dont les fonctions réalisent séparément chaque étape du calcul. Un premier programme, AGENAC, calcule numériquement la partie angulaire des éléments de matrice associés à l'interaction hyperfine, à partir de la formule générale donnée à l'Appendice II. Dans cet appendice, on donne la matrice ainsi obtenue.

Un second programme, ASSAC, permet d'introduire la partie angulaire des éléments de matrice de G et A , calculés à la main (cf. Appendice II), et rassemble les matrices associées à chaque interaction

en une seule matrice. Ce programme a aussi permis de traiter le spectre des deux isotopes impairs dans un même calcul.

Le troisième élément de la chaîne, DIAGAC, permet de diagonaliser la matrice à partir des valeurs numériques des paramètres. Le calcul fournit les énergies propres ainsi que le développement des états propres sur les états de base choisis. On a donc directement les valeurs des coefficients $I_{\Psi;^3D_1,F}$ nécessaires au calcul des intensités. On obtient aussi par ce programme la contribution à l'énergie des différentes interactions.

Par une méthode de moindres carrés, le programme GRAMAC ajuste les valeurs des paramètres (ADD(171), ADD(173), G_2 , ζ_d , $a_s(171)$, $a_s(173)$) afin d'obtenir un meilleur accord entre le calcul théorique et l'expérience. En fait pour obtenir une interprétation théorique plus significative certains de ces paramètres peuvent être fixés soit à leur valeur initiale, soit à la nouvelle valeur obtenue. Le programme GRAMAC calcule aussi, pour chaque paramètre, leur écart type(*) et, d'autre part, l'écart quadratique moyen entre les valeurs calculées et expérimentales des énergies.

Mais ce calcul ajuste les paramètres en conservant les états propres fournis par la diagonalisation. Il faut donc réintroduire les nouvelles valeurs des paramètres dans le programme DIAGAC, puis procéder à un nouveau calcul de moindres carrés. On poursuit ces deux opérations jusqu'à convergence, c'est-à-dire jusqu'à ce que le calcul de l'écart quadratique moyen ne change plus d'une itération à la suivante.

(*) la définition de cette grandeur est donnée par exemple à la référence [30].

b) Le calcul des paramètres.

Pour que le calcul paramétrique, qui vient d'être décrit, ait une signification physique, il faut que le nombre de paramètres soit inférieur au nombre de données expérimentales. Pour la configuration comportant le plus grand nombre de résonances (n=32) on a 3 raies affectées à ^{171}Yb et 8 raies à ^{173}Yb. On dispose donc de 4 paramètres pour interpréter 8 données d'énergie pour ^{173}Yb et 4 paramètres pour les 3 données d'énergie mesurées sur ^{171}Yb. Les intensités ne sont pas prises en compte dans le calcul. Elles ne sont utiles qu'au moment de l'affectation des raies théoriques aux différentes résonances du spectre et pour vérifier en fin de calcul la validité du modèle. Pour avoir un rapport favorable entre le nombre de paramètres et le nombre d'informations il a fallu réunir les deux isotopes dans un même calcul. Les paramètres G_2 et ζ_d sont naturellement les mêmes dans les deux cas et le déplacement isotopique entre les deux spectres est pris en compte par la différence des constantes additives ADD(171) et ADD (173). On a ainsi au mieux 6 paramètres pour interpréter 11 énergies expérimentales. Dans le cas le moins favorable (n=28) les 6 paramètres doivent interpréter 8 énergies. Ce rapport est trop faible et l'on n'a pu obtenir ainsi la convergence du calcul. On a alors fixé les constantes de structure hyperfine aux valeurs connues de l'ion Yb II car la constante d'écran de l'électron nd est très faible (cf. III-B-1). Avec cette simplification le nombre de paramètres est ramené à 4 pour l'interprétation de 8 à 11 données d'énergie.

Ces valeurs initiales des paramètres sont celles obtenues dans l'approche qualitative du paragraphe III-B-4 a) . Les premières valeurs des paramètres obtenues sont celles interprétant le spectre de la configuration 6s32d . La convergence a été obtenue après une dizaine d'itérations car la valeur finale des paramètres est assez différente des valeurs initiales (cf. III-C-1). Puis l'on a interprété chaque configuration de proche en proche en prenant comme valeur initiale des paramètres celles du niveau interprété le plus voisin. La convergence est alors assez rapide (3 ou 4 itérations).

A la convergence, l'écart quadratique moyen entre les énergies expérimentales et théoriques est de l'ordre de grandeur de l'incertitude expérimentale et aucune des énergies calculées ne diffère de façon significative de l'énergie expérimentale. Ceci justifie a posteriori le fait de garder les paramètres $a_s(171)$ et $a_s(173)$ fixes tout au long du calcul pour toutes les configurations que l'on considère et le fait que les autres interactions envisageables (III-B-3) sont bien négligeables.

III-C RESULTATS

III-C-1 VALEURS DES PARAMETRES.

La valeur de chaque paramètre permettant d'interpréter chacune des structures enregistrées est donnée au Tableau V . La Figure 21 illustre ces résultats : on a reporté en fonction de la valeur du nombre quantique principal n , les différentes valeurs obtenues pour les paramètres G_2 et ζ_d . Les courbes tracées correspondent aux fonctions α/n^{*3} et β/n^{*3} (α et β sont pratiquement égaux et de l'ordre de $2{,}9.10^6$) et représentent la variation théorique en fonction de n (cf. Appendice I) de chacun des paramètres. Les barres d'erreurs représentent les écarts types obtenus par le calcul des moindres carrés.

Pour n=48 la convergence n'a pu être obtenue. Pour cette configuration la valeur des paramètres G_2 et ζ_d est faible et un écart possible entre la valeur théorique et expérimentale dû aux incertitudes sur la mesure des énergies peut empêcher la convergence.

TABLEAU V

n	G_2	ζ_d
24	126,0 ± 4,9	191,6 ± 4,0
25	145,0 ± 11,0	162,0 ± 5,0
27	142,6 ± 10,3	146,8 ± 4,7
28	141,1 ± 9,0	130,5 ± 3,3
29	118,7 ± 5,0	115,8 ± 2,7
30	107,0 ± 4,0	107,7 ± 2,0
31	88,4 ± 5,4	95,4 ± 1,8
32	79,8 ± 3,4	85,0 ± 1,2
33	85,0 ± 5,5	52,5 ± 6,5
34	74,0 ± 3,5	53,3 ± 6,0
35	85,2 ± 6,4	31,0 ± 2,3
38	64,9 ± 5,9	18,9 ± 4,7
43	29,6 ± 5,1	12,3 ± 4,4
53	0	0

Valeur des paramètres G_2 et ζ_d en fonction du nombre quantique principal n .

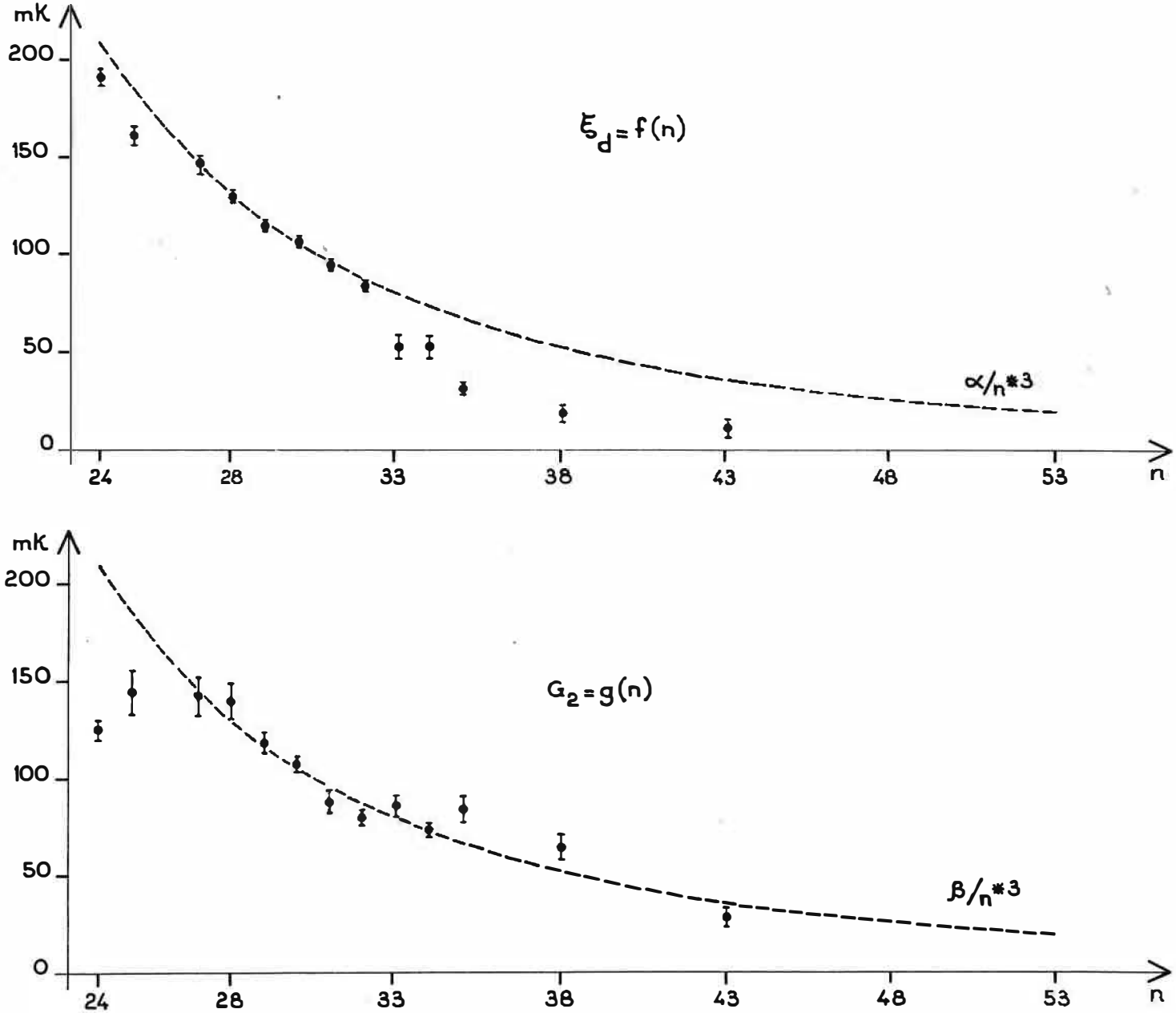


Figure 21 : Valeur des paramètres G_2 et ζ_d obtenues pour chaque configuration.

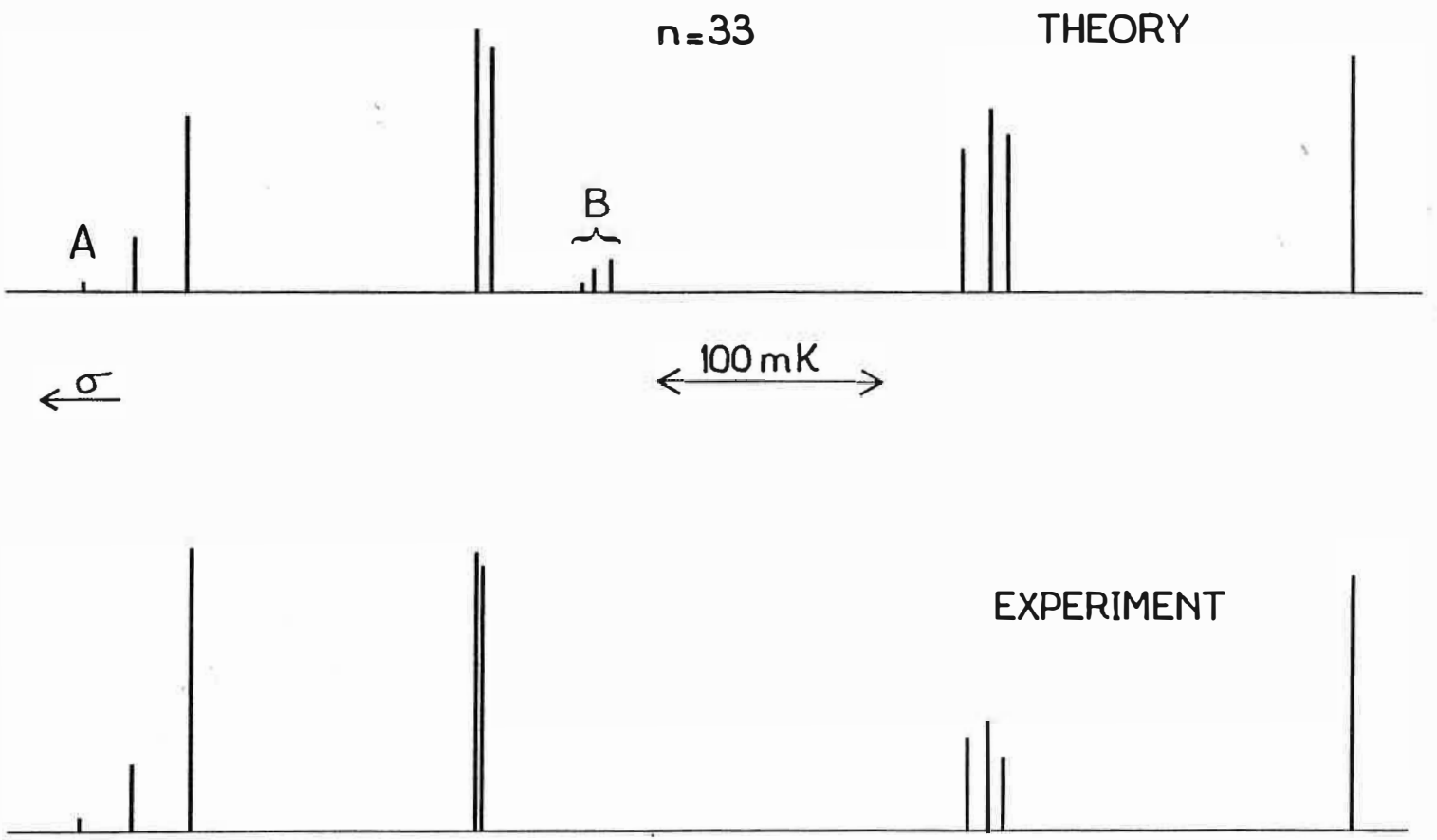


Figure 22 : Comparaison entre les intensités expérimentales et théoriques.

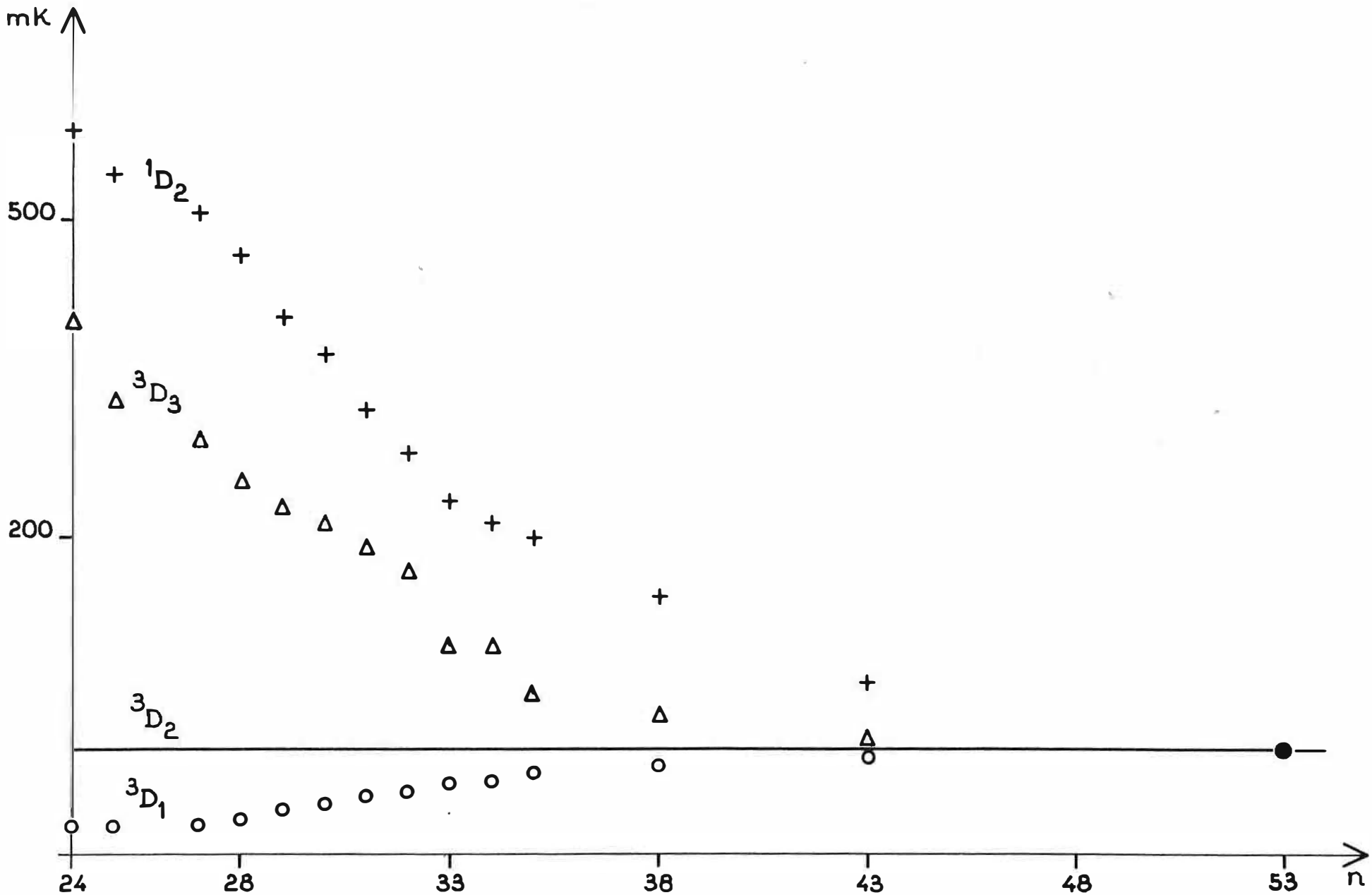


Figure 23 : Ecarts entre les niveaux $^1D_2 - {}^3D_1 - {}^3D_2 - {}^3D_3$ en fonction de n .

TABLEAU VI

n	$^3D_1$	$^3D_3$	$^1D_2$
24	-73,41	405,12	583,73
25	-75,64	331,48	543,36
27	-72,20	294,57	507,83
28	-68,12	254,36	468,53
29	-58,73	230,86	409,59
30	-53,62	215,58	375,80
31	-45,62	192,82	323,99
32	-41,37	170,98	291,95
33	-33,24	97,41	234,45
34	-31,39	99,79	216,96
35	-23,41	53,52	200,33
38	-15,12	32,00	146,75
43	-8,92	12,11	62,88
53	0	0	0

Position des niveaux $^3D_1$, $^3D_3$, $^1D_2$ par rapport au niveau $^3D_2$ pour chaque configuration 6snd enregistrée, dans le cas des isotopes pairs.

III-C-2 AUTRES RESULTATS.

La diagonalisation de la matrice d'interaction avec les valeurs finales des paramètres donne les coefficients nécessaires au calcul théorique des intensités. La comparaison entre les intensités théoriques ainsi obtenues et les intensités expérimentales est une vérification de la validité du calcul. Pour toutes les raies observées, un très bon accord est réalisé comme le montre par exemple la Figure 22 (l'enregistrement et le calcul portent sur la configuration 6s33d). Mais la structure théorique montre 3 raies (notées B sur la figure) dont deux ont une intensité supérieure à la raie A . Cet ensemble de 3 raies n'a jamais été observé, tandis que la raie B est bien confirmée expérimentalement. Une deuxième série de résultats est obtenue en annulant les valeurs des constantes de structure hyperfine dans le calcul de diagonalisation. On obtient ainsi les énergies associées aux différents niveaux de la configuration 6snd : $^3D_1$, $^3D_2$, $^3D_3$, $^1D_2$ affectées du déplacement isotopique propre aux isotopes 171 et 173. On remarque que les énergies obtenues pour le terme $^3D_1$ de chacun des isotopes impairs donne directement la valeur de ce déplacement isotopique par rapport à l'isotope pair ^{176}Yb choisi comme origine des énergies (cf. III-B-2).

De plus, en modifiant ces énergies de la différence de déplacement isotopique entre un isotope impair et chacun des isotopes pairs, on obtient les positions en énergie qui doivent être occupées par les composantes (simples) associées aux isotopes pairs correspondant aux niveaux $^3D_2$, $^3D_3$ et $^1D_2$. On voit ainsi que, par le jeu du mélange de fonctions d'onde dû à l'interaction hyperfine, on a accès à des renseignements sur des niveaux qui ne sont, en principe, pas accessibles directement, du fait des règles de sélection, à partir du niveau $6s6p\ ^3P_0$.

Les écarts entre les niveaux $^3D_1$, $^3D_2$, $^3D_3$ et $^1D_2$ sont donnés dans le Tableau VI et les courbes de la Figure 23 montrent les

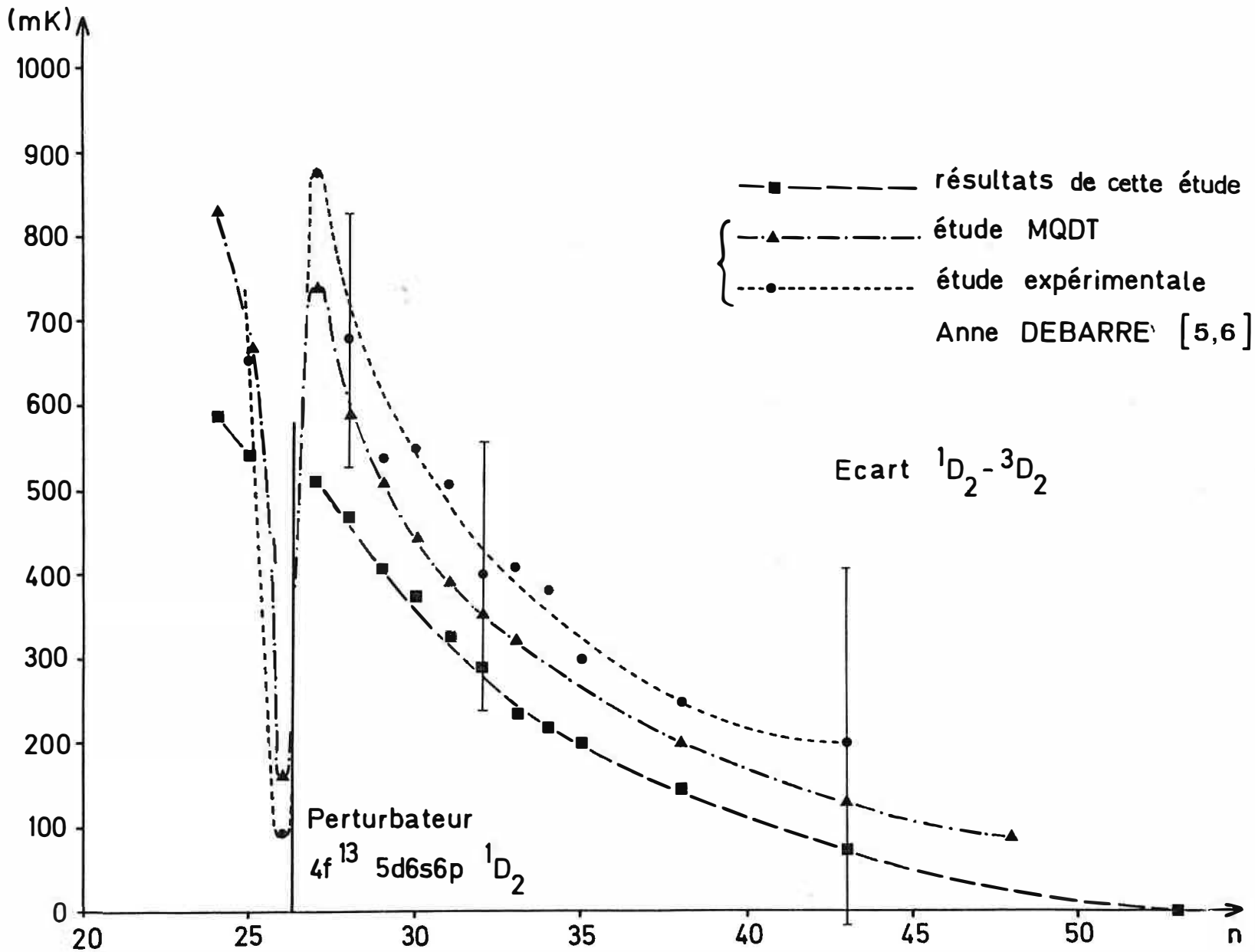


Figure 24 : Ecart $^1D_2 - ^3D_2$ en fonction de n .

variations de ces écarts en fonction de n (la référence d'énergie arbitrairement choisie est le $^3D_2$).

Il serait naturellement très souhaitable de contrôler ces résultats en cherchant directement, sur les isotopes pairs, les résonances associées à ces niveaux et en mesurant avec précision leurs nombres d'onde, mais cette expérience nécessite, si l'on garde le même processus expérimental, de choisir comme niveau de départ le niveau métastable $6s6p\ ^3P_2$ (cf. Figure 1). Il faut donc faire fonctionner le laser monomode pulsé utilisé dans un intervalle de longueur d'onde autour de 6550 Å et avoir un cristal doubleur avec un bon rendement pouvant fonctionner dans cette région. Pour ces deux raisons, l'expérience n'a pas encore pu être réalisée.

On peut cependant confronter les écarts entre les niveaux $^1D_2$ et $^3D_2$ obtenus ici aux valeurs théoriques et expérimentales obtenues par A. Débarre, dans son expérience à basse résolution (ce qui donne une incertitude importante sur ces écarts) et dans son interprétation à l'aide de la théorie du défaut quantique à plusieurs voies (M.Q.D.T.). Les courbes tracées à la Figure 24 donnent les valeurs de ces écarts suivant les différentes méthodes. Seules quelques barres d'incertitude ont été reportées pour les points expérimentaux publiés par A. Débarre, afin de faciliter la compréhension du graphe mais les incertitudes sont du même ordre de grandeur pour tous les points reportés.

Compte tenu de ces incertitudes, qui se reportent en partie sur l'étude M.Q.D.T., l'accord avec ces résultats peut être considéré comme satisfaisant. (L'analyse de cette courbe au voisinage de la perturbation sera faite dans le paragraphe suivant).

III-C-3 PERTURBATION DU NIVEAU n=26 .

Comme on l'a remarqué dans le chapitre décrivant les résultats expérimentaux (III-A-2), le niveau n=26 est perturbé. Le parturbateur a été identifié par J. F. Wyart [25]. C'est le niveau de caractère principalement $^1D_2$ de la configuration $4f^{13}5d6s6p$ situé à 50244,38 cm^{-1} du fondamental. Cette perturbation peut être qualifiée de faible puisqu'elle n'affecte notablement qu'une seule configuration de la série. Ce perturbateur (J=2) n'affecte pas directement la série 6snd $^3D_1$ dans la mesure où J est un bon nombre quantique (les énergies des niveaux correspondant aux isotopes pairs ne sont pas modifiées par la présence de la perturbation) mais influe sur la structure des isotopes impairs par l'intermédiaire du mélange de fonction d'onde par la structure hyperfine. On a un déplacement du barycentre de la structure des isotopes impairs par rapport aux isotopes pairs et une modification de la position relative des composantes puisque le pourcentage de $^1D_2$ dans la fonction d'onde de chaque raie est différent, d'après les résultats obtenus sur les niveaux voisins.

Cette structure n'a pu être interprétée par la méthode paramétrique bien que l'on puisse, dans une certaine mesure, tenir compte de façon effective de la perturbation par le paramètre G_2 (séparation singulet-triplet). Pourtant, on peut reconnaître chaque composante car le déplacement de chaque raie, par rapport à la structure des configurations n=27 et n=25 , est pratiquement proportionnel au pourcentage de $^1D_2$ dans les fonctions d'onde de ces configurations. L'affectation aux deux isotopes impairs est donnée sur l'enregistrement de ces niveaux à la Figure 19.

La perturbation affecte aussi d'autres niveaux de part et d'autre de la position du perturbateur (n = 24, 25 et 27), bien que ceux-ci en soient plus éloignés en énergie. On peut observer l'effet de cette perturbation en regardant l'évolution de l'écart entre les niveaux $^1D_2$ et $^3D_2$ associés aux isotopes pairs. Le perturbateur est placé entre

les configurations 6s26d et 6s27d . L'effet de la perturbation se traduira par un déplacement vers les énergies plus élevées (resp. plus basses) pour les niveaux à caractère $^1D_2$ appartenant aux configurations d'énergie supérieure (resp. inférieure) à celle du perturbateur alors que les énergies des niveaux ne comprenant pas dans leur fonction d'onde un terme $^1D_2$ ne seront pas modifiées (c'est le cas des niveaux associés aux isotopes pairs). Sur la Figure 24 on observe bien ce phénomène pour les configurations autour de la perturbation. De même pour les résonances associées aux isotopes impairs de la configuration 6s26d , les déplacements d'énergie dus à la perturbation vont dans le sens des basses énergies.

III-C-4 REMARQUES ET COMMENTAIRES SUR LES RESULTATS.

La méthode paramétrique a donné de bons résultats pour l'ensemble des configurations enregistrées, puisqu'elle a permis de donner des valeurs des paramètres significatives (c'est-à-dire avec un faible écart type). Mais ces valeurs faites a priori ne correspondent pas à celles attendues (cf. III-B-4 a)). Les estimations à partir du niveau 6s6d donnaient un rapport ζ_d/G_2 de 0,1 à 0,2 et la valeur obtenue pour chaque paramètre donne un rapport de l'ordre de 1 (pour $27 \leqslant n \leqslant 32$ ces deux paramètres sont même égaux). Deux interprétations de ce résultat sont possibles.

Tout d'abord la configuration 6s6d est encore trop profonde et perturbée par les nombreux autres niveaux de valence ; elle ne donne donc pas une bonne valeur initiale pour la variation en $(n^*)^{-3}$. D'autre part, les paramètres obtenus sont susceptibles de prendre en compte, de manière effective, des interactions ayant la même dépendance angulaire que les interactions calculées.

De plus nous avons remarqué dans le paragraphe III-C-2 qu'un groupe de raies prévu théoriquement n'a jamais été observé ; mais ces

raies ont une intensité proche du seuil de détection de l'expérience et une légère erreur sur leur intensité théorique peut suffire à expliquer le fait qu'elles n'ont pas été observées. On peut tenter aussi d'expliquer pourquoi la raie de plus basse énergie (associée à l'isotope ^{171}Yb) de la configuration 6s53d n'a jamais été observée. En effectuant une diagonalisation avec de faibles valeurs des paramètres (celles prévues pour la variation en $(n^*)^{-3}$ par n=53) on trouve que la raie de plus basse énergie de cette configuration est la plus faible des composantes. Toutefois son intensité théorique est supérieure à celles de certaines raies dans les configurations plus basses. Mais en tenant compte de la diminution de la probabilité de transition quant n augmente (variation en $(n^*)^{-3}$) on peut expliquer ainsi pourquoi cette raie n'a pas été observée.

Enfin, la méthode paramétrique a permis de comprendre la structure des états de Rydberg 6snd de l'Ytterbium et de vérifier la loi théorique en $(n^*)^{-3}$. Mais cette méthode paramétrique n'est peut-être pas très adaptée pour trouver la valeur réelle des paramètres correspondant à chaque interaction. En particulier on traite chaque configuration de façon isolée alors que les interactions avec les autres configurations de la série, ou avec des séries de même parité, ne sont peut-être pas négligeables. En effet la distance entre deux valeurs de n successives, dans le domaine étudié, est de quelques cm^{-1} et l'étalement d'une configuration est de 0,6 cm^{-1}. Une méthode du type de la M.Q.D.T., mais incluant la structure hyperfine, permettrait de traiter globalement toutes les configurations et prendrait en compte les séries perturbatrices. Mais cette méthode est difficile à mettre en oeuvre en raison de la quantité de données expérimentales nécessaires (il faut les énergies de tous les niveaux de toutes les configurations, sur un grand domaine, de chaque série) et d'un point de vue théorique du fait de la présence de la structure hyperfine. Une étude par la M.Q.D.T. a été envisagée à partir des énergies que nous avons obtenues par la méthode paramétrique pour tous les termes associés aux isotopes pairs. Cette étude n'a finalement pu être faite, le nombre de niveaux pour lesquels on dispose de ces données étant trop faible.

CONCLUSION DE LA PARTIE THEORIQUE

Finalement l'analyse réalisée par la méthode paramétrique des niveaux de la série 6snd est assez satisfaisante. Elle illustre bien diverses particularités des niveaux de Rydberg et spécialement de ceux des atomes à deux électrons optiques ; telle que, par exemple, la variation avec le nombre quantique n de diverses interactions et de l'influence réciproque de l'orbitale très excitée (ici nd) et de l'orbitale non excitée (ici 6s). Enfin, elle permet de mettre en évidence sur un exemple très particulier, l'effet d'un niveau perturbateur.

CONCLUSION

Les deux séries d'expériences prévues initialement ont pu être réalisées malgré les difficultés expérimentales rencontrées. En particulier l'effet Stark, dû aux ions parasites issus de la décharge, a conduit à modifier notablement le dispositif expérimental initial du jet atomique.

Les résultats des mesures de champ critique d'ionisation sont assez décevants puisqu'ils vérifient simplement la loi classique. Pourtant, comme nous l'avons vu, l'un des niveaux étudiés est perturbé, mais il s'agit d'une perturbation faible et qui, dans la série que nous avons étudiée, n'opère que sur les composantes impaires par le biais de la structure hyperfine.

Le problème de l'influence sur les champs critiques d'ionisation d'un niveau perturbateur reste donc, en fait, ouvert. Il pourra sans doute être abordé de nouveau par une expérience analogue, mais réalisée sur une série fortement perturbée de l'ytterbium ou d'un autre élément.

Les résultats obtenus dans l'étude sur l'évolution de la structure des états de Rydberg tout au long d'une même série sont par contre intéressants. Un résultat important de cette étude est la possibilité de l'interprétation théorique de ces configurations élevées par la méthode paramétrique. En particulier les interactions entre configurations ne sont pas introduites dans le calcul paramétrique et pouvaient rendre impossible l'interprétation des structures à l'aide, uniquement, des interactions coulombiennes, spin-orbite et hyperfine.

Le second point remarquable de cette étude paramétrique est la vérification de la loi en $(n^*)^{-3}$ pour les paramètres d'interaction coulombienne et spin-orbite. Les déviations observées n'ont pu être expliquées de façon certaine, et il faudrait réaliser une expérience où l'on observerait directement toutes les valeurs de J possibles afin d'obtenir une valeur des paramètres plus précises. Ceci peut être réalisé à partir du même processus expérimental, mais en peuplant les états de Rydberg à partir de l'état métastable $6s6p\ ^3P_2$. Cet état est bien peuplé par la décharge puisque l'on a observé des phénomènes de photoionisation résonnante intense à partir de ce niveau.

Enfin le dernier résultat important obtenu est l'observation d'une perturbation d'une série de Rydberg par l'intermédiaire d'une modification de la structure hyperfine.

REFERENCES

[1] S. Haroche, La Recherche n° 92, 733 (Septembre 1978).

[2] M. Aymar, O. Robaux, J. Phys. B : Atom. Molec. Phys. 12, 531 (1979).

[3] M. Aymar, P. Camus, M. Dieulin, C. Morillon, Phys. Rev. A 18, n° 5 p. 2173 (1978).

[4] P. Esherick, J. J. Wynne and J. A. Armstrong, Optics Letters 1, 19 (1977).

[5] A. Débarre, Thèse de 3ème cycle, Paris VI (Avril 1979).

[6] M. Aymar, A. Débarre, O. Robaux, Publication à paraître dans J. Phys. B.

[7] S. Liberman, E. Luc-Koenig, J. Pinard, Publication à paraître dans Phys. Rev.

D. H. Tuan, S. Liberman, J. Pinard, Opt. Commun. 18, 533 (1976).

S. Liberman, J. Pinard, Publication à paraître dans Phys. Rev.

[8] Colloques Internationaux du C.N.R.S. n° 273. Etats atomiques et moléculaires couplés à un continuum. Atomes et molécules hautement excités. C.N.R.S. - Paris (1977).

[9] Y. Kato, B. P. Stoicheff, J.O.S.A. Lett. 66, 490 (1976).

[10] T. W. Ducas, M. G. Littman, R. R. Freeman, D. Kleppner, Phys. Rev. Metters 35, 366 (1975).

[11] P. Camus, A. Débarre, C. Morillon, J. Phys. B 11, L395 (1978).

P. Camus, A. Débarre, C. Morillon, Publication à paraître dans J. Phys. B.

[12] T. F. Gallagher, L. M. Humphrey, W. E. Cooke, R. M. Hill and S. A. Edelstein, Phys. Rev. A 16, 1098 (1977).

[13] M. G. Littman, M. M. Kash and D. Kleppner, Phys. Rev. Letters 41, 103 (1978).

M. G. Littman, M. L. Zimmerman and D. Kleppner, Phys. Rev. Letters 37, 486 (1976).

M. G. Littman, M. L. Zimmerman, T. W. Ducas, R. R. Freeman and D. Kleppner, Phys. Rev. Letters 36, 788 (1976).

[14] S. Feneuille, S. Liberman, J. Pinard, A. Taleb, à paraître dans Phys. Rev. Letters.

[15] C. Fabre, P. Goy, S. Haroche, J. Phys. B 10, L183 (1977).

[16] J. S. Ross and K. Murakawa, Phys. Rev. 128, 1159 (1962).

[17] G. I. Bekov, V. S. Letokhov, O. I. Matveev and V. I. Mishin, Opt. Letters 3, 159 (1978).

[18] U. Brinkmann, J. Goshler, A. Steudel and H. Walther, Z. Physik 228, 427 (1969).

[19] H. A. Bethe and E. E. Salpeter, "Quantum Mechanics One- and Two-Electron Atoms", Springer-Verlag, Berlin (1957).

[20] N. F. Ramsey, Molecular Beams, Oxford University Press (1956).

[21] S. Liberman, J. Pinard, Opt. Commun. 20, 344 (1977).

[22] R. S. Adhav and R. W. Wallace, IEEE Journal of Quantum Electronics, p. 855 (Août 1973).

[23] Yu Chaĭko, Opt. i Spektr. 20, 760 (1966).

[24] A. R. Edmonds, "Angular Momentum in Quantum Mechanics" Princeton University Press (1960).

[25] J.-F. Wyart, P. Camus, Physica Scripta 20, 43 (1979).

[26] E. Luc-Koenig, Communication personnelle.

[27] E. U. Condon and G. H. Shortley, "The Theory of Atomic Spectra" Cambridge University Press, Physics, CAM 209 (1935).

[28] J. Blaise et A. Steudel, Z. Phys. 209, 311 (1968).

J. Bauche et R.-J. Champeau, Advances in Atom. and Mol. Phys. 12, 39 (1976).

[29] C. Bauche-Arnoult et J. Bauche, Ann. Phys. 3, 341 (1968).

[30] A. Carlier, Thèse de 3ème cycle, Paris-XI, Orsay (1967).

[31] Chaîne paramétrique, Laboratoire Aimé Cotton, A. Bachelier-Carlier, Y. Bordarier, P. Dagoury.

APPENDICE I

Appendice I

Variation des intégrales de Slater, en fonction du nombre quantique principal n, dans les états de Rydberg des atomes à deux électrons périphériques.

1) Amplitude des fonctions radiales $R_{n,\ell}(r)$ $(n >> \ell)$, près de l'origine, dans le cas de l'hydrogène.

La partie radiale de la fonction d'onde $R_{n,\ell}(r)$ associée à un état $n\ell$ de l'électron de l'atome d'hydrogène est donnée par :

$$(R_{n,\ell}(r))^2 = \left[\frac{1}{(2\ell+1)!}\sqrt{\frac{(n+\ell)!}{(n-\ell-1)!\ 2n}}\left(\frac{2Z}{n}\right)^{3/2} e^{-Zr/n}\left(\frac{2Zr}{n}\right)^{\ell}\right]^2 \times \left[F\left(-(n-\ell-1), 2\ell+2, \frac{2Zr}{n}\right]^2\right.$$

où F est la fonction hypergéométrique dont le développement s'écrit :

$$F = F\left(-(n-\ell-1), 2\ell+2, \frac{2Zr}{n}\right) = \left[1+\frac{2Zr}{n}\frac{(-n+\ell+1)}{2\ell+2} + \frac{2Zr}{n}\frac{(n-\ell-1)(n-\ell-2)}{(2\ell+2)(2\ell+3)2!} + \ldots\right].$$

Ces formules sont tirées du livre de H. A. Bethe et Salpeter : "Quantum Mechanics of One and Two Electron Atoms" p. 15 (3-17) [19].

On peut la récrire sous la forme :

$$(\mathcal{R}_{n,\ell}(r))^2 = \frac{1}{[(2\ell+1)!]^2} \frac{(n+\ell)(n+\ell-1)\times\ldots\times(n-\ell)}{2n} \left(\frac{2Z}{n}\right)^3 e^{-2Zr/n} \times \left(\frac{2Zr}{n}\right)^{2\ell} \times F^2 \quad .$$

On considère les états de Rydberg, dont les nombres quantiques vérifient la relation : $n \gg \ell$. (Dans le cas des états de Rydberg de l'ytterbium étudiés on a $n \sim 30$ et $\ell = 2$).

Donc :

$$(\mathcal{R}_{n,\ell}(r))^2 \approx \frac{1}{[(2\ell+1)!]^2} \frac{n^{2\ell}}{2} \left(\frac{2Z}{n}\right)^3 e^{\frac{-2Zr}{n}} \left(\frac{2Zr}{n}\right)^{2\ell} F^2$$

$$= \frac{1}{[(2\ell+1)!]^2} \frac{(2Z)^{2\ell+3} r^{2\ell}}{2n^3} e^{\frac{-2Zr}{n}} F^2$$

Près de l'origine $(r \to 0)$ on a :

$$r \to 0 \begin{cases} F^2 \to 1 \\ e^{\frac{-2Zr}{n}} \to 1 \end{cases}$$

Pour deux valeurs de n distinctes n_1 , n_2 , le rapport des fonctions radiales près de l'origine est :

$$r \to 0 \left[\frac{\mathcal{R}_{n_1,\ell}(r)}{\mathcal{R}_{n_2,\ell}(r)}\right]^2 \to \frac{n_2^3}{n_1^3} \quad .$$

On peut donc écrire la fonction radiale sous la forme :

$$(\mathcal{R}_{n,\ell}(r))^2 = \frac{1}{n^3} f_\ell^2(r)$$

où toute la dépendance en n est comprise dans le terme $\frac{1}{n^3}$.

2) Variation des intégrales de Slater F^k et G^k, en fonction du nombre quantique principal n, dans les états de Rydberg d'atomes à deux électrons périphériques.

a) Intégrale d'échange.

On se place dans le cas physique donné par l'expérience, c'est-à-dire dans une configuration $(n'\ell', n\ell)$ où l'électron $n'\ell'$ (dans notre cas 6s) est un électron de valence proche du noyau et où l'électron $n\ell$ (dans notre cas nd) est placé dans un état de Rydberg (grande valeur du nombre quantique principal n). On a donc $n' << n$. De plus on se place dans le cas où $n >> \ell$.

Soit à calculer :

$$G^k = \int_0^\infty \int_0^\infty (R_{n'\ell'}\, R_{n\ell})_1\, (R_{n'\ell'}\, R_{n\ell})_2 \frac{r_<^k}{r_>^{k+1}}\, dr_1 dr_2 \quad .$$

La fonction $R_{n\ell}$ est pratiquement identique à la partie radiale de la fonction d'onde hydrogénique associée aux nombres quantiques $n^*\ell$ où n^* est le nombre quantique principal effectif :

$$n = n^* + \delta \qquad (\delta = \text{défaut quantique}).$$

L'orbitale associée à l'électron de valence a des dimensions très faibles (moins d'un nm) devant celles de l'électron de Rydberg (quelques dizièmes de µm). On peut donc choisir une valeur r_0, telle que $\langle r\rangle_{n',\ell'} << r_0 << \langle r\rangle_{n,\ell}$ à partir de laquelle la fonction $R_{n'\ell'}$ peut être considérée comme négligeable. Ceci est justifié car pour $r >> \langle r\rangle_{n'\ell'}$ la fonction $R_{n',\ell'}(r)$ est exponentiellement décroissante. Dans le domaine $(r < r_0)$ ainsi défini, les fonctions $R_{n,\ell}(r)$ ne dépendent de n que par leur amplitude, comme cela a été indiqué au paragraphe 1) :

$$r < r_0 \qquad R_{n,\ell}(r) = \frac{1}{n^{*3/2}} f_\ell(r) \quad .$$

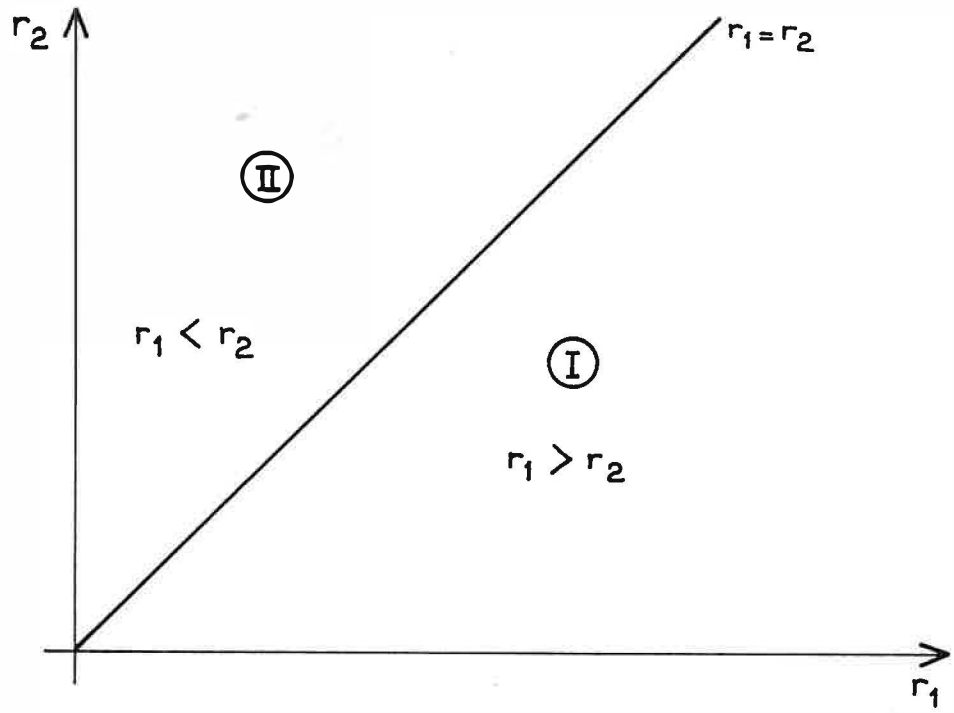


Figure I-a

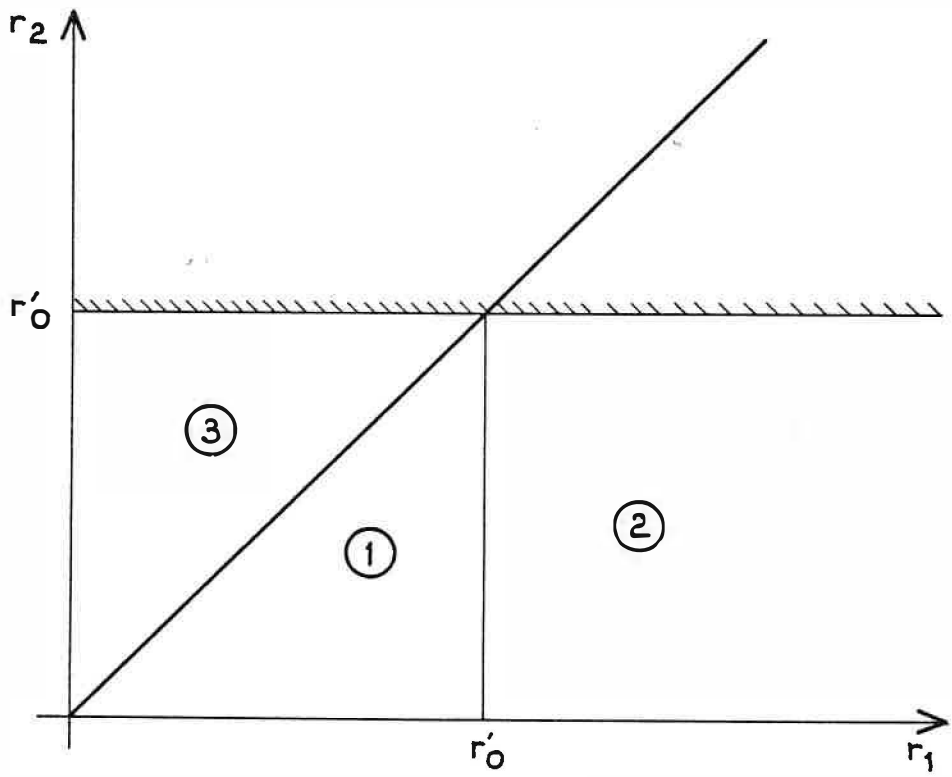


Figure I-b

Donc :

$$G^k = \int_0^{r_0}\int_0^{r_0} \frac{1}{(n^*)^{3/2}} (R_{n;\ell'}\ f_\ell)_1 \frac{r_<^k}{r_>^{k+1}} \frac{1}{(n^*)^{3/2}} (R_{n;\ell'}\ f_\ell)_2\ dr_1 dr_2 \quad .$$

La dépendance en n de l'intégrale G^k est donc entièrement comprise dans les facteurs $\frac{1}{(n^*)^3}$. D'où :

$$G^k \propto \frac{1}{(n^*)^3} \quad .$$

b) Intégrales directes.

Soit à calculer maintenant l'intégrale :

$$F^k = \int_0^\infty \int_0^\infty (R_{n,\ell}(r))^2_1\ (R_{n;\ell'}(r))^2_2 \frac{r_<^k}{r_>^{k+1}}\ dr_1 dr_2$$

dans les mêmes conditions : $n' \ll n$ et $n \gg \ell$.

Cette intégrale peut encore d'écrire :

$$F^k = \int_0^\infty (R_{n,\ell}(r_1))^2 \frac{1}{r_1^{k+1}} \left[\int_0^{r_1} (R_{n;\ell'}(r_2))^2\ r_2^k\ dr_2\right] dr_1$$

$$+ \int_0^\infty (R_{n,\ell}(r_1))^2\ r_1^k \left[\int_{r_1}^\infty (R_{n;\ell'}(r_2))^2 \frac{1}{r_2^{k+1}}\ dr_2\right] dr_1$$

le premier terme correspondant au cas $r_1 > r_2$, le second au cas inverse $r_1 < r_2$ (parties I et II de la Fig. I-a)).

En désignant par r'_0 , une valeur de r telle que $\langle r_{n;\ell'}\rangle \ll r'_0 \ll \langle r_{n,\ell}\rangle$ à partir de laquelle les fonctions $r^{k/2} R_{n'\ell'}(r)$ et $R_{n'\ell'}$ deviennent négligeables (cf. a)), on peut écrire :

$$F^k = \int_0^{r'_0} (R_{n,\ell}(r_1))^2 \frac{1}{r_1^{k+1}} \left[\int_0^{r_1} (R_{n';\ell'}(r_2))^2 r_2^k \, dr_2\right] dr_1 \qquad 1)$$

$$+ \int_{r'_0}^{\infty} (R_{n,\ell}(r_1))^2 \frac{1}{r_1^{k+1}} \left[\int_0^{r_1} (R_{n';\ell'}(r_2))^2 r_2^k \, dr_2\right] dr_1 \qquad 2)$$

$$+ \int_0^{\infty} (R_{n,\ell}(r_1))^2 r_1^k \left[\int_{r_1}^{\infty} (R_{n';\ell'}(r_2))^2 \frac{1}{r_2^{k+1}} \, dr_2\right] dr_1 \qquad 3)$$

Dans le terme 2) la borne d'intégration r_1 est plus grande que r'_0 , or $r^{k/2} R_{n';\ell'}(r)$ devenant très faible pour $r > r'_0$, on a : $(r_1 > r'_0)$

$$\int_0^{r_1} (R_{n';\ell'}(r_2))^2 r_2^k \, dr_2 = \int_0^{r'_0} (R_{n';\ell'}(r_2))^2 r_2^k \, dr_2$$

Le domaine où l'on intègre ce terme est donc réduit à la partie 2 de la Figure I-b) .

De même le terme 3) est une intégration sur r_1 se réduisant au domaine 3 de la Figure I-b) .

On a donc :

$$F^k = \int_0^{r'_0} (R_{n,\ell}(r_1))^2 \frac{1}{r_1^{k+1}} \left[\int_0^{r_1} (R_{n';\ell'}(r_2))^2 r_2^k \, dr_2\right] dr_1 \qquad F_1^k$$

$$+ \int_{r'_0}^{\infty} (R_{n,\ell}(r_1))^2 \frac{1}{r_1^{k+1}} \left[\int_0^{r'_0} (R_{n';\ell'}(r_2))^2 r_2^k \, dr_2\right] dr_1 \qquad F_2^k$$

$$+ \int_0^{r'_0} (R_{n,\ell}(r_1))^2 \frac{1}{r_1^{k+1}} \left[\int_{r_1}^{r'_0} (R_{n';\ell'}(r_2))^2 \frac{1}{r_2^{k+1}} \, dr_2\right] dr_1 \qquad F_3^k$$

Pour $r < r'_0$ on a : $R_{n,\ell}(r) = \frac{1}{(n^*)^{3/2}} f(r)$.

La dépendance en n de l'intégrale F_1^k provient uniquement du facteur $R^2_{n,\ell}(r_1)$. Donc : $F_1^k \propto \frac{1}{(n^*)^3}$.

De même : $F_3^k \propto \frac{1}{(n^*)^3}$.

L'intégrale F_2^k est égale à : $(r'_0 >> \langle r_{n;\ell'} \rangle)$

$$F_2^k = \left[\int_0^{\infty} (\mathcal{R}_{n,\ell}(r_1))^2 \frac{1}{r_1^{k+1}} dr_1 - \int_0^{r'_0} (\mathcal{R}_{n,\ell}(r_1))^2 \frac{1}{r_1^{k+1}} dr_1 \right] \langle r^k \rangle_{n;\ell'}$$

$$(F_2^k)' \qquad\qquad (F_2^k)''$$

car $\int_0^{r'_0} (\mathcal{R}_{n;\ell'}(r_2))^2 \, r_2^k \, dr_2 \simeq \int_0^{\infty} (\mathcal{R}_{n;\ell'}(r_2))^2 \, r_2^k \, dr_2 = \langle r^k \rangle_{n;\ell'}$.

Par le même raisonnement que précédemment la première intégrale dans l'expression de F_2^k est proportionnelle à $\frac{1}{(n^*)^3}$; de plus $\int_0^{\infty} (\mathcal{R}_{n,\ell}(r_1))^2 \frac{1}{r_1^{k+1}} \langle r^k_{n;\ell'} \rangle \, dr_1 \propto \left\langle \frac{1}{r^{k+1}} \right\rangle_{n,\ell}$

or pour $n >> \ell$ et $k \neq 0$ on a : $\left\langle \frac{1}{r^{k+1}} \right\rangle_{n,\ell} \propto \frac{1}{(n^*)^3}$

(H. A. Bethe et E. E. Salpeter [19] p. 17).

Donc : $F_2^k \propto \frac{1}{(n^*)^3}$.

Les trois intégrales ayant la même dépendance en n , on a finalement : $F^k \propto \frac{1}{(n^*)^3}$.

3) <u>Variation de l'intégrale radiale d'interaction spin-orbite en fonction de n $(n >> \ell)$.</u>

L'intégrale radiale d'interaction spin-orbite pour un électron $n\ell$ s'écrit : $\int_0^{\infty} (\mathcal{R}_{n,\ell})^2 \frac{1}{r} \frac{\partial V}{\partial r} dr$.

Le potentiel V est le potentiel dans lequel évolue m'électron de Rydberg $n\ell$. Ce potentiel est proche du potentiel $\frac{1}{r}$ de l'atome

d'hydrogène. En première approximation tout se passe comme si l'électron $n\ell$ était soumis à ce potentiel hydrogénique, la valeur de n étant remplacée par la valeur effective n^*. Ce raisonnement peut être appliqué pour tous les opérateurs diagonaux, c'est-à-dire agissant sur les fonctions d'ondes de niveaux associés à une même configuration [26].

On a donc : $\zeta_\ell(n) \propto \langle r^{-3} \rangle_{n^*\ell}$.

Pour $n \gg \ell$ on a : $\langle r^{-3} \rangle_{n^*\ell} \propto \frac{1}{(n^*)^3}$.

Donc : $\boxed{\zeta_\ell(n) \propto \frac{1}{(n^*)^3}}$.

APPENDICE II

Appendice II

Calcul de l'expression littérale des éléments de matrice des interactions coulombiennes biélectronique, spin-orbite et hyperfine dans les configurations 6snd .

Le calcul s'effectue dans le couplage de base $[(S,L)J,I]F$. Les états de base sont donc de la forme :

$$|\{[(s_1,s_2)S,(\ell_1,\ell_2)L]J,I\}F,MF\rangle \quad .$$

a) Calcul des éléments de matrice de l'interaction coulombienne biélectronique (6snd) .

L'interaction coulombienne biélectronique entre électrons $n_a\,\ell_a$ et $n_b\,\ell_b$ est notée G et a pour expression :

$$G = \frac{e^2}{r_{12}} \quad .$$

Soit à calculer :

$$\langle\{[(s_a,s_b)S',(\ell_a,\ell_b)L']J',I\}F'MF' \left|\frac{e^2}{r_{12}}\right| \{[(s_a,s_b)S,(\ell_a,\ell_b)L]J,I\}F,MF\rangle$$

où le bra et le ket sont des fonctions antisymétriques par rapport à l'échange des électrons 1 et 2 .

On note cet élément de matrice $\langle\Psi'|G|\Psi\rangle$.

L'opérateur G commute avec $\vec{S}$, $\vec{L}$, $\vec{J}$ et $\vec{F}$ donc

$$\langle\Psi'|G|\Psi\rangle = \langle(s_a,s_b)S,MS,(\ell_a,\ell_b)L,ML \left|\frac{e^2}{r_{12}}\right| (s_a,s_b)S,MS,(\ell_a,\ell_b)L,ML\rangle$$

$$\delta(F,F')\ \delta(MF,MF')\ \delta(J,J')\ \delta(S,S')\ \delta(L,L') \ .$$

Le calcul du nouvel élément de matrice est classique. Le résultat est donné par exemple dans le livre de E. U. Condon et G. H. Shortley "The Theory of Atomic Spectra" [27] p. 197, pour une configuration $nsn'\ell$.

En appliquant ce résultat à la configuration 6snd on obtient :

pour le terme Russell-Saunders où S=0 : $F^0 + G^2/5$,

et pour le terme où S=1 : $F^0 - G^2/5$,

où F^0 et G^2 sont des intégrales de Slater directe et d'échange.

b) <u>Calcul des éléments de matrice de l'interaction spin-orbite dans la configuration ns n'ℓ'</u> .

Soit à calculer $(\ell'\neq 0)$, $(\ell=0)$:

$$\langle\{[(s_1,s_2)S'(\ell_1,\ell'_2)L']J',I\}F,MF\ |\Lambda|\ \{[(s_1,s_2)S(\ell_1,\ell'_2)L]J,I\}F,MF\rangle$$

où $\Lambda = \frac{1}{r_2}\frac{dV}{dr_2}(\vec{\ell}_2\cdot\vec{s}_2)$, $\vec{\ell}'_2$ et $\vec{s}_2$ étant les moments cinétiques orbital et de spin de l'électron $n'\ell'$ (*) . On note cet élément de matrice $\langle\Psi'|\Lambda|\Psi\rangle$.

(*) On sait que pour le calcul des éléments de matrice d'un opérateur monoélectronique à l'intérieur d'une configuration d'électrons non équivalents, on peut considérer les états comme non-antisymétriques.

L'opérateur Λ commute avec $\vec{J}$ et $\vec{F}$. On a donc :

$$\langle \Psi' | \Lambda | \Psi \rangle = \langle [(s_1,s_2)S'(\ell_1,\ell_2')L']JMJ \; | \Lambda | \; ,[(s_1,s_2)S,(\ell_1,\ell_2')L]J,MJ \rangle$$

$$\delta(J,J') \; \delta(F,F') \; \delta(MF,MF') \quad .$$

Le résultat du calcul des éléments de matrice, pour une configuration ns n'ℓ' , est donné à la page 268 de la référence [27]. On a la matrice hermitique :

	$^3L_{\ell'+1}$	$^3L_{\ell'}$	$^1L_{\ell'}$	$^3L_{\ell'-1}$	$(L=\ell')$
$^3L_{\ell'+1}$	ℓ'				
$^3L_{\ell'}$		-1	$\sqrt{\ell'(\ell'+1)}$		$\times \frac{1}{2}\zeta_{\ell'}$
$^1L_{\ell'}$			0		
$^3L_{\ell'-1}$				$-(\ell'+1)$	

où $\zeta_{\ell'}$ est l'intégrale radiale : $\int_0^\infty (R_{n'\ell'})^2 \frac{1}{r}\frac{dV}{dr}\, dr$.

c) <u>Calcul de l'expression littérale des éléments de matrice de l'interaction hyperfine magnétique pour l'électron 6s de la configuration 6snd</u> .

L'expression de l'interaction hyperfine est (*) :

$$H_m = a_s \; (\vec{s}_1 . \vec{I})$$

(*) Voir note page précédente.

où a_s est l'intégrale radiale $\int_0^\infty \frac{8\pi}{3} \frac{2\beta\beta_N \mu_N}{I} (R_{6s})^2 \delta(\vec{r})\, dr$,

$\vec{s}_1$ est le spin de l'électron 6s et $\vec{I}$ le moment de spin du noyau.

Soit à calculer (H_m commute avec $\vec{F}$) :

$$\langle\{[(s_1,s_2)S',(\ell_1,\ell_2)L']J',I\}F,MF\ |a_s(\vec{s}_1,\vec{I})|\ \{[(s_1,s_2)S,(\ell_1,\ell_2)L]J,I\}F,MF\rangle .$$

On note cet élément de matrice $\langle\Psi'|H_m|\Psi\rangle$.

Le théorème de Wigner-Eckart appliqué au cas du produit scalaire de deux opérateurs tensoriels irréductibles donne : (A. R. Edmonds "Angular Momentum in Quantum Mechanics" p. 111 (7-1-6) [24])

$$\langle\Psi'|H_m|\Psi\rangle = a_s(-1)^{J+I+F} \begin{Bmatrix} F & I & J' \\ 1 & J & I \end{Bmatrix} ((S',L')J' \| s_s \| (S,L)J)\ (I \| I \| I) .$$

L'expression des éléments de matrice réduits est donnée par Edmonds p. 76 (5-4-3) et p. 111 (7-1-7) [24] . Ces deux formules donnent pour l'élément de matrice :

$$\langle\Psi'|H_m|\Psi\rangle = (-1)^{J+I+F} \begin{Bmatrix} F & I & J' \\ 1 & J & I \end{Bmatrix} \sqrt{(2I+1)(I+1)I}$$

$$(-1)^{S'+L+J+1} \begin{Bmatrix} S' & J' & L \\ J & S & 1 \end{Bmatrix} \sqrt{(2J+1)(2J'+1)}$$

$$(-1)^{s+s+S+1} \begin{Bmatrix} s & S' & s \\ S & s & 1 \end{Bmatrix} \sqrt{(2S+1)(2S'+1)}\ \sqrt{(2s+1)(s+1)s}$$

où $s = 1/2$ est le spin d'un électron.

Les valeurs numériques des coefficients de a_s , pour la configuration 6snd , donnent les matrices hermitiques diagonales par blocs (ce calcul est effectué par ordinateur) :

Pour I = 1/2

	F = 1/2	F = 3/2			F = 5/2			F = 7/2
	$^3D_1$	$^3D_1$	$^1D_2$	$^3D_2$	$^1D_2$	$^3D_2$	$^3D_3$	$^3D_3$
F= 1/2 $^3D_1$	$\frac{1}{4}$	0			0			0
$^3D_1$		$-\frac{1}{8}$	$\frac{\sqrt{6}}{8}$	$-\frac{3}{8}$				
F= 3/2 $^1D_2$			0	$\frac{\sqrt{6}}{8}$	0			0
$^3D_2$				$-\frac{1}{8}$				
$^1D_2$					0	$-\frac{\sqrt{6}}{12}$	$-\frac{\sqrt{21}}{12}$	
F= 5/2 $^3D_2$						$\frac{1}{12}$	$-\frac{\sqrt{14}}{12}$	0
$^3D_3$							$-\frac{1}{3}$	
F= 7/2 $^3D_3$								$\frac{1}{4}$

Pour I = 5/2

	F = 1/2		
	$^1D_2$	$^3D_2$	$^3D_3$
$^1D_2$	0	$\frac{7\sqrt{6}}{12}$	$-\frac{\sqrt{21}}{12}$
F = 1/2 $^3D_2$		$-\frac{7}{12}$	$-\frac{\sqrt{14}}{12}$
$^3D_3$			$-\frac{5}{3}$

F = 3/2

F = 3/2	$^3D_1$	$^1D_2$	$^3D_2$	$^3D_3$
$^3D_1$	$\frac{7}{8}$	$\frac{3\sqrt{70}}{40}$	$-\frac{3\sqrt{105}}{40}$	0
$^1D_2$		0	$\frac{11\sqrt{6}}{24}$	$-\frac{2\sqrt{30}}{15}$
$^3D_2$			$-\frac{11}{24}$	$-\frac{4\sqrt{5}}{15}$
$^3D_3$				$-\frac{17}{12}$

F = 5/2

F = 5/2	$^3D_1$	$^1D_2$	$^3D_2$	$^3D_3$
$^3D_1$	$\frac{1}{4}$	$\frac{2\sqrt{5}}{5}$	$-\frac{\sqrt{30}}{5}$	0
$^1D_2$		0	$\frac{\sqrt{6}}{4}$	$-\frac{9\sqrt{5}}{20}$
$^3D_2$			$-\frac{1}{4}$	$-\frac{3\sqrt{30}}{20}$
$^3D_3$				-1

F = 7/2

F = 7/2	$^3D_1$	$^1D_2$	$^3D_2$	$^3D_3$
$^3D_1$	$-\frac{5}{8}$	$\frac{3\sqrt{6}}{8}$	$-\frac{9}{8}$	0
$^1D_2$		0	$-\frac{\sqrt{6}}{24}$	$-\frac{2\sqrt{3}}{3}$
$^3D_2$			$\frac{1}{24}$	$-\frac{2\sqrt{3}}{3}$
$^3D_3$				$-\frac{5}{12}$

		F = 9/2			F = 11/2
		$^1D_2$	$^3D_2$	$^3D_3$	$^3D_3$
	$^1D_2$	0	$-\frac{5\sqrt{6}}{12}$	$-\frac{\sqrt{165}}{12}$	
F= 9/2	$^3D_2$		$\frac{5}{12}$	$-\frac{\sqrt{110}}{12}$	0
	$^3D_3$			$\frac{1}{3}$	
F=11/2	$^3D_3$				$\frac{5}{4}$