



**HAL**  
open science

# Spectroscopie haute précision de la transition 1S-3S de l'atome d'hydrogène en vue d'une détermination du rayon du proton

Sandrine Galtier

► **To cite this version:**

Sandrine Galtier. Spectroscopie haute précision de la transition 1S-3S de l'atome d'hydrogène en vue d'une détermination du rayon du proton. Autre [cond-mat.other]. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2014. Français. NNT : 2014PA066554 . tel-01080669

**HAL Id: tel-01080669**

**<https://hal.science/tel-01080669>**

Submitted on 5 Nov 2014

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

UNIVERSITÉ PARIS 6 - PIERRE ET MARIE CURIE



THÈSE DE DOCTORAT

---

# Spectroscopie haute précision de la transition 1S-3S de l'atome d'hydrogène en vue d'une détermination du rayon du proton

---

*Auteur :*  
Sandrine GALTIER

*Directeur de thèse :*  
François NEZ



Département  
de Physique  
—  
École Normale  
Supérieure



Laboratoire Kastler Brossel  
Physique quantique et applications

Effectuée au :  
Laboratoire Kastler Brossel

Soutenue le 22 septembre 2014  
pour obtenir le grade de DOCTEUR de l'UNIVERSITÉ PARIS 6

*Composition du jury :*

Invité	M. François BIRABEN
Examineur	M. François BALEMBOIS
Rapporteuse	Mme Caroline CHAMPENOIS
Rapporteur	M. Christian CHARDONNET
Président du jury	M. Noël DIMARCQ
Directeur de Thèse	M. François NEZ



# Remerciements

*En ouvrant la porte du laboratoire Kastler Brossel où j'allais passer mes trois prochaines années, je m'engouffrais dans un univers totalement inconnu. Les nombreux membres du laboratoire, chercheurs, techniciens et administratifs dissipèrent très vite mon appréhension initiale.*

*Naturellement, mes remerciements s'adressent en premier lieu à la magnifique équipe qui m'a accueillie et menée au terme de ma thèse. Je souhaite à tout doctorant d'effectuer ses travaux de recherche dans cette ambiance chaleureuse et familiale.*

*Je remercie tout d'abord François Nez, qui occupa le rôle de directeur de thèse. Je le remercie profondément pour sa totale implication au projet. Sans compter son temps, il m'a expliqué toutes les subtilités de l'expérience et il m'a initié à l'électronique malgré ma légère réticence. Jamais à court d'idées, et à l'enthousiasme communicatif, François était constamment à mes côtés durant mes premières années de thèse. Ceci me permit de prendre en main et de comprendre l'expérience dans sa globalité ainsi bien que dans ses subtilités. Enfin par sa préoccupation constante du bien-être de tous, François fait aussi partie de ces personnes dites à grand cœur. Le réconfort de ses chocolats ne se laisse pas oublier !*

*Je remercie fort le doyen de l'équipe, François Biraben. Ses réflexions sur l'expérience échauffent tous les esprits tandis que son calme et son acharnement passionné m'ont impressionnées durant ces années à ses côtés. Je le remercie beaucoup pour sa patience dans ses explications, surtout lorsqu'elles ont déjà été données ! Enfin je le remercie pour son optimiste dans les moments d'expérimentation difficiles.*

*Je remercie vivement Lucile Julien pour ses explications limpides et sa précieuse aide sur le programme de forme de raie. Lucile fut un soutien indispensable, mes piètres questions reçurent toujours un accueil bienveillant. Son sens inné de l'organisation rendit la vie au laboratoire beaucoup plus facile.*

*Cet environnement favorable est entretenu par la continuité des acteurs de l'expérience. François Biraben aussi bien que Lucile Julien ont troqué leur statut de chercheur pour celui d'émérite durant ma thèse, un changement de statut passé inaperçu ! Tous les membres de l'équipe ont ainsi pris à cœur ce projet. Je les remercie tous pour cela. Ce manuscrit leur doit beaucoup.*

*Les membres de l'équipe dite "h/m" ont pris une place entière dans mon environnement scientifique et humain. Pierre Cladé fut mon interlocuteur privilégié concernant le langage python. Je le remercie pour tout le temps qu'il m'a consacré ainsi que pour sa*

---

franchise et la douceur dont il m'a fait bénéficier. Ses réflexions scientifiques hors des sentiers battus n'ont cessées de me captiver. Je l'ai enfin rencontré jeune chercheur et je le quitte grandi du statut de jeune papa. Je lui souhaite ainsi beaucoup de bonheur avec sa nouvelle famille.

Je remercie Saïda pour ses discussions, chroniques d'une vie de femme émancipée et d'une mère soucieuse et merci aussi pour tes conseils de carrière.

Je remercie tous les doctorants de l'équipe pour la bonne ambiance qu'ils ont apportée : Manuel Andia mon adorable collègue de bureau, Raphaël Jannin qu'on n'a jamais réussi à arrêter de fumer, Clément Courvoisier pour son esprit vif et enjoué qui a toujours eu raison de mes états d'âmes, ainsi que Rym Bouchendira qui m'a épaulée à mon arrivé.

Je remercie aussi les précédents doctorants, Olivier Arnoult, Gaëtan Hagel, Sophie Bourzeix, Béatrice Chatel et Jean-Claude Garreau pour leurs manuscrits de thèse qui me furent de précieuses sources d'information.

Je souhaite tout particulièrement bonne chance à Hélène Fleurbaey, prochaine doctorante sur l'expérience. Sa grande gentillesse et son esprit affuté ne me font pas douter que la relève est assurée !

Je remercie les membres du service mécanique pour leur implication active sur notre expérience et leur compréhension pour mes erreurs de schéma. Je remercie de même le service électronique : les bons plans verts de Brigitte Delamour, la maîtrise et la sérénité de Jean-Pierre Okpisz. Je remercie enfin les différents services logistique, informatique, électronique et le secrétariat pour leur très grande disponibilité.

Je remercie les différents directeurs du laboratoire, Paul Indélicato puis Antoine Heidmann ainsi que Monique Granon à l'écoute formidable. Ils m'ont été une aide précieuse pour résoudre tous mes déboires administratifs.

Je remercie très chaleureusement Laurent Hilico, Tristan Briant et Alexandra Fragola qui ont concrétisé ma volonté d'enseigner et de vulgariser la recherche en physique.

Parce que la recherche est avant tout une collaboration de chercheurs de différents laboratoires, je tiens à remercier l'équipe 'fréquences micro-onde' du laboratoire Systèmes de Référence Temps-Espace, qui nous ont fourni la référence de fréquence indispensable pour ce travail de métrologie. Je remercie aussi l'équipe de métrologie du Laboratoire de Physique des Lasers qui nous ont apporté leur aide pour le peigne de fréquence.

Je voudrais enfin chaleureusement remercier Caroline Champenois et Christian Charbonnet qui ont tout de suite accepté d'être rapporteurs de cette thèse. Merci à Noël Dimarcq et François Balembos pour leur vif intérêt pour ce travail.

Je terminerai en remerciant profondément mes proches et amis toujours aussi présents malgré mes absences fréquentes. Je ne remercierai jamais assez mon Vincent pour son soutien inconditionnel, sa présence m'est une force dont je ne saurais me passer. Je terminerai en remerciant mes parents qui loin de ce monde mathématique se sont toujours intéressés à mes travaux. Certes, la mécanique "Kantique" ne fut pas écrite par Kant, mais ces discussions laissent des souvenirs inoubliables !

# Table des matières

<b>Introduction</b>	<b>ix</b>
<b>1 Enjeux actuels de la spectroscopie de haute précision dans l'hydrogène</b>	<b>1</b>
1.1 Les niveaux d'énergie de l'atome d'hydrogène	2
1.1.1 De Bohr à Dirac	2
1.1.2 Le déplacement de Lamb	5
1.1.2.1 Origine physique du déplacement de Lamb	6
1.1.2.2 Les différentes contributions au déplacement de Lamb	7
1.1.3 La structure hyperfine	14
1.2 La spectroscopie de l'atome d'hydrogène	16
1.2.1 Une spectroscopie de haute résolution	16
1.2.2 Mesurer les fréquences optiques	18
1.2.2.1 Les peignes de fréquences	21
1.2.3 Les mesures du déplacement de Lamb	21
1.2.3.1 Spectroscopie micro-onde	21
1.2.3.2 Mesures du déplacement de Lamb du niveau 1S par comparaison de fréquence	23
1.2.3.3 Détermination actuelle de $L_{1S}$ et $L_{2S}$	24
1.3 La problématique du rayon du proton	28
1.3.1 Expériences de diffusion	28
1.3.2 L'hydrogène muonique	29
1.3.3 Mesure du déplacement de Lamb 2S-2P de $\mu\text{He}^+$	31
1.3.4 Autres expériences en cours pour éclaircir la problématique du rayon du proton	33
1.4 La transition 1S – 3S	34
1.4.1 Motivations et premiers résultats	34
1.4.1.1 Déplacement de Lamb $L_{1S}$	34
1.4.1.2 La source UV à 205 nm	35
1.4.2 Le dispositif expérimental actuel	37
<b>2 La source à 205 nm</b>	<b>39</b>
2.1 Somme de fréquences : généralités sur l'optique non linéaire	40
2.1.1 Montage expérimental	49
2.2 Les deux cavités imbriquées	49
2.2.1 Généralités sur les cavités de surtension	50

2.2.2	La cavité à 894 nm . . . . .	54
2.2.3	La cavité à 266 nm . . . . .	57
2.3	Efficacité de somme . . . . .	58
2.3.1	Rappels théoriques . . . . .	58
2.3.2	Performances obtenues . . . . .	61
2.3.3	Adaptation du faisceau au jet atomique . . . . .	63
<b>3</b>	<b>Mesures absolues de fréquences optiques</b>	<b>65</b>
3.1	Le contrôle des fréquences des lasers sources . . . . .	65
3.1.1	Le laser titane-saphir . . . . .	65
3.1.2	Le laser Nd :YVO <sub>4</sub> doublé . . . . .	69
3.1.3	Le laser étalon de fréquence . . . . .	72
3.1.4	Étalonnage des fréquences . . . . .	74
3.2	Le peigne de fréquences optiques . . . . .	76
3.2.1	Intérêt et principe . . . . .	76
3.2.2	Notre peigne de fréquences optiques . . . . .	78
3.2.3	Les différents battements de fréquence . . . . .	80
3.3	La cavité du jet atomique . . . . .	85
3.3.1	Le jet atomique . . . . .	85
3.3.2	La cavité UV . . . . .	87
3.3.3	Le champ magnétique . . . . .	90
3.4	Détection du signal de résonance . . . . .	91
3.4.1	L'optique de détection . . . . .	91
3.4.2	Enregistrement d'une courbe de résonance . . . . .	92
3.4.3	Discussion sur la largeur du signal . . . . .	95
<b>4</b>	<b>Méthode de détermination de la fréquence de la transition 1S-3S.</b>	<b>99</b>
4.1	L'effet Doppler du second ordre . . . . .	99
4.1.1	Principe de la compensation de l'effet Doppler du 2 <sup>nd</sup> ordre . . . . .	100
4.1.2	Le champ magnétique . . . . .	104
4.2	La forme de raie théorique . . . . .	107
4.2.1	Calcul de la fluorescence émise . . . . .	107
4.2.2	La distribution de vitesse . . . . .	111
4.3	Déplacement de la fréquence centrale : effets systématiques . . . . .	113
4.3.1	Déplacement collisionnel . . . . .	113
4.3.2	Déplacement lumineux . . . . .	114
4.3.3	Déformation du signal de fluorescence par des effets de co- hérence . . . . .	116
4.3.4	Effet Stark parasite . . . . .	118
<b>5</b>	<b>Résultats</b>	<b>119</b>
5.1	Données expérimentales . . . . .	119
5.1.1	Le champ magnétique . . . . .	119
5.1.2	Méthode d'ajustement . . . . .	120
5.1.2.1	Incertitude <i>a posteriori</i> sur les paramètres . . . . .	121
5.1.2.2	Incertitude <i>a priori</i> sur les paramètres . . . . .	122

---

5.2	Détermination de la distribution de vitesse . . . . .	124
5.2.1	Le jet effusif . . . . .	125
5.2.2	Variations autour du jet effusif . . . . .	126
5.2.3	La distribution finale . . . . .	129
5.3	Résultats . . . . .	131
5.3.1	Ajustement des sources de déplacement de la raie . . . . .	131
5.3.2	La constante de Rydberg et le déplacement de Lamb . . . . .	134
5.4	Perspectives . . . . .	138
	<b>Conclusion</b>	<b>141</b>
	<b>A Couplages Stark</b>	<b>145</b>
	<b>B Article source UV</b>	<b>147</b>



# Introduction

Il y a 350 ans naissait la spectroscopie, technique de référence en physique qui a toujours su rester à la pointe de la technologie. L'objectif de ce manuscrit est de décrire les tenants et aboutissants actuels de la spectroscopie de haute résolution dans un système particulièrement simple, l'atome d'hydrogène. Et ceci à travers mon travail de thèse sur la transition du niveau fondamental  $1S$  vers le niveau excité  $3S$ .

La simplicité de cet atome en fait le système idéal pour confronter les mesures expérimentales avec les modèles théoriques. Les uns affinent leurs modèles pour faire des prédictions de plus en plus précises pendant que les autres y puisent l'inspiration nécessaire aux inventions technologiques qui permettront de tester les prédictions des premiers ou même de les remettre en cause.

Je vais ainsi commencer mon mémoire par décrire cette course à la précision menée par ces deux entités indissociables. Je présenterai la théorie de l'électrodynamique quantique qui émergea de cette confrontation.

À l'heure actuelle les précisions atteintes par les calculs théoriques sont limitées par notre connaissance de la constante de Rydberg et du rayon de la distribution de charge du proton. Deux mesures très précises de fréquences de transition dans l'hydrogène sont alors nécessaires pour extraire ces deux quantités par comparaison avec les prédictions théoriques. Cette méthode implique évidemment une totale confiance dans les calculs d'électrodynamique quantique très complexes et suppose que cette théorie est complète. Cette confiance est largement légitimée par le fort potentiel de prédiction de cette théorie.

Les expérimentateurs font alors preuve d'ingéniosité pour améliorer les mesures spectroscopiques dans l'hydrogène : la transition  $1S - 2S$  est connue à 10 Hz près avec ainsi 15 chiffres significatifs ! La transition  $2S - 8S/D$  est quant à elle connue à 4,9 kHz près et atteint les 12 chiffres significatifs. Ces deux transitions ont joué jusqu'ici un rôle majeur pour déterminer la constante de Rydberg et tester l'électrodynamique quantique.

L'objectif de ma thèse est de mesurer la transition  $1S - 3S$  de l'hydrogène pour atteindre une précision de l'ordre du kilohertz, soit 13 chiffres significatifs, qui rivaliserait donc avec celle des transitions  $2S - 8S/D$ . Cette mesure, donnant accès à une nouvelle détermination du rayon du proton, est d'autant plus attendue à l'heure actuelle où la valeur de ce rayon est controversée. La deuxième partie du premier chapitre sera ainsi dédiée à cette problématique.

Je détaillerai au second chapitre la source laser ultra-violette à 205 nm nécessaire à l'excitation de la transition  $1S - 3S$  que j'ai entièrement construite durant ma thèse. La génération de près de 15 mW d'une telle source a marqué un pas décisif dans cette nouvelle expérience.

Le troisième chapitre sera dédié à la stabilisation en fréquence des lasers sources permettant de générer l'onde ultra-violette, et à la mesure absolue de leurs fréquences à l'aide d'un peigne de fréquences optiques.

Le quatrième chapitre décrira la méthode utilisée pour compenser le déplacement Doppler du second ordre, effet important dans un jet atomique à température ambiante. Le calcul de la forme de raie utilisée pour ajuster les signaux expérimentaux sera décrit ainsi que tous les effets susceptibles de déplacer la fréquence du signal.

Enfin je présenterai de façon détaillée les résultats de la campagne de mesure réalisée durant ma thèse : l'analyse des signaux et la fréquence obtenue pour la transition  $1S - 3S$ . La précision de notre mesure est inférieure à 4 kHz.

# Chapitre 1

## Enjeux actuels de la spectroscopie de haute précision dans l'hydrogène

L'étude poussée du spectre de raie de l'atome d'hydrogène fut le moteur du développement de la mécanique quantique. La découverte du déplacement de Lamb en 1947 [LAMB1947] et celle de l'anomalie du moment magnétique de l'électron [KUSCH1948] ont motivé la description des processus physiques par la théorie quantique des champs [SCHWINGER1948, SALPETER1951]. Indubitablement, les mesures de haute précision dans les systèmes physiques simples font avancer notre compréhension des lois physiques, en mettant en évidence de nouvelles manifestations de ces lois.

Ainsi la théorie de l'électrodynamique quantique (QED) prédit avec une précision redoutable le comportement de systèmes simples (particules élémentaires ou atomes). Les systèmes atomiques, où les précisions sont les meilleures, sont sans surprise les atomes hydrogénoïdes composés d'un noyau chargé positivement et d'une particule chargée négativement, et donc plus particulièrement l'atome d'hydrogène.

Actuellement la précision des calculs théoriques des niveaux d'énergie de l'atome d'hydrogène est limitée par la mauvaise connaissance des structures électrique et magnétique du proton qui rappelons le, n'est pas une particule élémentaire. Ainsi, l'écart entre les niveaux hyperfins du niveau fondamental de l'atome d'hydrogène est connu grâce au maser à hydrogène avec une incertitude relative meilleure que  $10^{-12}$  alors que celle des calculs théoriques n'est que de quelques  $10^{-6}$  ! Comme nous le verrons par la suite la théorie prédit beaucoup mieux les niveaux d'énergie des transitions optiques de l'atome d'hydrogène. L'incertitude théorique est limitée par l'incertitude sur le rayon de distribution de charge électrique du proton appelé communément "rayon du proton".

Après une description aussi simple que possible des calculs des niveaux de l'atome d'hydrogène, je présenterai quelques mesures de haute précision dans l'hydrogène qui

donnent accès aux fréquences de transitions, au déplacement de Lamb et au rayon du proton. Je placerai enfin mon travail de thèse dans la continuité des travaux de recherche de l'équipe du laboratoire Kastler Brossel (LKB).

## 1.1 Les niveaux d'énergie de l'atome d'hydrogène

### 1.1.1 De Bohr à Dirac

Les premières observations du spectre de l'hydrogène ont eu lieu au début du dix-neuvième siècle avec l'observation des raies d'absorption du soleil. Johann Balmer établit empiriquement en 1885 une loi reliant les longueurs d'ondes des raies visibles de l'hydrogène avec leur nombre quantique principal  $n$ . Trois années plus tard, Johannes Rydberg généralisa cette loi en prédisant l'écart d'énergie entre deux niveaux  $n_1$  et  $n_2$  quelconques :

$$\frac{1}{\lambda} = R \left( \frac{1}{n_1^2} - \frac{1}{n_2^2} \right) \quad (1.1)$$

La constante de Rydberg  $R$  est nommée en son honneur.

Le danois Niels Bohr met au point en 1913, son modèle éponyme où l'électron, de masse  $m_e$  et de charge  $q$ , décrit une trajectoire circulaire autour d'un proton immobile et de masse infinie. Il prédit ainsi les énergies des niveaux d'hydrogène en fonction du nombre quantique  $n$ , et établit l'expression de la constante de Rydberg :

$$E_n = -\frac{R}{n^2} \quad (1.2)$$

où  $R[J] = hc \times R_\infty[m^{-1}]$  et  $R_\infty = \frac{m_e q^4}{8\epsilon_0^2 h^3 c}$

$h$  désigne la constante de Planck,  $\epsilon_0$  la constante diélectrique du vide et  $c$  la vitesse de la lumière.

Très tôt la raie de Balmer de  $n=3$  vers  $n=2$  (ou raie  $H\alpha$ ) apparaît constituée de deux raies distinctes, non expliquées par le modèle de Bohr. Afin de rendre compte de la dualité onde-corpuscule de la matière, concept rendu nécessaire après les travaux de Max Planck et de Louis De Broglie, Erwin Schrödinger et Werner Heisenberg posèrent les fondements de la mécanique quantique. Cependant seuls les travaux de Paul Dirac en 1928, permirent de comprendre la structure fine de l'hydrogène. Fondée sur le travail de ses prédécesseurs, la théorie de Dirac décrit le comportement relativiste de l'électron, possédant intrinsèquement un spin. Ainsi la vitesse relativiste de l'électron, l'interaction entre le moment de spin de l'électron et son moment orbital ainsi que l'interaction de Darwin, sont autant de perturbations à l'hamiltonien non relativiste.

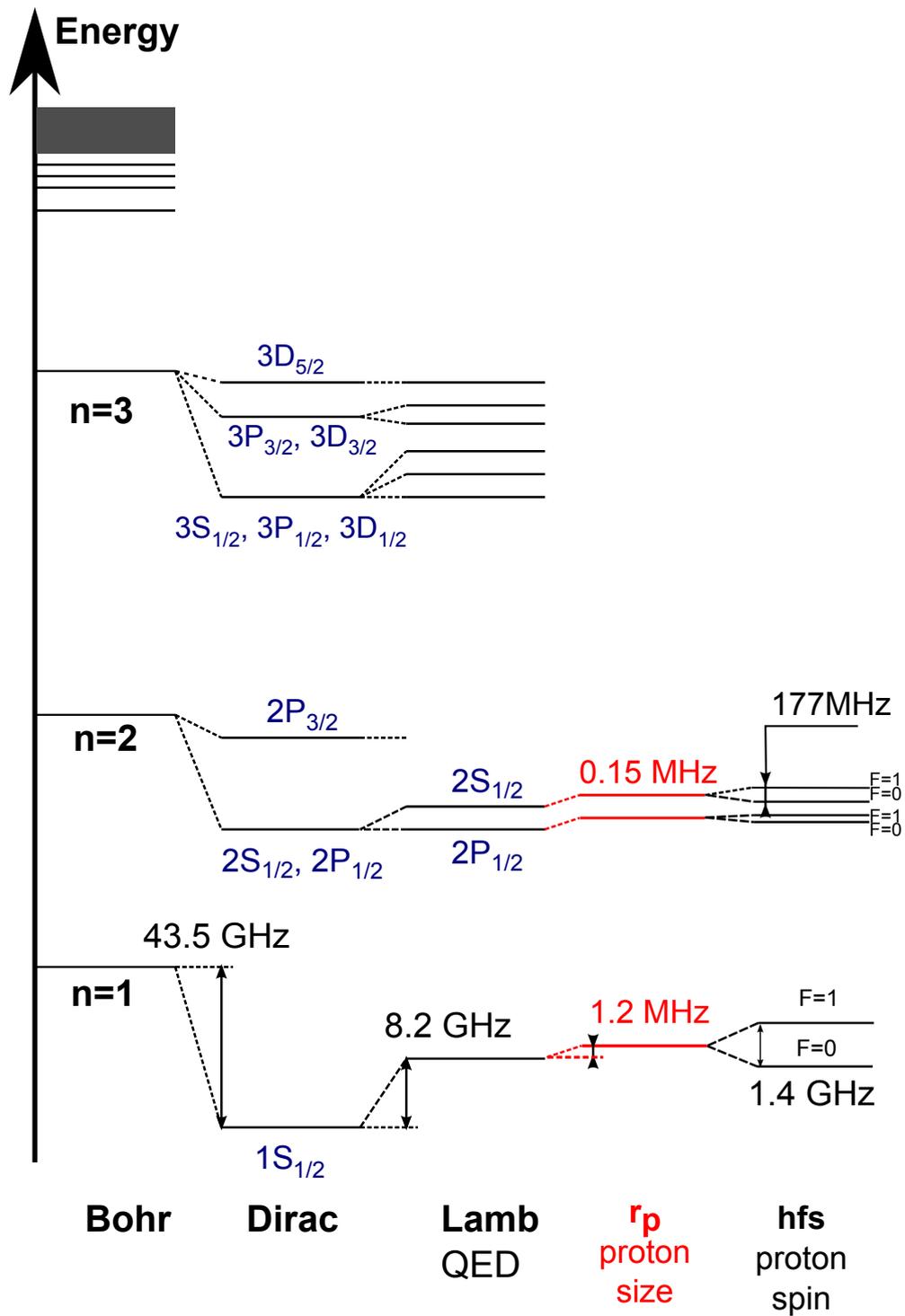


FIGURE 1.1: Niveaux d'énergie dans l'hydrogène pour  $n=1, 2$  et  $3$  (échelle d'énergie non respectée).

L'énergie de Dirac s'écrit sous la forme suivante :

$$E_D = m_e c^2 f(n, j) \quad (1.3)$$

$$\begin{aligned} \text{avec } f(n, j) &= \left[ 1 + \frac{(Z\alpha)^2}{\left(\sqrt{(j + \frac{1}{2})^2 - (Z\alpha)^2} + n - j - \frac{1}{2}\right)^2} \right]^{-\frac{1}{2}} \\ &\approx 1 - \frac{(Z\alpha)^2}{2n^2} - \frac{(Z\alpha)^4}{2n^3} \left( \frac{1}{j + \frac{1}{2}} - \frac{3}{4n} \right) + \dots \end{aligned} \quad (1.4)$$

où  $j$  est le moment angulaire total et où nous avons introduit la constante de structure fine  $\alpha$  telle que :

$$hcR_\infty = \frac{m_e c^2}{2} \alpha^2$$

Dans le cas de l'hydrogène, la théorie prédit ainsi que les niveaux de mêmes nombres quantiques  $n$  et  $j$  sont confondus, ce que contredira l'expérience 20 ans plus tard.

La quantification du champ électromagnétique est nécessaire pour décrire complètement les niveaux d'énergie de l'hydrogène. Dans le cadre de cette théorie quantique du champ, appelée l'électrodynamique quantique, l'électron dans le vide est "habillé" d'un champ électromagnétique et interagit avec celui-ci, ce qui communique à l'électron une énergie supplémentaire. Ces corrections dites "radiatives" lèvent la dégénérescence en  $l$  comme illustré sur la figure 1.1. La séparation entre les niveaux  $2S_{1/2}$  et  $2P_{1/2}$  fut la première observée et mesurée par Willis Lamb et son étudiant Robert Retherford en 1947 [LAMB1947]. Ces corrections radiatives sont ainsi historiquement appelées déplacement de Lamb.

Notons que dans tout autre système atomique constitué de plusieurs électrons, l'interaction électrostatique entre eux lève la dégénérescence en  $l$  sans même invoquer le vide...

### Ajustement des constantes fondamentales

La valeur des constantes fondamentales est donnée par un ajustement de type moindres carrés sur l'ensemble des données de la physique. Cet ajustement est réalisé par le sous-groupe "constantes fondamentales du comité des données pour la science et la technologie" (CODATA). La constante de Rydberg joue un rôle important dans cet ajustement car elle relie entre elles plusieurs constantes fondamentales :

$$R_\infty = \frac{\alpha^2 m_e c^2}{2hc} = \frac{m_e q^4}{8\epsilon_0^2 h^3 c} \quad (1.5)$$

Ainsi aujourd'hui, la meilleure estimation possible de la masse de l'électron n'est pas une mesure directe de cette quantité mais celle obtenue à partir de l'équation 1.5 en

Quantité	Symbole	Valeur numérique (CODATA 2010)	Incertitude relative
Vitesse de la lumière	$c$	299 792 458 m s <sup>-1</sup>	exacte
constante magnétique	$\mu_o$	$4\pi \times 10^{-7}$ N A <sup>-2</sup>	exacte
Constante gravitationnelle	$G$	$6,673\ 84(80) \times 10^{-11}$ m <sup>3</sup> kg <sup>-1</sup> s <sup>-2</sup>	$1,2 \times 10^{-4}$
Charge élémentaire	$e$	$1,602\ 176\ 565(35) \times 10^{-19}$ C	$2,2 \times 10^{-8}$
Masse de l'électron	$m_e$	$9,109\ 382\ 91(40) \times 10^{-31}$ kg	$4,4 \times 10^{-8}$
Masse du proton	$m_p$	$1,672\ 621\ 777(74) \times 10^{-27}$ kg	$4,4 \times 10^{-8}$
Rapport de masse	$m_e/m_p$	1836,152 672 45(75)	$4,1 \times 10^{-10}$
Constante de Boltzmann	$k$	$1,380\ 648\ 8(13) \times 10^{-23}$ J K <sup>-1</sup>	$9,1 \times 10^{-7}$
Constante de Planck	$h$	$6,626\ 069\ 57(29) \times 10^{-34}$ J s	$4,4 \times 10^{-8}$
Constante d'Avogadro	$N_A$	$6,022\ 141\ 29(27) \times 10^{23}$ mol <sup>-1</sup>	$4,4 \times 10^{-8}$

FIGURE 1.2: Quelques valeurs des constantes physiques fondamentales recommandées par le CODATA 2010.

utilisant les valeurs des constantes fondamentales. L'incertitude sur  $m_e$  est limitée par celle de  $h$  [MOHR2012]. De même, une valeur très précise de  $\alpha$  peut être obtenue à partir de la mesure de la vitesse de recul d'un atome, en utilisant l'équation 1.5 et des rapports de masse comme cela est fait dans notre équipe. Cette dernière mesure permet de tester l'électrodynamique quantique à un niveau jamais atteint [BOUCHENDIRA2011]. Les expériences de métrologie et cet ajustement permettent donc d'améliorer notre compréhension des phénomènes physiques tant du point de vue expérimental que théorique dans des domaines scientifiques très vastes. L'expérience décrite dans ce manuscrit participe à cet effort collectif.

### 1.1.2 Le déplacement de Lamb

Le déplacement de Lamb est la levée de la dégénérescence en  $l$  dans l'hydrogène. Pour le niveau  $n = 2$ , il se traduit par un intervalle en fréquence d'environ 1 GHz entre les niveaux  $2S_{1/2}$  et  $2P_{1/2}$ .

Autrefois cet intervalle était masqué par l'élargissement Doppler des raies optiques. En 1947, Willis E. Lamb et Robert C. Retherford découvrent et mesurent pour la première fois cet intervalle dans le domaine radio-fréquence. Le principe de leur expérience est le suivant : les molécules de dihydrogène sont thermiquement dissociées dans un four de tungstène, le niveau  $2S$  des atomes d'hydrogène ainsi formés est ensuite peuplé par bombardement électronique. Les auteurs mesurent la diminution du nombre de métastables  $2S$  en fonction de l'application d'un champ radiofréquence. Si celui-ci est résonnant, le niveau  $2P$ , de durée de vie de 1,6 ns, se mélange au niveau métastable  $2S$  ce qui réduit la durée de vie des atomes métastables. Ces expériences, effectuées en champ magnétique, permirent de mesurer les déplacements Zeeman de ces niveaux.

La découverte de cet effet, qui contredit la théorie de Dirac, fut aussitôt suivie de son explication théorique par Hans Albrecht Bethe. Il interprète ce déplacement de la façon suivante : le vide est soumis à des fluctuations du champ électromagnétique, c'est-à-dire à une création spontanée de particules virtuelles. Pour les états liés de l'hydrogène, ces fluctuations ont une influence sur le champ coulombien du noyau et modifient les niveaux d'énergie.

### 1.1.2.1 Origine physique du déplacement de Lamb

H. Bethe proposa une approche non relativiste pour expliquer le sens physique du déplacement de Lamb [BETHE1947]. Cette approche est cependant d'une puissance de prédiction étonnamment bonne.

Physiquement, l'électron émet et absorbe de façon continue des photons virtuels. L'énergie de ces photons virtuels peut prendre toutes les valeurs possibles et apporterait donc une contribution infinie à l'énergie de l'électron ! Il avait déjà été suggéré que l'interaction de l'électron avec le champ électromagnétique crée cette énergie infinie, idée qui avait donc vite été abandonnée. Pour faire converger ces intégrales, H. Bethe propose le raisonnement (simplifié) suivant : l'électron qui émet un photon, subit une énergie de recul. Le recul de l'électron et donc l'énergie du photon doit être petite comparée à la masse au repos de l'électron. Il introduit ainsi une limite supérieure  $K$  à l'énergie du photon virtuel, tel que  $K \approx m_e c^2$ .

L'énergie associée à cette émission et absorption de photons virtuels est appelée l'auto-énergie de l'électron (ou *self-energy* en anglais). Cette émission et absorption spontanée a lieu sur un certain volume centré sur l'électron. La charge de l'électron est donc répartie sur ce volume au lieu d'être ponctuelle. Ce volume  $\langle r^2 \rangle$  peut être approximé par la formule suivante (où  $c = h = 1$ ) [EIDES2007a] :

$$\langle r^2 \rangle \approx \frac{2\alpha}{\pi m_e^2} \ln(Z\alpha)^{-2} \quad (1.6)$$

Premièrement cet effet perturbe le potentiel coulombien à l'origine :

$$\delta V \approx \frac{2\pi}{3} Z\alpha \langle r^2 \rangle \delta(r) \quad (1.7)$$

Les électrons dans les états  $S$ , dont la fonction d'onde est centrée autour du proton avec une plus grande probabilité de présence au centre, sont ainsi les plus sensibles à cette correction apportée au potentiel.

Deuxièmement la charge de l'électron se trouve plus étendue autour de la source du potentiel coulombien. Cet effet diminue donc l'énergie de liaison de l'électron : le niveau  $2S_{1/2}$  a bien une énergie plus élevée que le niveau  $2P_{1/2}$ . Cette contribution principale

au déplacement de Lamb est schématisée par le diagramme de Feynman de la figure 1.3.

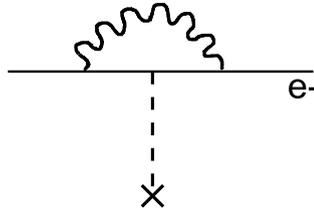


FIGURE 1.3: Diagramme de Feynman du terme dominant des contributions de l'auto-énergie de l'électron : celui-ci émet et absorbe le même photon. La source du potentiel coulombien (le proton) est représenté par une croix. Leur influence mutuelle est schématisée par le trait en pointillé, il représente l'échange d'un photon coulombien.

Une autre contribution majeure au déplacement de Lamb est la *polarisation du vide*. Selon la théorie de la QED, le vide est soumis à des productions spontanées de paires d'électrons et positrons. Ces électrons virtuels écrantent la charge du noyau. Or seuls les états S pénètrent cet écrantage et "voient" la charge réelle du noyau et donc un potentiel plus attractif. Cet effet a pour conséquence une énergie de liaison plus forte pour les états S. La contribution de la polarisation du vide est cependant plus faible que celle d'auto-énergie dans l'hydrogène. L'énergie du déplacement de Lamb est donc globalement positive.

La contribution principale de la polarisation du vide est schématisée par le diagramme de Feynman sur la figure 1.4.

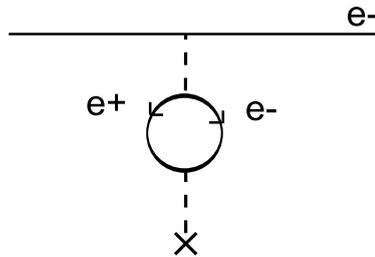


FIGURE 1.4: Diagramme de Feynman du terme dominant des contributions de la polarisation du vide.

### 1.1.2.2 Les différentes contributions au déplacement de Lamb

La quantification du champ électromagnétique (ou seconde quantification) est mise en place dans le cadre de la théorie de l'électrodynamique quantique. Les fluctuations quantiques du champ sont intégrées à l'énergie totale de l'atome comme des perturbations ou contributions à l'énergie de Dirac.

Toutes ces contributions électrodynamiques peuvent s'exprimer comme le développement d'une série en puissance sur trois facteurs : la constante de structure fine  $\alpha$ , le produit  $Z\alpha$  et le rapport de masse  $m_e/M$  où  $M = m_e + m_N$ .

### La masse finie du noyau

Comme nous l'avons vu plus haut, l'énergie de Dirac évolue en puissance de  $(Z\alpha)$ . Ces corrections sont dites corrections relativistes ou de liaison (*binding corrections* en anglais). Les termes d'ordres supérieurs correspondent bien à l'expansion relativiste de sa théorie (voir équation 1.4).

Une première correction à l'énergie de Dirac doit être apportée pour prendre en compte la masse finie  $m_N$  du noyau. Pour le terme en  $(Z\alpha)^2$  la masse de l'électron peut être simplement remplacée par la masse réduite  $m_r = \frac{m_e m_N}{m_e + m_N}$ . La dépendance de la masse est légèrement plus complexe pour le terme en  $(Z\alpha)^4$ . L'énergie totale jusqu'au terme en  $\alpha^4$  s'exprime de la façon suivante [BARKER1955] :

$$E_M = Mc^2 + [f(n, j) - 1]m_r c^2 - [f(n, j) - 1]^2 \frac{m_r^2 c^2}{2M} + \frac{(Z\alpha)^4 m_r^3 c^2}{2n^3} \frac{1 - \delta_{l0}}{m_N^2 \kappa(2l + 1)} + \dots \quad (1.8)$$

Avec  $M = m_e + m_N$  et  $\kappa = (-1)^{j-l+\frac{1}{2}}(j + \frac{1}{2})$ .

Les termes d'ordres supérieurs sont négligeables [SAPIRSTEIN1990]. On remarque que la correction de la masse finie du noyau d'ordre supérieur apporte une petite contribution dépendante du nombre quantique  $l$ . Ce terme est très faible et contribue au déplacement de Lamb à hauteur de -2 kHz.

L'expression de la principale correction de masse réduite [ERICKSON1977] se déduit simplement de l'équation 1.8, elle s'écrit avec nos notations comme :

$$\frac{-\alpha^4 m_r^2 c^2}{8n^4 M} \quad (1.9)$$

Il est clair que cette correction ne contribue pas au déplacement de Lamb (c'est-à-dire à l'intervalle entre niveaux de même  $n$  et  $j$  mais de  $l$  différents). L'expression est valable dans la limite non-relativiste où l'énergie de liaison atomique  $E$  est beaucoup plus petite que l'énergie totale au repos des particules en question, soit  $E \ll (m_e c^2 + m_N c^2)$ .

### Les corrections radiatives

Les contributions qui dépendent uniquement des paramètres  $\alpha$  et  $Z\alpha$  sont appelées les *corrections radiatives*. La puissance de  $\alpha$  indique le nombre de boucles utilisées de la théorie QED (soit le nombre de photons émis et absorbés pris en compte dans le calcul). Ces corrections purement radiatives ne prennent pas en compte le recul du noyau et peuvent être traitées dans le cadre d'un électron lié dans un champ externe.

Les corrections radiatives dominantes sont celles dont j'ai donné précédemment une interprétation physique, à savoir les termes d'auto-énergie de l'électron et de la polarisation du vide à une boucle. Elles s'expriment en fonction de  $\alpha(Z\alpha)^4$ .

**L'auto-énergie de l'électron.** La contribution principale de l'auto-énergie de l'électron à l'énergie totale est une correction à un photon et s'exprime suivant la formule (1.10). La fonction  $F(Z\alpha)$  s'exprime en puissances de  $(Z\alpha)$  et en puissances de  $\ln(Z\alpha)^{-2}$ . Ce dernier terme traduit la dépendance logarithmique entre l'énergie de l'électron libre et celle de l'électron lié. Les corrections radiatives sont donc proportionnelles au rapport de l'énergie de l'électron au repos sur son énergie de liaison caractéristique (l'énergie de Bohr) soit  $m_e/m_r(Z\alpha)^2 = \sigma(Z\alpha)^{-2}$  [SAPIRSTEIN1990]. L'effet dominant de la masse finie du noyau sur les termes d'auto-énergie est ainsi pris en compte par le rapport  $\sigma$  et les facteurs  $(\frac{m_r}{m_e})^n$ .

$$E_{SE} = \frac{\alpha}{\pi} \frac{(Z\alpha)^4}{n^3} F(Z\alpha) m_e c^2 \times \left(\frac{m_r}{m_e}\right)^3 \quad (1.10)$$

où

$$\begin{aligned} F(Z\alpha) = & A_{40} + A_{41} \ln[\sigma(Z\alpha)]^{-2} + A_{50}(Z\alpha) \\ & + A_{62}(Z\alpha)^2 \ln^2[\sigma(Z\alpha)] + A_{61}(Z\alpha)^2 \ln[\sigma(Z\alpha)]^{-2} \\ & + G_{SE}(Z\alpha)(Z\alpha)^2 \end{aligned}$$

Le terme  $A_{40}$  fait intervenir le logarithme de Bethe  $\ln(k_0(n, l))$ , une somme infinie sur tous les états donnant une contribution prépondérante au continuum. Ce logarithme a été calculé très précisément dans l'hydrogène [DRAKE1990].

Le terme  $G_{SE}(Z\alpha)$  répertorie des contributions non logarithmiques en puissances de  $m_e$  et  $(Z\alpha)^n$  d'ordre  $n \geq 6$ . Ce terme fut calculé numériquement pour les états S et P de nombre quantique principal  $n \leq 4$  via un calcul non perturbatif de l'auto-énergie [JENTSCHURA2001]. Ces calculs sont très importants car le processus de renormalisation (l'auto-énergie étant un effet résiduel qui correspond à la différence entre l'auto-énergie divergente d'un électron lié avec celle aussi divergente d'un électron libre) aboutit à une perte de précision du calcul.

Cependant comme la difficulté des calculs numériques grandit avec le nombre quantique  $n$ , une autre stratégie de calcul doit être envisagée. Pour d'importantes charges nucléaires  $Z$ , l'approche perturbative n'est plus correcte. Le terme  $F(Z\alpha)$  fut donc complètement calculé numériquement (pour  $Z = 10, 20$  et  $30$  et  $n = 1$  et  $2$ ). Sa valeur à  $Z = 1$  est ensuite évaluée par extrapolation.

Les valeurs des coefficients  $A_{ij}$  et du terme  $G_{SE}(Z\alpha)$  sont répertoriées par le CODATA 2010 dans l'article [MOHR2012]. L'incertitude théorique sur ce terme est de l'ordre du hertz.

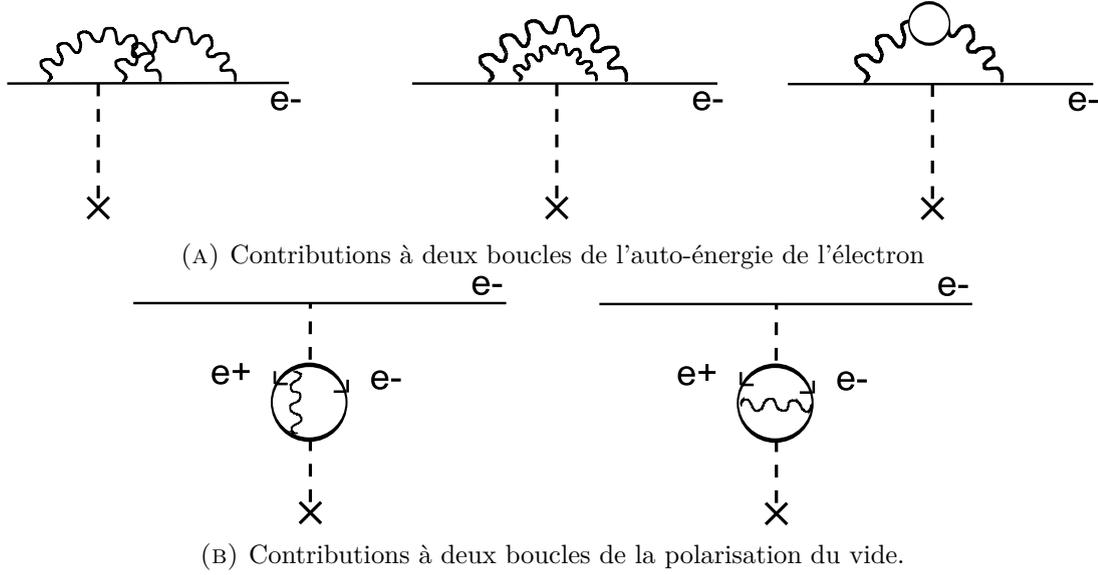


FIGURE 1.5: Diagrammes de Feynmann des corrections radiatives à deux boucles. Différentes positions du propagateur du photon coulombien (représenté en tirets) doivent être envisagées.

**La polarisation du vide.** Le déplacement d'énergie due à la polarisation du vide s'écrit :

$$E_{VP} = \frac{\alpha (Z\alpha)^4}{\pi n^3} H(Z\alpha) m_e c^2 \times \left(\frac{m_r}{m_e}\right)^3 \quad (1.11)$$

où

$$H(Z\alpha) = V_{40} + V_{50}(Z\alpha) + V_{61}(Z\alpha)^2 \ln[\sigma(Z\alpha)]^{-2} \\ + G_{VP}^{(1)}(Z\alpha)(Z\alpha)^2 + G_{VP}^{(R)}(Z\alpha)(Z\alpha)^2$$

Le potentiel de Uehling  $G_{VP}^{(1)}$  représente la correction apportée par la polarisation du vide au potentiel de Coulomb, ce qui ajoute une divergence ultra-violette à celui-ci : à grande distance du noyau le potentiel de Uehling décroît exponentiellement et très proche du noyau il suit la loi  $\ln(r)/r$ . Cette divergence disparaît par le processus de renormalisation [UEHLING1935].

La faible contribution de Wichmann-Kroll  $G_{VP}^{(R)}$  corrige enfin l'erreur induite par le processus de renormalisation. Cette erreur n'est plus négligeable pour de forts champs de polarisation comme c'est le cas des atomes muoniques ou des éléments lourds ( $Z$  grand) [WICHMANN1956].

**Les corrections à deux photons** correspondent aux corrections à deux boucles dans les diagrammes de Feynman, représentés sur la figure 1.5. Ces corrections se caractérisent

par une dépendance de l'énergie en  $\alpha^2$ .

$$E_{2R} = \left(\frac{\alpha}{\pi}\right)^2 \frac{(Z\alpha)^4}{n^3} F^{(4)}(Z\alpha) m_e c^2. \quad (1.12)$$

où

$$\begin{aligned} F^{(4)}(Z\alpha) = & B_{40} + B_{50}(Z\alpha) + B_{63}(Z\alpha)^2 \ln^3(Z\alpha)^{-2} \\ & + B_{62}(Z\alpha)^2 \ln^2(Z\alpha)^{-2} \\ & + B_{61}(Z\alpha)^2 \ln(Z\alpha)^{-2} + B_{60}(Z\alpha)^2 \\ & + \dots \end{aligned}$$

Des valeurs très précises furent obtenues pour tous les termes  $B_{ij}$  à l'exception du terme  $B_{60}$  à l'ordre  $\alpha^2(Z\alpha)^6$  dont le calcul analytique est bien plus ardu. La valeur retenue de ce terme est la moyenne entre le résultat du calcul analytique (connu à seulement 15% près) et l'extrapolation à  $Z = 1$  des calculs numériques effectués pour  $Z = 10$ . Le résultat est le suivant :

$$B_{60}(1S) = -81,3(19,7) \quad (1.13)$$

Le calcul de  $B_{60}$  est toujours un sujet de recherche parmi la communauté des théoriciens en QED et ajoute une incertitude d'environ 2 kHz sur le déplacement de Lamb du niveau  $1S$ . La source d'erreur des corrections à deux photons vient ainsi des termes  $\alpha^2(Z\alpha)^n$ ,  $n \geq 6$ .

**Les corrections à trois ou quatre photons** Le calcul de ces corrections sont dans un état préliminaire car les calculs sont très complexes. Le terme  $C_{50}$  du développement en série en  $Z\alpha$  des corrections à trois photons, d'ordre  $\alpha^3(Z\alpha)^5$ , est par exemple connu pour être la plus grande correction qui n'a encore jamais été évaluée. Il vaudrait d'environ 1 kHz pour le niveau  $1S$  et 0,1 kHz pour le niveau  $2S$  [EIDES2007b].

Enfin les corrections à quatre photons apportent une correction de l'ordre de la dizaine de hertz pour le niveau  $1S$ .

### Les corrections de recul

Les corrections de recul relativiste prennent en compte la masse finie du noyau et dépendent du rapport de masse  $m_e/M$  et  $Z\alpha$ . Elles décrivent les contributions à l'énergie qui ne peuvent pas être prise en compte via le facteur de masse réduite comme nous l'avons vu au paragraphe 1.1.2.2. Ces corrections nous amènent pour la première fois à étudier un vrai problème relativiste à deux corps.

Les corrections de recul radiatif, quant à elles, dépendent des trois paramètres  $\alpha$ ,  $Z\alpha$  et  $m/M$ . L'ordre dominant, en  $\alpha(Z\alpha)^5(m_e/M)$ , vaut environ 12 kHz pour le niveau  $1S$ .

### Les corrections dues à la taille finie du proton

Enfin les effets de l'interaction faible et forte sont réunis sous le nom des corrections non-électromagnétiques. La plus grande contribution de l'interaction forte provient de la taille finie du proton.

Lorsque l'électron se situe "dans" le proton, il ne ressent plus son potentiel coulombien et est donc globalement moins lié à l'atome. Cette interprétation physique du phénomène nous permet de comprendre que cet effet diminue l'énergie de liaison de l'atome; la correction à l'énergie due à la taille finie du proton est donc de signe positif et affecte principalement les états  $S$  (dont la probabilité d'être "dans" le proton est plus grande que n'importe où ailleurs).

Le terme dominant s'exprime ainsi :

$$E_{NS}^{(0)} = \frac{2}{3} \left( \frac{m_r}{m_e} \right)^3 \frac{(Z\alpha)^2}{n^3} m_e c^2 \left( \frac{Z\alpha r_N}{\lambda_c} \right)^2 \delta_{l0}. \quad (1.14)$$

où  $r_N$  est le rayon du noyau.

Le traitement du proton comme une charge non-ponctuelle ajoute de plus une correction à la polarisation du vide et à l'auto-énergie de l'électron.

### Valeurs numériques du déplacement de Lamb

Dans les tableaux ci-dessous sont énumérées les contributions principales au déplacement de Lamb du niveau  $1S$ ,  $2S$  et  $3S$ , calculées avec les constantes physiques répertoriées dans le rapport CODATA 2010 [MOHR2012] et avec la valeur du rayon du proton déduite de l'expérience de diffusion la plus précise à ce jour [BERNAUER2010] :

$$r_p = 0,8791(79) \text{ fm} \quad (1.15)$$

<b>Contributions au <i>Lamb shift</i></b>	<b>Valeur pour le niveau 1S</b>	<b>Incertitude</b>
Auto-énergie AE (une boucle)	8 383 339,472 kHz	< 0,001 kHz
Polarisation du vide PV (une boucle)	-214 816,607 kHz	0,002 kHz
Corrections du recul	2 401,701 kHz	0,781 kHz
Taille du proton	1 209,292 kHz	<b>21,7</b> kHz
Corrections à deux boucles	726,262 kHz	0,929 kHz
Corrections de recul radiatif	-12,321 kHz	0,742 kHz
Polarisation du vide (muon)	-5,068 kHz	< 0,001 kHz
Polarisation du vide (hadron)	-3,401 kHz	0,076 kHz
Auto-énergie du proton	4,618 kHz	0,161 kHz
Corrections à trois boucles	1,830 kHz	0,986 kHz
Corrections de la taille du noyau à AE et PV	-0,143 kHz	0,002 kHz
Polarisation du proton	-0,070 kHz	0,013 kHz
Déplacement de Lamb du niveau 1S	8 172 846( <b>22</b> ) kHz	

<b>Contributions au <i>Lamb shift</i></b>	<b>Valeur pour le niveau 2S</b>	<b>Incertitude</b>
Auto-énergie AE (une boucle)	1 071 281,003 kHz	< 0,001 kHz
Polarisation du vide PV (une boucle)	-26 853,104 kHz	< 0,001 kHz
Corrections du recul	340,312 kHz	0,098 kHz
Taille du proton	151,169 kHz	2,716 kHz
Corrections à deux boucles	91,336 kHz	0,101 kHz
Corrections de recul radiatif	-1,540 kHz	0,092 kHz
Polarisation du vide (muon)	-0,633 kHz	< 0,001 kHz
Polarisation du vide (hadron)	-0,425 kHz	0,010 kHz
Auto-énergie du proton	0,584 kHz	0,020 kHz
Corrections à trois boucles	0,229 kHz	0,123 kHz
Corrections de la taille du noyau à AE et PV	< 0,001 kHz	< 0,001 kHz
Polarisation du proton	-0,009 kHz	0,002 kHz
Déplacement de Lamb du niveau 2S	1 045 009( <b>3</b> ) kHz	

Contributions au <i>Lamb shift</i>	Valeur pour le niveau 3S	Incertitude
Auto-énergie AE (une boucle)	319 185,782 kHz	< 0,001 kHz
Polarisation du vide PV (une boucle)	-7 956,484 kHz	< 0,001 kHz
Corrections du recul	103,618 kHz	0,029 kHz
Taille du proton	44,790 kHz	0,801 kHz
Corrections à deux boucles	27,140 kHz	0,034 kHz
Corrections de recul radiatif	-0,456 kHz	0,027 kHz
Polarisation du vide (muon)	-0,188 kHz	< 0,001 kHz
Polarisation du vide (hadron)	-0,126 kHz	0,003 kHz
Auto-énergie du proton	0,174 kHz	0,006 kHz
Corrections à trois boucles	0,068 kHz	0,037 kHz
Corrections de la taille du noyau à AE et PV	< 0,001 kHz	< 0,001 kHz
Polarisation du proton	-0,009 kHz	< 0,001 kHz
Déplacement de Lamb du niveau 3S	311 404(1) kHz	

### 1.1.3 La structure hyperfine

Le spin du noyau est à l'origine de la structure hyperfine de l'hydrogène. L'écart hyperfin du niveau fondamental de l'hydrogène est une des mesures les plus précises de la physique, avec une incertitude relative de  $7 \times 10^{-13}$ . Les calculs théoriques sont quant à eux limités par la distribution de charge du proton et atteignent une précision de  $10^{-6}$  [KARSHENBOIM2002].

Dans le tableau ci-dessous sont énumérés les écarts hyperfins  $nS_{1/2}(F=1) - nS_{1/2}(F=0)$  mesurés expérimentalement dans l'hydrogène.

Niveau	Ecart hyperfin	références
$1S_{1/2}$	1 420 405 751,768(1) Hz	[HELLWIG1970]
$2S_{1/2}$	177 556 785(29) Hz	[ROTHERY2000]
$2S_{1/2}$	177 556 834,3(6,7) Hz	[KOLACHEVSKY2009]

En première approximation l'énergie hyperfine évolue en fonction du nombre quantique  $n$  comme  $1/n^3$ . De la même manière que pour le déplacement de Lamb, il faut alors ajouter des corrections relativistes et radiatives  $\epsilon$ .

$$\Delta E_{HFS} = \frac{E_F}{n^3} (1 + \epsilon) \quad (1.16)$$

où  $E_F$  représente l'énergie de Fermi, la principale contribution non relativiste à l'écart hyperfin.

La contribution relativiste prépondérante a été établie par G. Breit [ERICKSON1965] et vaut :

$$\begin{aligned} \epsilon_{Br}(nS) = & \frac{11n^2 + 9n - 11}{6n^2} (Z\alpha)^2 \\ & + \frac{203n^4 + 225n^3 - 134n^2 - 330n + 189}{72n^4} (Z\alpha)^4 + \dots \end{aligned} \quad (1.17)$$

Dans le tableau ci-dessous sont répertoriées les corrections de Breit aux ordres explicités à l'équation 1.18 pour les niveaux  $S$  :

Niveau	valeur
$\epsilon_{Br}(1S)$	$7,988\ 830\ 576 \times 10^{-5}$
$\epsilon_{Br}(2S)$	$1,131\ 690\ 755 \times 10^{-4}$
$\epsilon_{Br}(3S)$	$1,134\ 156\ 355 \times 10^{-4}$

La correction de Breit n'est pas suffisante pour expliquer complètement la valeur expérimentale de l'écart hyperfin du niveau  $2S$  à partir du niveau  $1S$  (204 Hz séparent ce modèle correctif des mesures expérimentales). Cependant le modèle de Breit, qui reste la correction principale à l'écart de la loi en  $1/n^3$ , prédit un écart à cette loi de seulement  $2,5 \times 10^{-7}$  entre les niveaux  $2S$  et  $3S$ , ce qui correspond à 13 Hz pour le niveau  $3S$ .

Afin de déterminer l'écart hyperfin du niveau  $3S$  la méthode suivie est ainsi la suivante. On déduit l'énergie de Fermi du niveau  $2S$  à partir de l'équation (1.16) en utilisant la moyenne pondérée des données expérimentales sur le niveau  $2S$  ainsi que la correction de Breit  $\epsilon_{Br}(2S)$ . On déduit alors l'écart hyperfin du niveau  $3S$  avec l'énergie de Fermi trouvée précédemment et en utilisant la correction de Breit  $\epsilon_{Br}(3S)$ . La valeur trouvée est la suivante :

$$\Delta E_{HFS}(3S) = 52\ 609\ 444,6 \text{ Hz} \quad (1.18)$$

À partir de l'énergie de Fermi déduite de la valeur expérimentale de l'écart hyperfin du niveau  $1S$ , nous déduisons une autre valeur de l'écart hyperfin du niveau  $3S$  :

$$\Delta E_{HFS}(3S) = 52\ 609\ 384,1 \text{ Hz} \quad (1.19)$$

Les deux valeurs concordent à 60 Hz près. En suivant une loi en  $1/n^3$  uniquement, cette différence aurait valu près de 2 kHz. En suivant l'argumentaire précédent, nous retenons la valeur (1.18) pour l'écart hyperfin du niveau  $3S$  avec une incertitude de l'ordre de la dizaine de hertz.

## 1.2 La spectroscopie de l'atome d'hydrogène

### 1.2.1 Une spectroscopie de haute résolution

La spectroscopie de l'atome d'hydrogène a donc commencé avec l'observation du spectre du soleil au moyen d'objectifs achromatiques. Une avancée majeure est due à J. von Fraunhofer (1787-1826) qui établit une liste des différentes raies observées. Le premier spectroscope, comprenant entre autres un prisme et une table graduée voit le jour en 1851. Il est dès lors possible d'observer simultanément deux spectres et ainsi de les comparer. Vers la fin de ce siècle, des progrès importants ont pu être réalisés par l'étude de l'hélium ionisé  $\text{He}^+$  (l'effet Doppler dû à l'agitation thermique des atomes est diminué de par sa masse plus élevée).

La période 1900-1930 voit la multiplication des spectres analysés ainsi que le développement de nouvelles techniques de spectroscopie. Les atomes sont excités par un continuum lumineux (méthode de "Hook" [ROZHDESTVENSKI1912]), par la lumière d'une lampe spectrale contenant les mêmes atomes, ou bien par bombardement électronique. En ce qui concerne l'hydrogène, les décharges gazeuses permettent de dissocier la molécule de dihydrogène  $\text{H}_2$ . L'élargissement Doppler des raies limitait cependant toujours la précision des mesures spectroscopiques.

À partir des années 30, des méthodes ont été développées pour accéder à la largeur naturelle des niveaux (l'effet Hanle [HANLE1924]), ou s'affranchir de cet effet Doppler (la méthode de double résonance [BROSSEL1952], les méthodes de spectroscopie hertzienne sur jet atomique [RABI1939],...).

Le développement des masers puis des lasers dans les années 60 a révolutionné la spectroscopie jusqu'à lui donner son visage actuel. Des transitions non atteignables au vu des faibles puissances des lampes spectrales, le deviennent. Des techniques révolutionnaires pour s'affranchir de l'élargissement Doppler voient le jour.

**La spectroscopie d'absorption saturée** La méthode de la spectroscopie d'absorption saturée a été introduite par T.W. Hänsch et C. Bordé [HÄNSCH1972][BORDÉ1970]. Le principe est le suivant, les atomes dans une vapeur sont soumis à deux faisceaux lasers contrapropageants de même fréquence : un faisceau pompe intense qui sature la transition et un faisceau sonde dont on mesure l'absorption. Seuls les atomes ayant une vitesse nulle seront résonants simultanément avec les deux faisceaux. L'observateur verra donc une diminution de l'absorption à résonance pour les atomes de vitesse nulle. Ce signal étroit se superpose à un fond large d'absorption pour l'ensemble des atomes. Deux ans plus tard, cette technique a permis un gain d'un ordre de grandeur sur la précision de la constante de Rydberg. L'équipe de T.W. Hänsch mesura la raie Balmer  $\alpha$

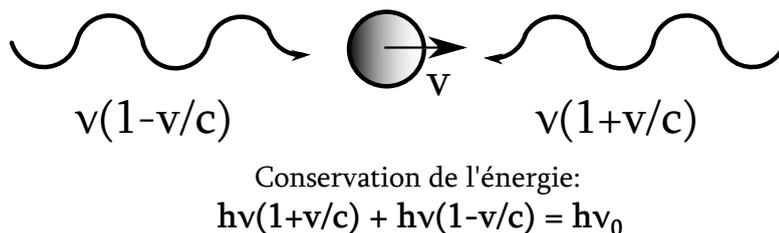


FIGURE 1.6: Spectroscopie à deux photons sans effet Doppler. Fréquences vues par l'atome et condition de résonance.

et déduit la valeur de la constante de Rydberg suivante [HÄNSCH1974] :

$$R_\infty = 109\,737,314\,3(10) \text{ cm}^{-1} \quad (1.20)$$

**La spectroscopie à deux photons** La probabilité d'absorption à deux photons a été théoriquement étudiée dès 1931 [GOPPERT-MAYER1931]. Il a fallu le développement de lasers puissants (d'abord en impulsions puis continus) pour sa mise en pratique expérimentale. Au Laboratoire Kastler Brossel (anciennement le Laboratoire de Spectroscopie Hertzienne de l'E.N.S.) F. Biraben, B. Cagnac et G. Grynberg, ont joué un rôle majeur dans le développement de cette technique avec des lasers continus [BIRABEN1979]. Notons que les mesures actuelles les plus précises sur l'atome hydrogène utilisent toujours cette technique de spectroscopie.

Le principe est le suivant : les atomes sont soumis à deux faisceaux lasers contre-propageants dont la fréquence  $\nu$  est la moitié de celle de la fréquence de la transition atomique ciblée (et interdite à un photon). Dans le référentiel d'un atome doté d'une vitesse longitudinale  $v$ , la fréquence du faisceau laser se propageant dans la même direction est décalée vers le rouge et vaut :  $h\nu(1 - \frac{v}{c})$ , tandis que la fréquence du faisceau se propageant dans le sens inverse vaut :  $h\nu(1 + \frac{v}{c})$ . L'atome est résonnant simultanément avec les deux ondes ; l'effet Doppler (du premier ordre) est éliminé. Le schéma 1.6 illustre cette compensation.

Les premières mesures de la constante de Rydberg avec cette méthode n'auront lieu qu'en 1986 dans les groupes de Stanford [HILDUM1986] et de Southampton [BARR1986] ainsi que dans notre laboratoire sur les transitions  $2S - nD$  ( $n = 8,10$ ) [BIRABEN1986]. Ainsi en 1986, l'incertitude relative de la constante de Rydberg déduite de la spectroscopie à deux photons de l'atome d'hydrogène est  $5 \times 10^{-10}$ . Plusieurs ordres de grandeur ont été gagnés ! En 1989, une nouvelle série de mesures sur les transitions  $2S - nS/D$  ( $n=8, 10$  et  $12$ ) dans notre équipe permet d'améliorer l'incertitude relative à  $1,6 \times 10^{-10}$ . Ces premières mesures de fréquences s'appuyaient alors sur des *mesures interférométriques*. Le laser de fréquence inconnue était comparé interférométriquement à l'aide d'un Fabry-Perot étalon, avec un deuxième laser dont la fréquence est stabilisée sur une raie atomique bien mesurée par ailleurs.

Notre équipe choisit d'utiliser comme laser étalon, un laser hélium-néon stabilisé sur une raie de l'iode. Les détails de cette méthode sont très bien décrits dans la thèse de Jean-Claude Garreau [GARREAU1989]. Finalement, c'est la fréquence absolue du laser étalon, connue avec une incertitude relative de  $1,6 \times 10^{-10}$ , qui limita la précision de la détermination de la constante de Rydberg. Le résultat est le suivant [BIRABEN1989] :

$$R_\infty = 109\,737,315\,709(18) \text{ cm}^{-1} \quad (1.21)$$

Il apparut donc indispensable d'améliorer les mesures de fréquence. L'équipe de métrologie du laboratoire Kastler Brossel et toute la communauté des spectroscopistes s'y employèrent avec une patience et une ingéniosité remarquables. Le défi expérimental devient maintenant la mesure de la fréquence des lasers.

## 1.2.2 Mesurer les fréquences optiques

### Les chaînes de fréquences

Mesurer une grandeur c'est comparer cette grandeur à une référence. Depuis 1967, la référence absolue de fréquence est l'horloge à césium 133. Sa fréquence définie à partir de l'écart entre niveaux hyperfins ( $F = 3 - F = 4$ ) du niveau fondamental vaut exactement 9 192 631 770 Hz et on ne savait comparer que deux fréquences séparées de moins de quelques GHz.

Ainsi, en 1990, pour mesurer une fréquence optique ( $\sim 4 \times 10^{14}$  Hz), il fallait soit multiplier la fréquence micro-ondes soit diviser la fréquence optique par 40 000 ! Alors que dans le domaine micro-onde les processus non linéaires pour multiplier les fréquences sont très efficaces, dans le domaine optique ils le sont peu. Ainsi les seuls dispositifs non linéaires disponibles dans le domaine optique sont le doublage et la somme de fréquences. Il a donc fallu construire des chaînes de fréquences complexes comportant plusieurs lasers pour patiemment multiplier les fréquences.

La réalisation de ces chaînes mobilisait de nombreux dispositifs et une bonne partie du laboratoire. Ainsi en 1992, au laboratoire LPTF (aujourd'hui le SYRTE), la fréquence absolue du laser HeNe stabilisé sur l'iode (HeNe/I<sub>2</sub>) a été remesurée en deux étapes : la fréquence du laser HeNe est mesurée à partir de la fréquence d'un laser à CO<sub>2</sub> stabilisé sur la molécule OsO<sub>4</sub>, qui est lui-même comparé à l'horloge à césium [ACEF1993].

La fréquence absolue du laser HeNe/I<sub>2</sub> était ainsi mesurée avec une incertitude relative de  $1,2 \times 10^{-11}$  [ACEF1993]. L'équipe tira ensuite parti de la quasi-coïncidence de la fréquence à deux photons des transitions  $2S - 8D$  à 778 nm ( $\nu = 385$  THz) avec la différence en fréquence entre le laser étalon HeNe/I<sub>2</sub> à 633 nm ( $\nu = 473$  THz) et le laser HeNe asservi sur une raie du méthane à 3,39  $\mu\text{m}$  ( $\nu = 88,4$  THz). Les deux lasers étalons

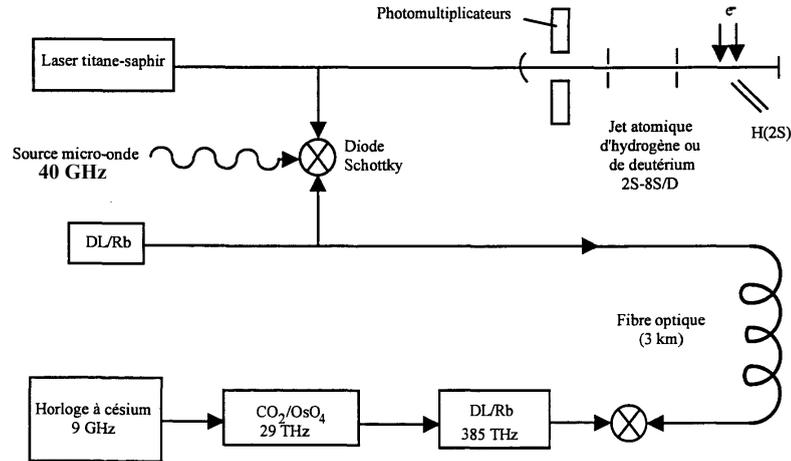


FIGURE 1.7: Schéma de l'expérience pour mesurer la transition  $2S - 8S/D$  en 1996 au LKB. Utilisation du laser étalon DL/Rb, dont la fréquence est comparée à l'horloge atomique via les lasers DL/Rb et  $\text{CO}_2/\text{OsO}_4$  construits au laboratoire LPTF (ex LNE-SYRTE).

étant de précision relative similaire, la fréquence d'excitation à deux photons peut alors être retrouvée avec la relation suivante :

$$\nu(2S - 8S/D) = \nu(\text{HeNe}/\text{I}_2) - \nu(\text{HeNe}/\text{CH}_4) + 89 \text{ GHz} \quad (1.22)$$

Une première mesure des fréquences des transitions  $2S - 8S/D$  de l'hydrogène a été faite en mesurant l'écart résiduel de fréquence de 89 GHz avec un interféromètre de Fabry-Perot. L'incertitude sur la constante de Rydberg gagne quasiment un ordre de grandeur et vaut [NEZ1992] :

$$R_\infty = 109\,737,315\,683\,0(31) \text{ cm}^{-1} \quad (1.23)$$

Ensuite une source micro-onde à 89 GHz et une diode Schottky ont permis de réaliser le chaînon manquant à la chaîne de fréquence dans notre laboratoire. En 1993, l'équipe de F. Biraben a ainsi réalisé la première mesure absolue de fréquence (c'est à dire sans dispositif interférométrique) d'une transition optique de l'atome d'hydrogène [NEZ1993b]. Cette avancée a permis d'améliorer l'incertitude sur la constante de Rydberg à  $2,2 \times 10^{-11}$ , dont la valeur est :

$$R_\infty = 109\,737,315\,683\,4(24) \text{ cm}^{-1} \quad (1.24)$$

Le laser étalon HeNe/ $\text{I}_2$  sera détrôné cette même année par une diode laser asservie sur une transition hyperfine  $5S_{1/2} - 5D_{5/2}$  du rubidium (DL/Rb).

Ce nouvel étalon qui se trouve à seulement 40 GHz de la transition  $2S-8S/D$ , présente des qualités métrologiques 10 fois meilleures avec une précision relative de l'ordre de  $10^{-12}$ .

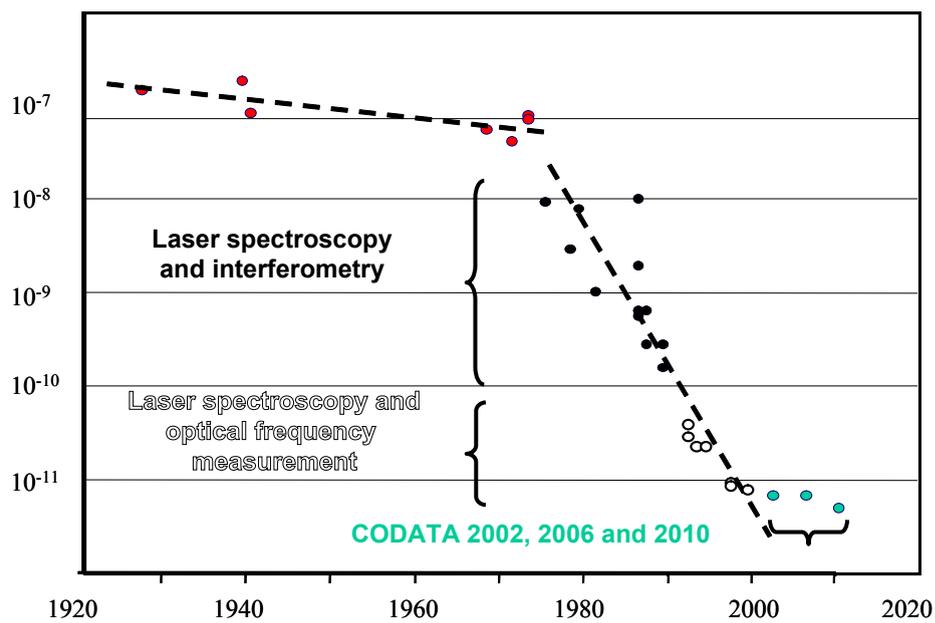


FIGURE 1.8: Évolution de l'incertitude relative de la constante de Rydberg ( $R_\infty$ ) au cours des années. Malgré les améliorations successives des mesures de la transition  $1S-2S$ , l'incertitude sur  $R_\infty$  a peu évolué car il faut aussi une amélioration de l'incertitude d'une autre transition dans l'hydrogène pour extraire  $R_\infty$  comme nous le verrons par la suite. C'est un des objectifs de cette thèse.

Le développement de cet étalon de fréquence fut l'objet de la thèse de Béatrice de Beauvoir [DEBEAUVOIR1997a] et sera brièvement détaillé dans le chapitre 2. Ses travaux furent récompensés par une amélioration notable de la précision en obtenant la valeur ci-dessous de la constante de Rydberg avec une incertitude relative de  $10^{-11}$  [DEBEAUVOIR1997b]. Le schéma de mesure de fréquence, mis en place pendant la thèse de Béatrice de Beauvoir, est représenté en figure 1.7.

$$R_{\infty} = 109\,737,315\,685\,6(11) \text{ cm}^{-1} \quad (1.25)$$

### 1.2.2.1 Les peignes de fréquences

La découverte des peignes de fréquences peu avant l'an 2000, révolutionna la spectroscopie optique. Les impulsions lasers peuvent offrir un spectre large d'une octave. Les fréquences de ce spectre étant régulièrement espacées, elles offrent littéralement une règle de mesure pour les fréquences optiques. Le prix Nobel de physique de 2005 distingua les physiciens Theodor W. Hänsch et John L. Hall pour cette invention.

L'utilisation du peigne de fréquences dans notre équipe date de 2003 avec la thèse d'Olivier Arnault. Les mesures de mon travail de thèse ont été effectuées à l'aide d'un tel système. Son fonctionnement sera détaillé au chapitre 3.

Les améliorations successives de la précision de la constante de Rydberg sont résumées sur la figure 1.8.

## 1.2.3 Les mesures du déplacement de Lamb

### 1.2.3.1 Spectroscopie micro-onde

Comme le déplacement de Lamb varie en  $1/n^3$  (où  $n$  désigne le nombre quantique principal), il serait plus intéressant de mesurer directement le déplacement de Lamb le plus large c'est à dire celui de l'état fondamental  $L_{1S}$ . Bien évidemment, compte tenu de la structure atomique, la mesure directe de  $L_{1S}$  est impossible. Il est indispensable d'utiliser d'autres mesures de fréquences comme nous le verrons par la suite.

Au contraire, le déplacement de Lamb de l'état 2S peut être déduit des transitions  $2S_{1/2} - 2P_{1/2}$  ou  $2P_{3/2}$ , directement observables à l'aide de sources micro-ondes. Les expériences sur ces transitions sont répertoriées dans le tableau ci-dessous.

année	$\Delta E(2S_{1/2} - 2P_{1/2})$	Méthode
Lamb <i>et al</i> (1953) [TRIEBWASSER1953]	1 057,77(6) MHz	quenching
Robiscoe <i>et al</i> (1965) [TAYLOR1969]	1 057,855(63) MHz	quenching
Newton <i>et al</i> (1979) [NEWTON1979]	1 057,892(20) MHz	excitation RF
Lundeen et Pipkin (1981)[LUNDEEN1981]	1 057 845(9) kHz	interférométrie atomique
Sokolov <i>et al</i> (1982) [SOKOLOV1982]	1 057 857,6(2,1) kHz	interférométrie atomique
Sokolov <i>et al</i> (1985) [PAL'CHIKOV1985]	1 057 851,4(1,9) kHz	interférométrie atomique
Hagley et Pipkin (1994) [HAGLEY1994]	1 057 839(12) kHz	de $\Delta E(2P_{3/2} - 2S_{1/2})$

Par interférométrie atomique, les auteurs de l'article [SOKOLOV1982] ont mesuré le déplacement de Lamb  $2S_{1/2} - 2P_{1/2}$ . Le principe de l'expérience est de réaliser un battement quantique entre les niveaux  $2S$  et  $2P$  en les mélangeant avec des champs électriques. Le signal détecté est la population atomique dans l'état  $2P$ . Il a pour forme une courbe exponentielle décroissante (due à la durée de vie du niveau  $2P$  :  $\tau_{2P}$ ) sur laquelle s'ajoute une modulation sinusoïdale dont la fréquence est proportionnelle à l'écart  $2S - 2P$ . Pour extraire la fréquence de la transition  $2S - 2P$ , il faut connaître très précisément  $\tau_{2P}$ . Comme c'est une valeur théorique de  $\tau_{2P}$  qui a été utilisée, ces mesures affichant une excellente précision sont très controversées.

Les auteurs de la référence [HAGLEY1994] ont mesuré la fréquence des transitions  $2S_{1/2} - 2P_{3/2}$  et  $2S_{1/2} - 2P_{1/2}$  par la méthode des franges de Ramsey. Ce sont les travaux [NEWTON1979, HAGLEY1994, LUNDEEN1981] qui sont pris en compte dans l'ajustement du déplacement de Lamb historique  $2S_{1/2} - 2P_{1/2}$  du CODATA. La moyenne pondérée des ces trois déterminations vaut :

$$\Delta(2S_{1/2} - 2P_{1/2}) = 1\,057\,848,5(6,7) \text{ kHz} \quad (1.26)$$

Cependant, ces mesures souffrent de la grande largeur naturelle des niveaux  $2P$  (100 MHz). Pour améliorer les mesures de fréquence dans l'hydrogène il est ainsi nécessaire de sonder les niveaux atomiques de plus grandes durées de vie comme les états  $S$  ou  $D$ . Ceci fut rendu possible par la technique d'excitation à deux photons qui a comme règle de sélection  $\Delta L = 0$  ou  $2$ . D'autre part cette technique permet d'utiliser des longueurs d'ondes plus accessibles expérimentalement, notamment depuis le développement de sources laser puissantes accordables dans l'ultra-violet.

### 1.2.3.2 Mesures du déplacement de Lamb du niveau 1S par comparaison de fréquence

Jusqu'en 1995, l'astuce était de mesurer la différence de fréquence entre deux transitions optiques qui sont dans un rapport simple, essentiellement 4. Comme l'énergie de Bohr varie en  $1/n^2$ , l'écart de fréquence ne contient que les corrections d'ordres supérieurs (structure hyperfine, corrections radiatives,...). Ainsi une détermination des déplacements de Lamb peut être faite à partir de transitions de l'hydrogène excitées optiquement.

L'équipe de Hänsch à Garching a par exemple mesuré simultanément les transitions  $1S - 2S$  et  $2S - 4S/D$ . Un laser à colorant à 486 nm est doublé pour obtenir les 243 nm nécessaires à l'excitation à deux photons de la transition  $1S - 2S$ . Un laser titane-saphir à 972 nm permet d'exciter les transitions  $2S - 4S/D$ . Le battement entre le laser titane-saphir doublé et le laser à colorant correspond à la différence  $E(4S/D - 2S) - \frac{1}{4}E(1S - 2S)$  et vaut quelques GHz. En omettant les corrections de recul du noyau et la structure hyperfine très bien connues, ce battement RF est directement relié aux corrections radiatives des niveaux impliqués :  $L(1S) - 5L(2S) + 4L(4S/D)$ .

Les déplacements de Lamb des niveaux  $2P$ ,  $4S$  et  $4D$  sont suffisamment bien connus théoriquement. En utilisant la valeur du déplacement de Lamb "classique" ( $2S - 2P$ ), l'équipe de Garching a pu déduire une valeur du déplacement de Lamb du niveau  $1S$  avec une incertitude de 60 kHz [WEITZ1995].

L'équipe de Yale aux Etats-Unis, a choisi de mesurer la différence entre la transition  $1S - 2S$  et la transition  $2S - 4P$ . Le même laser à colorant à 486 nm, dit "laser source", excite la transition  $2S - 4P$  à un photon et la transition à deux photons  $1S - 2S$  (après doublage de fréquence du laser). Le battement entre ce laser source et un deuxième laser à colorant très stable asservi sur une raie du  $^{130}\text{Te}_2$  vaut environ 5 GHz et correspond à la différence  $E(2S - 4P) - \frac{1}{4}E(1S - 2S)$ . Pareillement, ils trouvent une valeur du déplacement de Lamb du niveau  $1S$  avec une incertitude de 51 kHz [BERKELAND1995].

Enfin l'équipe du LKB a eu l'idée de mesurer les différences de fréquences des transitions  $1S - 3S$  et  $2S - 6S$  ou  $6D$ . Ces deux transitions dans un rapport 4 ont les avantages suivants : la transition  $2S - 6S/D$  est plus étroite que la transition  $2S - 4S$  (300 kHz contre 700 kHz) et sa probabilité de transition est plus élevée. Cependant le niveau  $1S - 3S$  est plus large que le niveau  $1S - 2S$ , mais heureusement cela ne contrebalance pas la finesse du niveau  $6S/D$  par rapport au niveau  $4S$ . Cette expérience débuta avec la thèse de Sophie Bourzeix [BOURZEIX1996]. Le même laser titane-saphir sert à exciter la transition  $2S - 6S$  à 820 nm, et la transition  $1S - 3S$  à 205 nm après deux doublages successifs (820  $\rightarrow$  410  $\rightarrow$  205 nm) réalisés dans des cavités en anneau. Cependant le dernier doublage dans l'ultra-violet s'avéra très délicat à réaliser. Cette expérience permet

de réduire légèrement l'incertitude du déplacement de Lamb du niveau  $1S$  à 46 kHz.

Toutes ces mesures sont limitées par l'incertitude sur la mesure du battement radio-fréquence et par celle sur le déplacement de Lamb "classique"  $2S - 2P$ . De nos jours, la stratégie est de mesurer très précisément deux transitions et de déduire  $L_{1S}$  d'une combinaison linéaire judicieuse de ces transitions.

### 1.2.3.3 Détermination actuelle de $L_{1S}$ et $L_{2S}$

Nous pouvons exprimer les fréquences atomiques de l'hydrogène comme la somme de deux termes. Le premier terme s'exprime exactement et représente l'énergie de Dirac corrigée de la masse finie du proton, soit les deux premiers termes de l'équation 1.8 qui ne dépendent pas du nombre quantique  $l$ . La seule incertitude de ce terme vient de notre connaissance de la constante de Rydberg. Le deuxième terme comprend toutes les corrections QED mentionnées précédemment et formant - avec les corrections de taille finie du proton - le déplacement de Lamb.

$$\begin{aligned} E_{n,j,l}^{tot} &= Mc^2 + [f(n,j) - 1]m_r c^2 - [f(n,j) - 1]^2 \frac{m_r^2 c^2}{2M} + L_{n,j,l} \\ &= E_{n,j}^{DR}(R_\infty) + L_{n,j,l} \end{aligned} \quad (1.27)$$

Ainsi il apparaît clairement que la fréquence d'une transition s'exprime en fonction de trois inconnues : la constante de Rydberg et les déplacements de Lamb des deux niveaux impliqués.

L'énergie  $E^{DR}$  est proportionnelle à  $\alpha^2/n^2$  et à des termes en  $\alpha^2$  d'ordres supérieurs. L'élimination du terme en  $\alpha^2/n^2$ , grâce à une combinaison linéaire judicieuse entre deux fréquences de transition mesurées expérimentalement, permet d'obtenir une mesure beaucoup moins sensible à l'incertitude sur la constante de Rydberg.

De plus, les contributions dominantes du déplacement de Lamb varient en  $1/n^3$ . Les différences  $\Delta_n = n^3 L(nS) - L(1S)$  (pour  $n = 2$  à 21) ont été très bien calculées théoriquement avec une incertitude d'environ 0,1 kHz [CZARNECKI2005]. Enfin toujours à cause de la dépendance en  $1/n^3$ , la valeur théorique des déplacements de Lamb pour  $n \geq 3$  est suffisamment précise pour être utilisable directement. Ainsi à l'aide des deux mesures les plus précises de transitions de l'atome d'hydrogène, nous pouvons déterminer les déplacements de Lamb des niveaux  $1S$  et  $2S$  avec une incertitude meilleure que celle prédite par la théorie.

La spectroscopie la plus précise de l'atome d'hydrogène est celle de la transition  $1S_{1/2} - 2S_{1/2}$ . Cette transition peut être excitée à deux photons par un laser à 243 nm. La largeur naturelle du niveau  $2S_{1/2}$  est seulement de 1,3 Hz ce qui permet des mesures spectroscopiques de très haute résolution. Le groupe de T.W. Hänsch en Allemagne

n'a cessé d'augmenter la précision de la fréquence de la transition  $1S_{1/2} - 2S_{1/2}$ . La détermination de cette fréquence est faite avec une incertitude relative de  $4,2 \times 10^{-15}$  (soit 10 Hz sur la transition)[[PARTHEY2011](#)]. Cette valeur récompense leur course à la précision qui a commencé 40 années plus tôt [[HÄNSCH1975](#)].

$$f_{1S-2S} = 2\,466\,061\,413\,187\,035(10) \text{ Hz} \quad (1.28)$$

Une des transitions les mieux mesurées dans l'hydrogène après la transition  $1S - 2S$  est la transition  $2S_{1/2} - 8D_{5/2}$ , mesurée par notre groupe au LKB [[DEBEAUVOIR1997b](#)].

$$f_{2S_{1/2}-8D_{5/2}} = 770\,649\,561,5850(49)\text{MHz} \quad (1.29)$$

Suivant nos notations, l'énergie de ces deux transitions s'expriment ainsi :

$$E_{1S-2S} = [E_{2S_{1/2}}^{DR} - E_{1S_{1/2}}^{DR}] + L_{2S_{1/2}} - L_{1S_{1/2}} \quad (1.30)$$

$$E_{2S-8D} = [E_{8D_{5/2}}^{DR} - E_{2S_{1/2}}^{DR}] + L_{8D_{5/2}} - L_{2S_{1/2}} \quad (1.31)$$

On trouve alors facilement la combinaison linéaire appropriée qui élimine la contribution du terme en  $\alpha^2/n^2$  :

$$\begin{aligned} E_{1S-2S} - \frac{16}{5}E_{2S-8D} &= -L_{1S_{1/2}} + \frac{21}{5}L_{2S_{1/2}} - \frac{16}{5}L_{8D_{5/2}} + [E_{2S_{1/2}}^{DR} - E_{1S_{1/2}}^{DR}] \\ &\quad - \frac{16}{5}[E_{8D_{5/2}}^{DR} - E_{2S_{1/2}}^{DR}] \\ &= -\mathbf{L}_{1S_{1/2}} + \frac{21}{5}\mathbf{L}_{2S_{1/2}} - \frac{16}{5}L_{8D_{5/2}} + \Delta^{DR} \end{aligned} \quad (1.32)$$

L'énergie  $\Delta^{DR}$  possède une expression analytique. On rappelle que les contributions dominantes du déplacement de Lamb varient en  $1/n^3$ , le Lamb shift du niveau  $8D_{5/2}$  n'est donc pas un facteur limitant ( $L_{8D_{5/2}} = 71,51$  kHz).

Finalement les déplacements de Lamb des niveaux  $1S$  et  $2S$  de l'hydrogène peuvent être déterminés en utilisant l'écart de la loi en  $1/n^3$  connu avec une excellente précision :  $\Delta_2 = L(1S) - 8L(2S)$ .

La constante de Rydberg est déterminée en reprenant l'équation (1.30), avec les déplacements de Lamb des niveaux  $1S$  et  $2S$  déterminés précédemment. Le calcul de la constante de Rydberg ne fait donc plus intervenir la fréquence micro-onde du déplacement de Lamb historique  $\Delta(2S - 2P)$ . Cette méthode de détermination est ainsi plus précise que les précédentes estimations de  $R_\infty$ . Elle est cependant dépendante des calculs d'électrodynamique quantique et suppose que ces calculs sont exacts et que la théorie est complète.

Les valeurs retenues de la constante de Rydberg et du déplacement de Lamb du niveau  $1S$  par le CODATA 2010 [MOHR2012] représentent la moyenne pondérée des valeurs obtenues par combinaison linéaire des transitions suivantes :

- $1S - 2S$  et  $2S - nS/D$  dans l'hydrogène et le deutérium
- $2S - nS/D$  et  $\Delta(2S - 2P)$  dans l'hydrogène
- $1S - 2S$  et  $\Delta(2S - 2P)$  dans l'hydrogène

Le résultat est le suivant :

$$R_\infty = 109\,737,315\,685\,39(55) \text{ cm}^{-1} \quad (1.33)$$

$$L_{1S}(\text{H}) = 8\,172,840(22) \text{ MHz} \quad (1.34)$$

L'incertitude du déplacement de Lamb du niveau  $1S$  obtenu (22 kHz) fut longtemps inférieure à l'incertitude des calculs théoriques (50 kHz), limités principalement par le rayon du proton. Ces mesures spectroscopiques sont ainsi un outil indirect pour évaluer le rayon du proton, pour une valeur donnée de la constante de Rydberg et vice versa (évaluer  $R_\infty$  à partir d'un rayon du proton donné) en supposant toujours que les calculs QED sont exacts. La récente expérience de diffusion à Mainz a permis d'amener l'incertitude des calculs théoriques à 22 kHz, ce qui met coude à coude théorie et spectroscopie de l'hydrogène.

La valeur du rayon du proton (et celle du deutérium  $r_D$ ) est ajustée pour faire concorder les mesures spectroscopiques dans l'hydrogène et les calculs théoriques. C'est donc une valeur dite d'ajustement.

Sur le schéma 1.9 sont représentées les valeurs du rayon du proton obtenues à partir des mesures de l'écart micro-onde  $2S - 2P$  ou en comparant deux transitions optiques dans l'hydrogène : la transition  $1S - 2S$  avec une autre transition moins bien connue. La spectroscopie de l'hydrogène muonique (où l'électron est remplacé par un muon) donne une valeur en total désaccord. La prochaine partie de ce chapitre sera ainsi dédiée à ce désaccord, connu sous le nom de "l'énigme du proton".

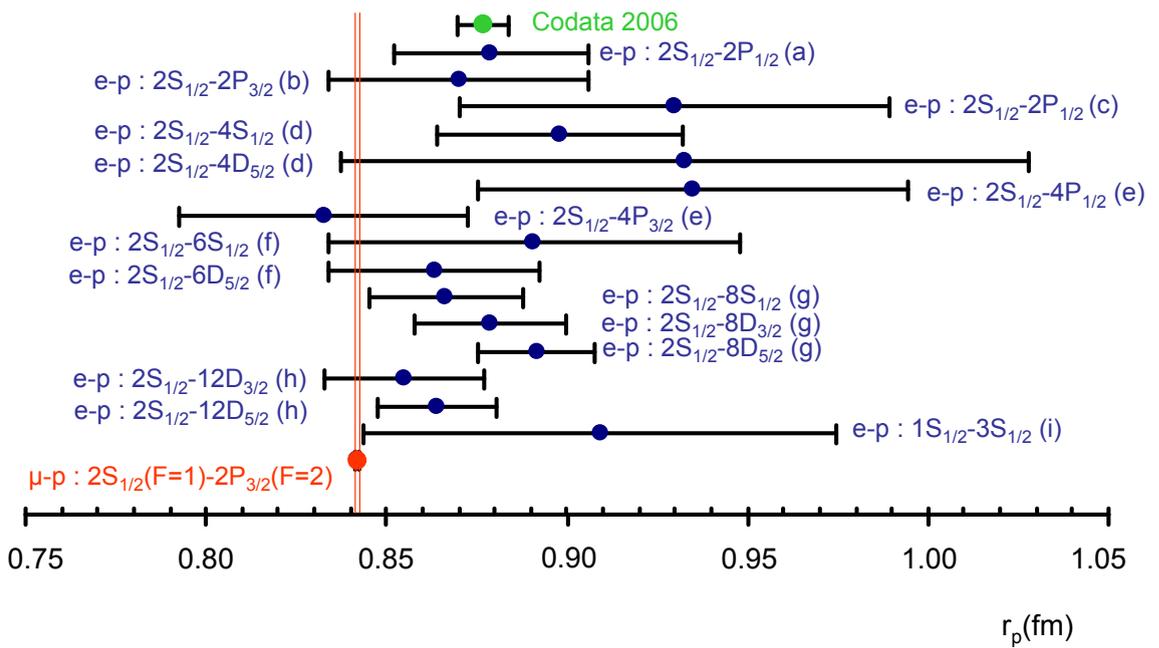


FIGURE 1.9: Valeurs du rayon du proton déduites des transitions optiques mesurées dans l'hydrogène. (a) [LUNDEEN1986], (b) [HAGLEY1994], (c) [NEWTON1979], (d) [WEITZ1995], (e) [BERKELAND1995], (f) [BOURZEIX1996] [ARNOULT2010], (g) [DEBEAUVOIR1997b], (h) [SCHWOB1999] et (i) [ARNOULT2010]. La double ligne rouge correspond à l'incertitude du rayon du proton déduit de la spectroscopie de l'hydrogène muonique [POHL2010].

## 1.3 La problématique du rayon du proton

### 1.3.1 Expériences de diffusion

Le proton n'est pas une particule élémentaire. Il est composé de trois quarks (up-down) possédant chacun une charge électrique et un spin. La valeur du rayon de distribution de charge électrique du proton utilisée rigoureusement dans les calculs théoriques est celle déterminée par des méthodes indépendantes de ces calculs, c'est à dire par diffusion élastique entre un électron et un proton.

Un schéma classique d'expérience de diffusion est représenté en figure 1.10. Ce sont des expériences très délicates. La cible est réalisée avec du dihydrogène. Cette cible doit être la plus mince possible pour éviter les diffusions multiples. Cependant plus elle est mince, moins grande sera la probabilité de diffusion. D'autre part, les expériences gagnent en précision en travaillant avec des électrons d'énergie faible mais suffisamment grande pour assurer la traversée de la cible et éviter les diffusions multiples dans la cible. La section efficace de diffusion s'écrit en fonction de la section diffusion classique, ou de *Mott* (pour laquelle le proton est considéré comme ponctuel) :

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \left( \frac{d\sigma}{d\Omega} \right)_{Mott} \left[ \frac{G_E^2 + \tau G_M^2}{1 + \tau} + 2\tau G_M^2 \tan^2 \frac{\theta}{2} \right] \quad (1.35)$$

où les facteurs de forme  $G_E(q^2)$  et  $G_M(q^2)$  ( $G_M = \mu_p G_E$ ) prennent en compte la taille électrique et magnétique du proton. Le transfert d'impulsion  $q$  et le facteur  $\tau$  s'expriment de la façon suivante :  $q^2 = 4E_o E' \sin^2 \frac{\theta}{2}$  et  $\tau = \frac{q^2}{4m_p^2}$ , en suivant les notations de la figure 1.10. Les transformées de Fourier en  $q$  de  $G_E(q^2)$  et  $G_M(q^2)$  donnent accès aux distributions spatiales de charge électrique et magnétique du proton.

Notons qu'une distribution de charge dipolaire, qui est une très bonne approximation de la distribution de charge électrique du proton, ne permet pas de reproduire fidèlement les mesures de diffusion. Pour extraire les facteurs de forme de l'expérience, la stratégie est de mesurer  $d\sigma/d\Omega$  pour différents angles  $\theta$  et différentes valeurs de  $q^2$ . A faible  $q$ ,  $G_E$  domine sur  $G_M$  et peut s'exprimer en fonction de puissances de la moyenne quadratique de la distribution de charge du proton  $R = \langle r_p^2 \rangle^{1/2}$ .

$$G_E(q^2) = 1 - q^2 \frac{R^2}{6} + \dots \quad (1.36)$$

La valeur du rayon  $R$  est alors donnée par la pente de  $G_E(q)$  à  $q=0$ . Concrètement, la valeur du "rayon du proton" est déduite de la pente à l'origine de la courbe ajustée sur les mesures de  $G_E(q^2)$ . Comme  $G_E(q^2)$  et  $G_M(q^2)$  ne sont pas connues, ce sont différentes fonctions analytiques (polynôme, spline...) qui sont utilisées ce qui donne lieu à de nombreuses discussions.

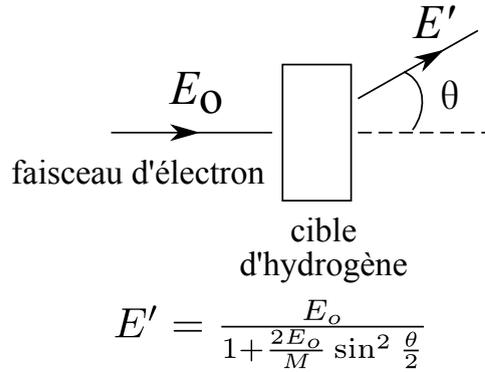


FIGURE 1.10: Expérience de diffusion électron-proton

Le rayon du proton déduit des expériences de diffusion, dépend de façon critique de cette extrapolation. Voici une sélection des résultats récents :

- $r_p = 0,895(18)$  fm, évaluation (2008) d'Ingo Sick à partir des données mondiales disponibles [SICK2008].

- $r_p = 0,894(8)$  fm, nouvelle évaluation (2011) du même auteur avec un modèle d'ajustement plus précis [SICK2011].

- $r_p = 0,879(8)$  fm, mesuré à partir de nouvelles données de l'expérience de Mainz (2010) [BERNAUER2010].

- $r_p = 0,886(8)$  fm, interprétation des résultats par I. Sick des données de l'expérience de Mainz ajoutées aux données mondiales (2012) [SICK2012].

- $r_p = 0,84(1)$  fm, analyse indépendante (2012) des données de l'expérience de Mainz qui se rapproche donc de la valeur déduite de la spectroscopie de l'hydrogène muonique [LORENZ12012]. Cependant cette valeur ne reproduit pas complètement les données de l'expérience.

Sans prendre en compte cette dernière valeur, ces résultats mènent à une détermination du rayon du proton avec une incertitude de 2%.

### 1.3.2 L'hydrogène muonique

L'hydrogène muonique ( $\mu p$ ) est un atome d'hydrogène dans lequel l'électron a été remplacé par un muon négatif  $\mu^-$ . Le muon qui a la même charge électrique que l'électron est 207 fois plus lourd. Toutes les contributions au déplacement de Lamb sont proportionnelles au cube de la masse réduite du système atomique, elles sont donc amplifiées de près de 7 ordres de grandeur ! Ainsi l'écart de fréquence  $2S - 2P$  qui est dans le domaine micro-onde pour l'hydrogène électronique ( $\sim 1$  GHz), passe dans le domaine infra-rouge lointain ( $\sim 6 \mu\text{m}$ ). Par contre la force d'oscillateur de la transition de  $\mu p$  est réduite de 7 ordres de grandeur. Enfin les états  $S$  ont une fonction d'onde centrée sur le noyau. Pour l'hydrogène muonique, la fonction d'onde est donc plus localisée autour du proton

et l'effet de la taille finie du proton est donc amplifié ; il représente 2 % du déplacement de Lamb, contre 0,014 % pour l'hydrogène électronique. Une mesure du déplacement de Lamb ( $2S-2P$ ) de  $\mu p$  même avec une faible résolution permet d'améliorer nettement l'incertitude sur la valeur du rayon du proton. Une comparaison des niveaux d'énergie entre l'hydrogène classique et muonique est représentée dans le tableau ci-dessous.

$\Delta E(2S_{1/2} - 2P_{1/2})$	auto-énergie	pol. vide	effet de $r_p$	total
hydrogène classique	1 084,1 MHz	-26,9 MHz	0,146 MHz	1 057,8 MHz
hydrogène muonique	0,17 THz	-50,94 THz	0,96 THz	-49,81 THz

La collaboration internationale CREMA (Charge Radius Experiment on Muonic Atoms), a ainsi débuté la spectroscopie de l'hydrogène muonique en 1999 à l'Institut Paul Scherrer en Suisse. Les premiers signaux de la transition  $2S_{1/2} - 2P_{3/2}$  à  $6\mu m$  furent observés... en 2009 !

Cette expérience de longue haleine, qui impliqua de nombreuses équipes de recherche dont la nôtre au LKB, est complètement décrite dans la référence [POHL2010].

Les muons sont produits en envoyant un faisceau intense de protons sur une cible de carbone. Des pions sont alors produits et capturés dans une trappe cyclotron. Ces pions se désexcitent en muons qui sont ralentis jusqu'à une énergie cinétique d'environ 5 keV et dirigés vers une cible contenant 1 mbar de dihydrogène. Les atomes d'hydrogène muonique sont alors formés dans des états très excités ( $n \approx 14$ ) : 99% des atomes se désexcitent spontanément vers le niveau fondamental, 1% vers le niveau métastable  $2S$ . L'arrivée des muons et donc la formation d'un atome d'hydrogène muonique déclenche le tir d'une impulsion laser à  $6 \mu m$  qui excite les atomes vers le niveau  $2P_{3/2}$ . Les photons Lyman  $\alpha$  (2 keV) issus de la fluorescence du niveau  $2P_{3/2}$  vers l'état fondamental  $1S$  sont alors détectés. L'énergie de transition dépend très simplement du rayon du proton, elle peut s'écrire sous la forme suivante [ANTOGNINI2013] :

$$\Delta E(2S_{1/2}^{F=1} - 2P_{3/2}^{F=2}) = 49,81871(36) - 1,2640 R^2 + 0,0080(48) \text{ THz}$$

où le terme 0,0080(48) prend en compte la polarisabilité du noyau et des corrections d'ordres supérieurs.

La résonance observée est représentée en figure 1.11. À résonance, l'amplitude du signal est de 6 coups par heure. L'incertitude relative de la mesure de la fréquence de l'écart  $2S - 2P$  correspond à 5/100 ième de la largeur de raie.

La fréquence de la transition  $2S - 2P$  est en nette contradiction avec celles calculées à partir des valeurs du rayon du proton déduites des expériences de diffusion (de  $7\sigma$ ) et des mesures de spectroscopie de l'hydrogène et du deutérium (de près de  $5\sigma$ ). La taille du proton est cependant déduite avec une incertitude 10 fois meilleure et vaut

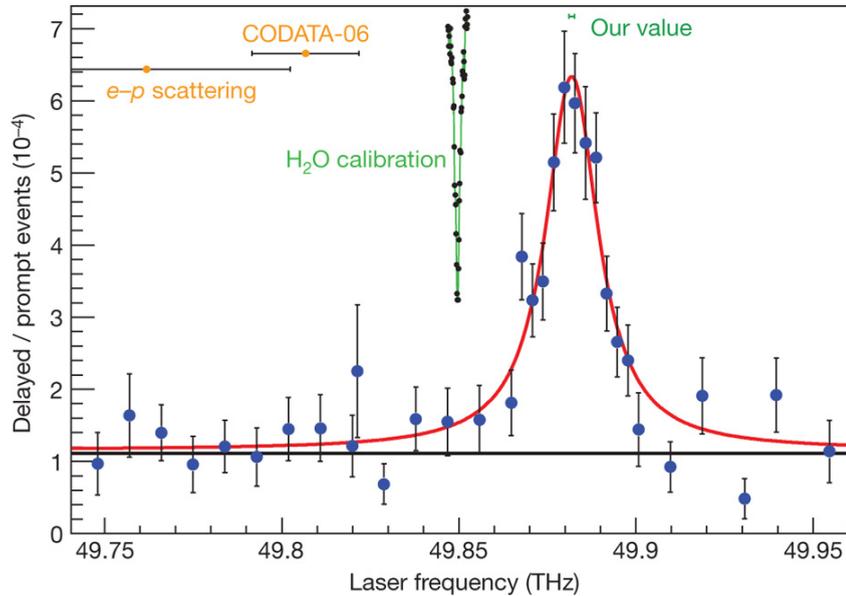


FIGURE 1.11: Signal de résonance de la transition  $2S_{1/2}^{F=1} - 2P_{3/2}^{F=2}$  dans l'hydrogène muonique [POHL2010]. Les valeurs attendues de sa fréquence sont données, l'une par déduction des expériences de diffusion e-p et l'autre à partir de la valeur recommandée par le CODATA (valeur qui tient compte des résultats des expériences de diffusion ainsi que de ceux de la spectroscopie de l'hydrogène et du deutérium). Une raie de l'eau, représentée en vert, vérifie la calibration de la fréquence du laser.

[ANTOGNINI2013] :

$$r_p = 0,84087(39) \text{ fm}$$

À l'heure où j'écris ces pages, ce désaccord très important n'est pas encore élucidé. Plusieurs théories qui sortent des sentiers battus c'est-à-dire du modèle standard, ont vu le jour. Cependant ces théories sont contraintes par d'autres expériences très précises comme par exemple les mesures de la constante de structure fine à partir de l'anomalie de l'électron [HANNEKE2008] et celle à partir de la vitesse de recul réalisée dans notre équipe [BOUCHENDIRA2011].

Parallèlement, des expériences sont entreprises afin d'éclaircir ce désaccord. La collaboration CREMA a par exemple récidivé en menant une expérience de spectroscopie sur l'ion  $\mu\text{He}^+$  (que nous appellerons par la suite "hélium muonique"), à laquelle j'ai participé durant ma thèse.

### 1.3.3 Mesure du déplacement de Lamb 2S-2P de $\mu\text{He}^+$

L'hélium muonique est constitué d'une particule alpha (le noyau) et d'un muon. Le nombre de charge  $Z$  valant 2 et les corrections de QED se développant en puissance de  $Z$ , ce système atomique est donc plus sensible à des ordres supérieurs du développement de la théorie et constitue ainsi un excellent système pour comparer théorie et expériences. La taille électrique du noyau déterminée à partir de la spectroscopie de  $\mu\text{He}^+$  pourra être comparée à celle mesurée par diffusion. Cette expérience permet ainsi de tester la

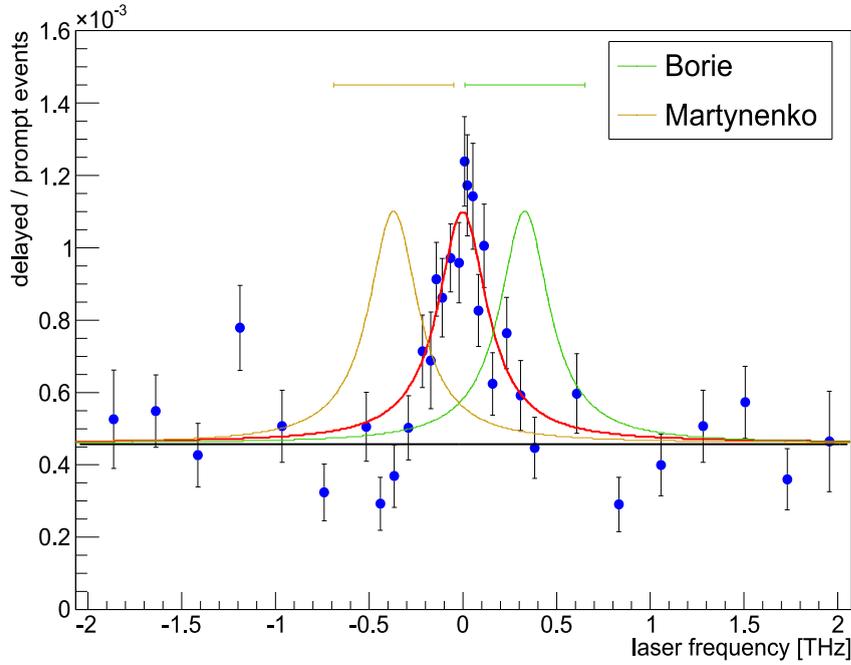


FIGURE 1.12: Signal de résonance de la transition  $2S_{1/2}^{F=1} - 2P_{3/2}^{F=2}$  dans l'hélium muonique. Il n'y a pas de désaccord prononcé avec les deux estimations théoriques.

spectroscopie de systèmes muoniques en confirmant ou non le désaccord observé dans l'hydrogène muonique avec les systèmes atomiques classiques. De plus, une mesure plus précise de la taille de ce noyau est nécessaire pour tester finement la QED sur les expériences de l' $\text{He}^+$ .

L'expérience de l'hélium muonique est basée sur le même protocole expérimental que l'hydrogène muonique. Les différences principales sont :

- la détection d'une fluorescence  $2P - 1S$  à 8 keV contre 2 keV dans l'expérience précédente,
- la longueur d'onde du laser d'excitation utilisée (813 nm) pour sonder la transition  $2S_{1/2} - 2P_{3/2}$  au lieu de 6  $\mu\text{m}$  dans le cas d'hydrogène muonique.

Ce dernier point permet de s'affranchir des étapes intermédiaires auparavant indispensables pour passer de 708 nm à 6  $\mu\text{m}$  et facilite nettement le travail de spectroscopie.

Un premier signal a été observé en décembre 2013 et est représenté en figure 1.12. Ce signal de résonance est préliminaire car l'analyse complète en particulier du bruit de fond, n'a pas encore été faite. La résonance se situe entre les deux prédictions théoriques. On ne retrouve donc pas a priori de désaccord avec la théorie de l'électrodynamique quantique.

Néanmoins la taille du noyau d'hélium n'a jamais été mesurée aussi précisément. L'incertitude relative, préliminaire, sur le rayon du noyau atteint  $3 \times 10^{-4}$  soit 0,0005 fm !

### 1.3.4 Autres expériences en cours pour éclaircir la problématique du rayon du proton

La divergence de l'hydrogène muonique avec la théorie reste un mystère. D'autres pistes sont alors suivies :

- une nouvelle expérience de diffusion d'électrons très lents sur des protons à Mainz. Le but est d'améliorer l'extrapolation à  $q=0$  de la méthode.

- l'expérience de diffusion de muons sur des protons à l'Institut Paul Scherrer. L'idée ici est de tester la méthode de diffusion avec des muons et voir si le résultat coïncide avec celui de l'hydrogène muonique.

- la mesure directe du déplacement de Lamb de l'hydrogène électronique dans le groupe d'Eric Hessels, à Toronto. Cette mesure est intéressante car elle est peu dépendante de la valeur de la constante de Rydberg. Elle constitue donc un test important de la spectroscopie de l'atome d'hydrogène. Par contre elle est très difficile car la raie  $2S - 2P$  est très large (100 MHz), l'incertitude espérée correspond à 1/10000 ième de largeur de raie!

- la spectroscopie de la transition  $2S - 4P$  dans le groupe de T.W. Hänsch, à Garching. Cette étude constitue un test de la spectroscopie optique de l'atome d'hydrogène à partir du niveau métastable  $2S$ . C'est une expérience difficile là encore car la largeur naturelle du niveau  $4P$  est importante (13 MHz). La précision visée correspond à quelques 1/10000 ième de largeur de raie.

- la spectroscopie des niveaux de Rydberg de l'ion  $^{20}\text{Ne}^{9+}$  au NIST-Washington dans le groupe de J. Tan. L'idée ici est de faire une spectroscopie dans des niveaux de Rydberg ( $n$  très élevés) donc peu sensibles aux effets du noyau et aux calculs QED. La difficulté majeure est de fabriquer ces ions.

- la spectroscopie de l'ion  $\text{He}^+$  dans le groupe de K. Eikema à Amsterdam et dans le groupe de T. Udem à Garching. Le principe est de tester les calculs QED via la dépendance en  $Z\alpha$  ( $Z=2$  dans ce cas). Le point clé ici est la réalisation de la source laser à 62 nm pour exciter la transition atomique.

- la spectroscopie de la transition  $1S - 3S$  de l'atome d'hydrogène à Garching en régime picoseconde [PETERS2013] et dans notre laboratoire avec un laser continu, ce qui a constitué mon travail de thèse. Il est en effet impératif d'améliorer les mesures dans l'hydrogène pour discriminer les différentes déterminations du rayon du proton. La figure 1.9 montre clairement cette nécessité.

## 1.4 La transition $1S - 3S$

### 1.4.1 Motivations et premiers résultats

La spectroscopie de l'hydrogène a donc commencé à Paris avec les transitions  $2S - nS/nD$  ( $n \geq 8$ ) en 1983. Ces transitions ont été étudiées jusqu'en 1996 avec une précision de l'ordre de  $6 \times 10^{-12}$  pour la transition  $2S - 8D$  (soit 4,9 kHz) et ont abouti à une mesure de la constante de Rydberg dont la précision est jusqu'à présent inégalée.

Le déplacement de Lamb du niveau  $1S$  ne reste cependant connu qu'à 22 kHz près, ce qui est clairement insuffisant pour départager les différentes valeurs du rayon du proton (voir figure 1.9).

L'équipe a alors concentré tous ses efforts sur la transition  $1S - 3S$  afin de concurrencer la précision atteinte par les transitions  $2S - 8S/D$ . Une raison majeure justifie ce choix : la population de l'état fondamental est bien entendu plus importante que pour l'état métastable  $2S$  de 5 ordres de grandeur environ. Par contre la probabilité de transition est environ 7 fois moins importante. Cependant nous pouvons quand même espérer exciter la transition avec moins de puissance et nous affranchir (partiellement) du déplacement lumineux qui limite les mesures des transitions  $2S - 8S/D$ .

#### 1.4.1.1 Déplacement de Lamb $L_{1S}$

Suivant nos notations, l'énergie de ces deux transitions s'expriment ainsi :

$$\begin{aligned} E_{1S-2S} &= \left[ E_{2S_{1/2}}^{DR} - E_{1S_{1/2}}^{DR} \right] + L_{2S_{1/2}} - L_{1S_{1/2}} \\ E_{1S-3S} &= \left[ E_{3S_{1/2}}^{DR} - E_{1S_{1/2}}^{DR} \right] + L_{3S_{1/2}} - L_{1S_{1/2}} \end{aligned} \quad (1.37)$$

On trouve alors facilement la combinaison linéaire appropriée qui élimine la contribution du terme  $\alpha^2/n^2$  :

$$32E_{1S-2S} - 27E_{1S-3S} = 32L_{2S} - 5L_{1S} - 27L_{3S} + \Delta^{DR} \quad (1.38)$$

Le déplacement de Lamb du niveau  $3S$  est calculé théoriquement avec une incertitude de 1 kHz. Contrairement au cas précédent, avec l'utilisation des transitions  $2D - 8D$ , le déplacement de Lamb du niveau  $2S$  n'est pas éliminé. Sa valeur expérimentale contribuerait à hauteur de 47 kHz, bien loin des 22 kHz atteints actuellement par les calculs théorique de  $L(1S)$ . On fait donc appel aux différences très bien calculées théoriquement

[CZARNECKI2005] :

$$\begin{aligned}\Delta_2 &= \Delta(L_{1S} - 8L_{2S}) = -187\,225,70(5) \text{ kHz} \\ \Delta_3 &= \Delta(L_{1S} - 27L_{3S}) = -235\,070,90(7) \text{ kHz}\end{aligned}$$

En utilisant la différence  $\Delta_2$ , l'équation 1.38 devient :

$$L_{1S} = -32E_{1S-2S} + 27E_{1S-3S} - 4\Delta_2 - 27L_{3S} + \Delta^{DR} \quad (1.39)$$

L'incertitude du terme  $32E_{1S-2S}$  vaut 320 Hz et celle sur  $4\Delta_2$  vaut 200 Hz. Le terme  $27L_{3S}$  apporte la plus grande source d'incertitude à hauteur de 27 kHz. Il apparaît alors intéressant d'utiliser la différence  $\Delta_3$ . L'équation 1.38 se transforme immédiatement sous la forme suivante :

$$L_{1S} = -16E_{1S-2S} + 13,5E_{1S-3S} - 2\Delta_2 + 0,5(\Delta_3 + \Delta^{DR}) \quad (1.40)$$

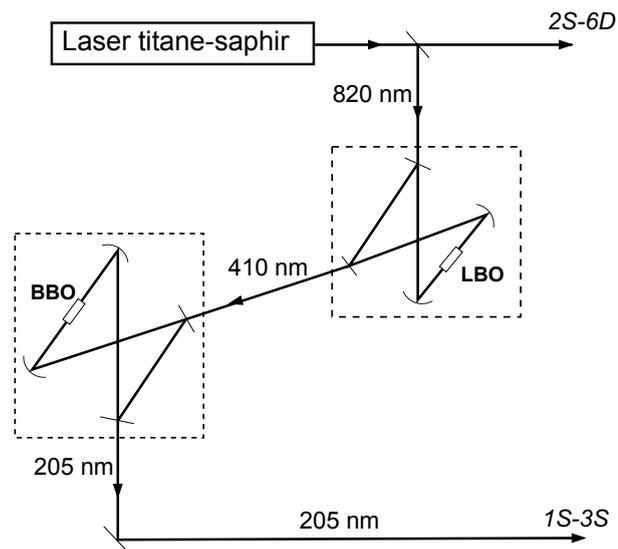
Ainsi, si l'on mesure la fréquence de la transition  $1S - 3S$  avec une précision de l'ordre de kHz, on connaîtra  $L_{1S}$  avec une précision d'environ 14 kHz. Cette mesure améliorerait ainsi la précision actuelle de 22 kHz du déplacement de Lamb du niveau  $1S$ .

Par ailleurs, combiné avec des mesures sur le deutérium, on peut espérer diminuer l'incertitude de  $L_{1S}$  à 10 kHz.

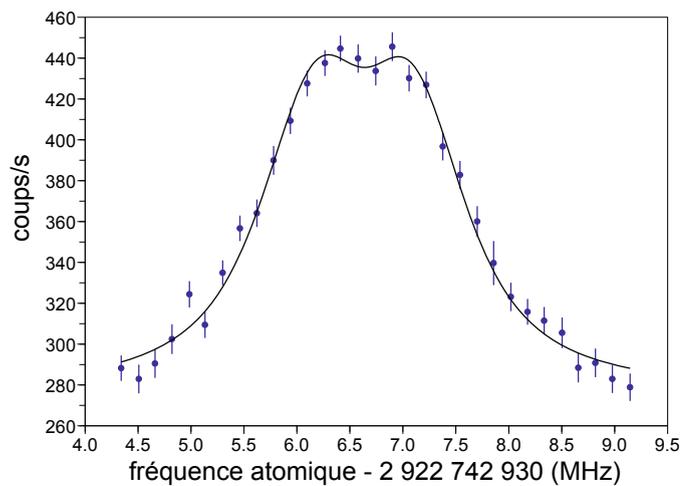
#### 1.4.1.2 La source UV à 205 nm

Il est indispensable d'obtenir une source lumineuse fiable à 205 nm. Cette radiation était précédemment obtenue par deux doublages successifs, dans des cavités en anneau, en partant d'un laser titane-saphir à 820 nm (voir figure 1.13a). Le premier doublage 820 nm vers 410 nm ne pose pas de problème majeur et est effectué à l'aide du cristal non linéaire LBO [BOURZEIX1993]. Le deuxième doublage de 410 nm vers 205 nm, effectué à l'aide d'un cristal BBO, est beaucoup plus problématique pour plusieurs raisons.

Premièrement la forte puissance à 410 nm du faisceau circulant dans la cavité chauffe le cristal non-linéaire jusqu'à endommager certains de nos cristaux. En étant absorbée dans le cristal, cette radiation bleue crée un réseau d'indice dans le cristal, si important que la lumière est finalement réfléchiée dans le cristal. On a alors deux faisceaux lumineux qui tournent en sens inverse dans la cavité en anneau. Ceci diminue la puissance à 205 nm générée dans la bonne direction. Cet effet photoréfractif a été une source de problème pour les trois thèses précédentes sur cette expérience [BOURZEIX1995, HAGEL1995, ARNOULT2006]. Pour contrecarrer ce phénomène, l'astuce fut de surmoduler, par l'intermédiaire d'un miroir collé sur une cale piézo-électrique,



(A) Les deux doublages successifs utilisés pour générer le faisceau laser à 205 nm.



(B) Signal de fluorescence obtenu en modulant la cavité BBO lors de la thèse d'Olivier Arnoult.

FIGURE 1.13: Schéma de production de la source laser à 205 nm et signal de résonance observé durant la précédente thèse sur cette expérience, la thèse d'Olivier Arnoult.

la longueur de la cavité du BBO pour ne pas laisser le temps au réseau d'indice de se former.

Cette méthode permet d'obtenir près d'un milliwatt de faisceau à 205 nm. Cependant le résultat est un signal de résonance à deux sommets causés par l'effet Doppler dû au mouvement du miroir (voir figure 1.13b). L'analyse du signal fut donc très délicate et mena à une détermination de la transition  $1S - 3S$  à 13 kHz près [ARNOULT2010].

Deuxièmement le cristal était utilisé près de sa limite d'accord de phase ce qui a pour conséquence de diminuer grandement l'efficacité de doublage. La situation s'améliore en refroidissant le cristal mais l'angle d'accord de phase reste critique.

Pour atteindre une mesure plus précise de la transition  $1S - 3S$ , les efforts sont donc à mener sur l'obtention d'une source UV puissance et fiable.

### 1.4.2 Le dispositif expérimental actuel

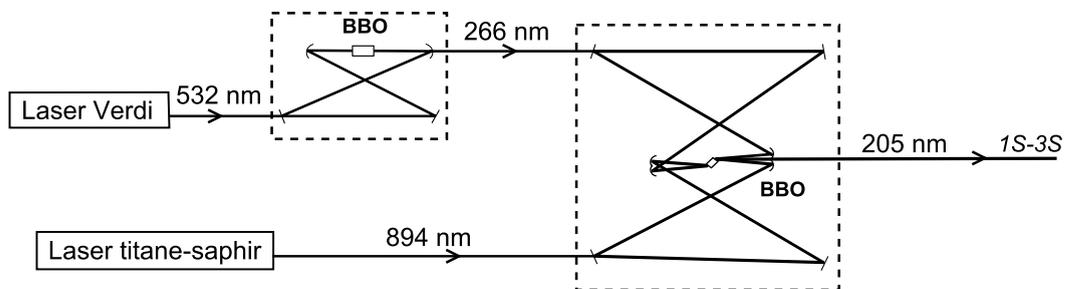


FIGURE 1.14: Somme de fréquence construite durant ma thèse pour générer le faisceau lumineux à 205 nm.

L'équipe a alors eu l'idée de générer la radiation à 205 nm par somme de fréquence dans un cristal BBO. Ce processus est en effet nettement plus favorable que le doublage de fréquence à cette longueur d'onde, comme l'indique la figure 1.15. La somme de fréquence sera détaillée au prochain chapitre. Les deux faisceaux lasers sommés sont un laser titane-saphir à 894 nm et un laser Verdi doublé générant un faisceau à 266 nm (voir figure 1.14).

Comme nous effectuons une somme de fréquences, le deuxième défi de cette expérience fut de mesurer non plus la fréquence absolue d'un seul laser mais de deux lasers. Grâce au peigne de fréquences optiques, cette opération est possible. Cependant la difficulté réside dans la mesure simultanée des fréquences des radiations à 894 nm et 532 nm qui se trouvent de part et d'autre du spectre délivré par le peigne de fréquence. Les mesures de fréquences feront l'objet du troisième chapitre.

Enfin je détaillerai les formes de raies utilisées pour analyser le signal de résonance ainsi que les résultats obtenus.

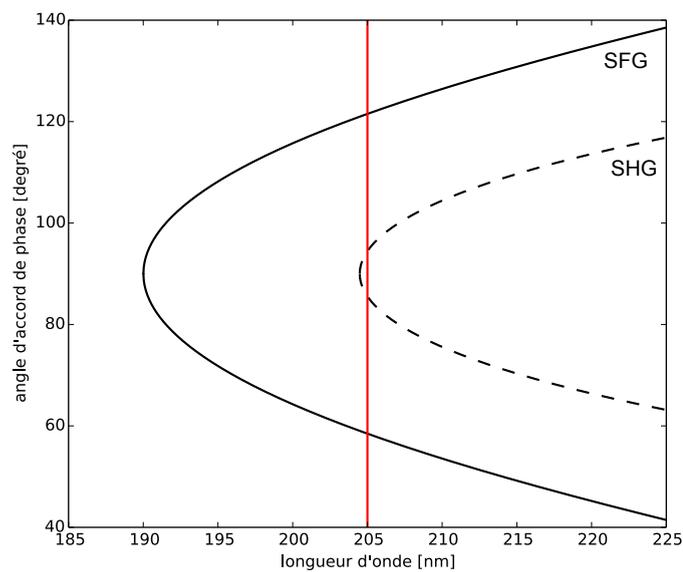


FIGURE 1.15: L'angle d'accord de phase du cristal BBO en fonction de la puissance UV générée, dans le cas de la génération de la seconde harmonique (SHG - trait en pointillé) et dans le cas d'une somme de fréquences (SFG - trait plein). La situation est beaucoup moins critique dans ce dernier cas.

## Chapitre 2

# La source à 205 nm

### Introduction

Pour réaliser l'excitation à deux photons de la transition  $1S - 3S$  de l'atome d'hydrogène, il faut disposer d'une source lumineuse monochromatique à 205 nm, accordable et étroite spectralement. Posséder une telle source d'une dizaine de milliwatts est encore à l'heure actuelle un défi technologique. Le seul moyen actuel d'atteindre ces courtes longueurs d'onde est par doublage ou somme de fréquences de plus grandes longueurs d'onde dans des cristaux non-linéaires.

Il existe plusieurs possibilités pour générer une radiation continue au voisinage de 200 nm en utilisant différents cristaux non-linéaires : le CLBO (Caesium lithium borate,  $\text{CsLiB}_6\text{O}_{10}$ ) [SAKUMA2004] ou le KBBF (Potassium beryllium fluoroborate,  $\text{KBe}_2\text{BO}_3\text{F}_2$ ) [SCHOLZ2012] par doublage de fréquence et le BBO (bêta borate de baryum,  $\beta\text{-BaB}_2\text{O}_4$ ) [BERKELAND1997] par somme de fréquences. Les solutions CLBO et KBBF semblent prometteuses mais sont encore au stade de développement. De plus, dans le cas d'une somme de fréquences, l'efficacité de conversion est toujours plus grande avec le cristal BBO comme l'illustre la figure 2.1. Cette même figure nous montre aussi que notre procédé expérimental nous permettrait d'atteindre une plage de longueur d'onde large de 20 nm et ainsi d'accéder à la longueur d'onde de 194 nm correspondant à la transition à deux photons  $1S - 4S$  de l'hydrogène. Nous avons ainsi choisi la solution de la somme de fréquences avec un cristal BBO.

Dans ce chapitre, après avoir donné quelques rappels d'optique non linéaire, je présenterai en détail notre montage expérimental ainsi que les performances obtenues. Un article sur notre source à 205 nm est donné en annexe de ce document [GALTIER2014].

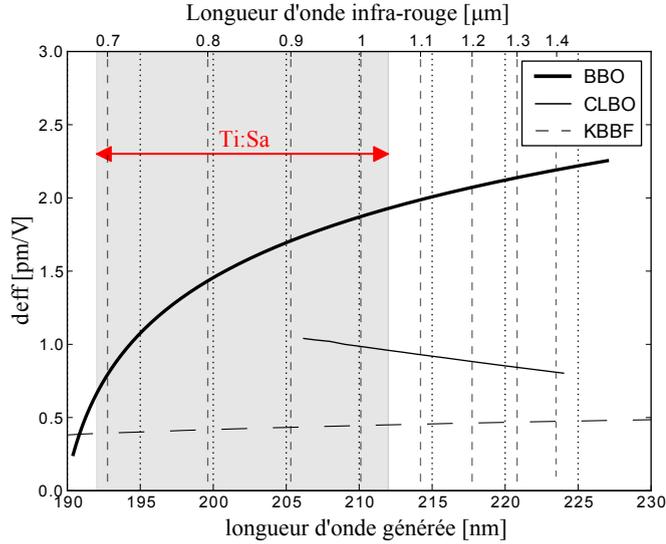


FIGURE 2.1: Efficacité de somme entre un laser à 266 nm (produit par doublage de fréquence d'un laser vert type Nd :YVO<sub>4</sub>) avec un laser infra-rouge, pour 3 cristaux non-linéaires différents. La longueur d'onde de la radiation ultra-violettes générée est représentée sur l'abscisse du bas. La longueur d'onde du laser infra-rouge est représentée sur l'abscisse du haut. La gamme de fréquence accessible pour un laser titane saphir est aussi mentionnée.

## 2.1 Somme de fréquences : généralités sur l'optique non linéaire

Depuis l'invention du premier laser, l'optique non linéaire s'est enrichie de nombreux domaines d'applications et est une aide indispensable pour quiconque souhaitant obtenir une source laser à une longueur d'onde bien déterminée en particulier dans le domaine ultra-violet. L'optique non linéaire est l'étude des divers phénomènes optiques qui apparaissent dans un système matériel lorsque celui-ci répond de façon non linéaire à une lumière excitatrice. Celle-ci doit être suffisamment intense pour produire une telle réponse non linéaire ; les sources laser répondent parfaitement à ce critère.

Le cristal BBO est un cristal biréfringent non linéaire. Le moment dipolaire par unité de volume ou polarisation  $\vec{P}$  d'un tel milieu matériel dépend du champ appliqué  $\vec{E}$  suivant l'expression ci dessous :

$$\vec{P} = \epsilon_o(\underline{\chi}^{(1)}\vec{E} + \underline{\chi}^{(2)}\vec{E}\vec{E} + \dots) \quad (2.1)$$

$\underline{\chi}^{(1)}$  est la susceptibilité linéaire du milieu et les  $\underline{\chi}^{(n)}$  sont les susceptibilités non linéaires du n-ième ordre. Ces tenseurs dépendent des caractéristiques physiques du milieu considéré.

**L'accord de phase.**

Pour que l'effet non linéaire soit effectif, il faut que la vitesse des différentes ondes dans le cristal soient identiques. Dans le cas d'une somme de fréquences, où deux ondes incidentes  $(\vec{k}_1, \omega_1)$  et  $(\vec{k}_2, \omega_2)$  génèrent une onde  $(\vec{k}_3, \omega_3)$ , cette condition s'écrit :

$$\vec{k}_3 = \vec{k}_1 + \vec{k}_2 \quad (2.2)$$

Dans un cristal, cette condition se traduit par l'égalité suivante :

$$\frac{n_3}{\lambda_3} = \frac{n_1}{\lambda_1} + \frac{n_2}{\lambda_2} \quad (2.3)$$

où  $n_1$ ,  $n_2$  et  $n_3$  sont les indices pour les longueurs d'onde correspondantes.

Pour expliciter cette condition de conservation du vecteur d'onde, ou encore condition d'accord de phase, seule la susceptibilité linéaire  $\underline{\chi}^{(1)}$  est à prendre en compte. L'expression du vecteur déplacement électrique  $\vec{D}$  s'écrit :

$$\vec{D} = \epsilon_0 \vec{E} + P_{\text{lin.}} = \epsilon_0 (1 + \underline{\chi}) \vec{E} = \underline{\epsilon} \vec{E} \quad (2.4)$$

où  $\epsilon$  est le tenseur permittivité diélectrique du milieu. Dans un milieu transparent, ce tenseur est diagonalisable et ses axes propres  $X$ ,  $Y$  et  $Z$  définissent les axes principaux du cristal.

$$\underline{\epsilon} = \begin{pmatrix} n_X^2 & 0 & 0 \\ 0 & n_Y^2 & 0 \\ 0 & 0 & n_Z^2 \end{pmatrix} \quad (2.5)$$

Pour qu'une onde puisse se propager sans déformation dans un tel milieu, sa vitesse de phase ne peut prendre que deux valeurs possibles :  $v'_\phi = \frac{c_0}{n'}$  ou  $v''_\phi = \frac{c_0}{n''}$  correspondant à deux vecteurs déplacement possibles (notons  $\vec{d}'$  et  $\vec{d}''$  leurs vecteurs unitaires respectifs). Les directions  $\vec{d}'$  et  $\vec{d}''$  donnent celles des axes de l'ellipse formée par l'intersection du plan perpendiculaire à la direction de propagation de l'onde  $\vec{k}$  (soit le plan d'onde) avec la surface de "l'ellipsoïde des indices" d'équation :

$$\frac{X^2}{n_X^2} + \frac{Y^2}{n_Y^2} + \frac{Z^2}{n_Z^2} = 1 \quad (2.6)$$

Par souci de lisibilité de schéma, cette surface est usuellement représentée dans le cas particulier d'un cristal uniaxe positif (voir figure 2.2).

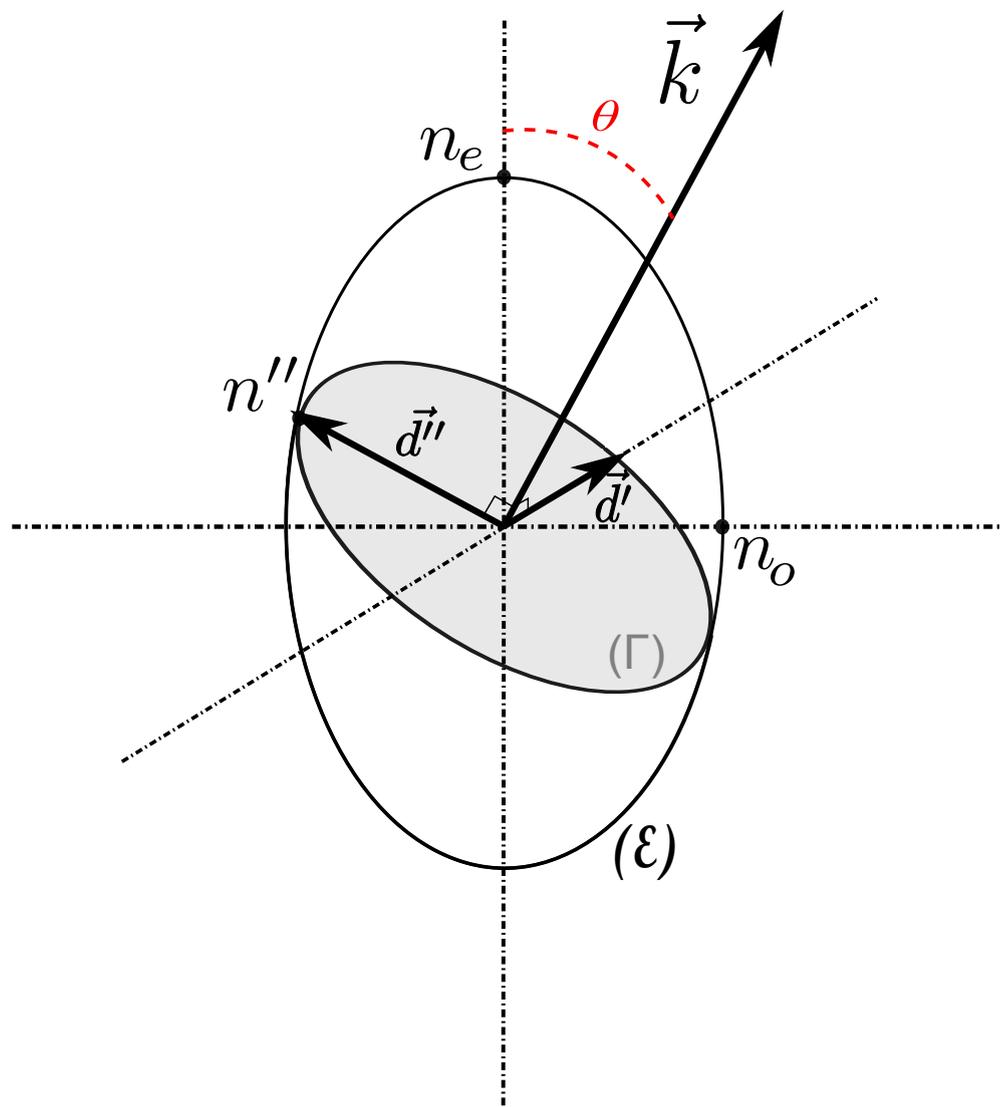


FIGURE 2.2: L'ellipsoïde des indices. Construction permettant de retrouver les directions de polarisations permettant une propagation sans déformation pour une direction de propagation donnée  $\vec{k}$ , dans le cas d'un cristal uniaxe :  $n_x = n_y = n_o$  et  $n_z = n_e$  (positif dans cette représentation :  $n_e > n_o$ )

### Cas du cristal BBO

Le cristal BBO est un milieu uniaxe négatif. On a  $n_X = n_Y = n_o$  (indice ordinaire) et  $n_Z = n_e$  (indice extraordinaire principal) avec  $n_e < n_o$ . Ainsi, pour une onde se propageant suivant l'axe optique du cristal (OZ), les deux composantes orthogonales de  $\vec{D}$  (de direction (OX) et (OY)) voient le même indice  $n_o$ .

Si l'onde se propage selon une autre direction  $\vec{k}$  en formant l'angle  $\theta$  par rapport à l'axe (OZ) alors la composante  $\vec{D}(\vec{d}')$  verra l'indice  $n_o$  et l'autre  $\vec{D}(\vec{d}'')$  verra un indice  $n''$  qui dépend de l'angle  $\theta$ . Elles correspondent respectivement à l'onde ordinaire et l'onde extraordinaire.

La somme de fréquences dans notre cristal de BBO est du type I ; c'est à dire que les deux ondes sources sont polarisées selon la direction ordinaire et celle créée est polarisée selon la direction extraordinaire. La condition d'accord de phase est réalisée en ajustant l'angle  $\theta$  tel que :

$$\frac{n''}{\lambda_3} = \frac{n_{o1}}{\lambda_1} + \frac{n_{o2}}{\lambda_2} \quad (2.7)$$

L'angle d'accord de phase se déduit simplement de l'équation de l'ellipsoïde des indices par :

$$\frac{1}{n''^2} = \frac{\cos^2 \theta}{n_{o3}^2} + \frac{\sin^2 \theta}{n_{e3}^2} \quad (2.8)$$

On obtient l'équation suivante :

$$\sin(\theta) = \frac{n_{e3}}{n''} \sqrt{\frac{n_{o3}^2 - n''^2}{n_{o3}^2 - n_{e3}^2}} \quad (2.9)$$

Les différents indices du cristal BBO aux différentes longueurs d'onde utilisées sont données ci-dessous. Ces indices ont été obtenus à l'aide des formules de Sellmeier.

$$\begin{aligned} \lambda_1 &= 894 \text{ nm} & n_{o1} &= 1,658 \\ \lambda_2 &= 266 \text{ nm} & n_{o2} &= 1,757 \\ \lambda_3 &= 205 \text{ nm} & n_{o3} &= 1,877 & n_{e3} &= 1,690 \end{aligned}$$

Ainsi la condition d'accord de phase est réalisée quand le vecteur d'onde à 205 nm se propage avec un angle de  $58,48^\circ$ . L'indice de réfraction extraordinaire à 205 nm vaut 1,7346.

### L'angle de double réfraction

Dans un milieu biréfringent un autre effet est à prendre en compte : l'énergie ne se propage pas exactement dans la même direction que l'onde. Le vecteur de Poynting  $\vec{\Pi} = \vec{E} \wedge \vec{B}$  n'est pas colinéaire avec le vecteur d'onde  $\vec{k} = \vec{D} \wedge \vec{B}$ . L'angle formé par les

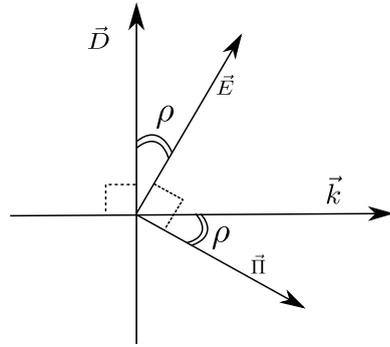


FIGURE 2.3: L'angle de double réfraction dans les milieux biréfringents.

vecteurs  $\vec{\Pi}$  et  $\vec{k}$  (qui est donc le même que celui formé par les vecteurs  $\vec{D}$  et  $\vec{E}$ ) est appelé angle de double réfraction ou encore angle de walk-off. Cette géométrie particulière est représentée sur la figure 2.3. C'est un effet gênant car il va limiter la distance dans le cristal sur laquelle l'onde sommée sera amplifiée. Concrètement, cet effet est visible sur la section du faisceau à 205 nm qui à cause de cette double réfraction devient elliptique.

Pour calculer cet angle, il est commode d'utiliser la notion de surface des indices qui diffère de celle de l'ellipsoïde des indices. On reporte sur cette surface l'indice dans la direction de propagation  $\vec{k}$  et non plus l'indice vu par l'onde polarisée selon  $\vec{D}$ . C'est une surface à deux nappes que l'on peut appréhender à l'aide de coupes. Cette surface est représentée sur la figure 2.4a dans le cas général ( $n_x \neq n_y \neq n_x$ ). Les axes optiques correspondent à l'intersection (OI) entre ces deux nappes et au symétrique par rapport au plan (YOZ). Dans notre cas particulier d'un cristal uniaxe négatif, ces intersections se trouvent confondues avec l'axe (OZ) qui est donc l'axe optique du cristal (cf. figure 2.4b). La coupe "parlante" suivant le plan (OY/OZ) est représentée en figure 2.5. En utilisant la relation  $\vec{D} = \epsilon_o n^2 \vec{E}$  et en explicitant les composantes de  $\vec{D}$  et  $\vec{E}$  selon (OX) et (OY), l'angle de double réfraction  $\rho$  prend l'expression simple suivante :

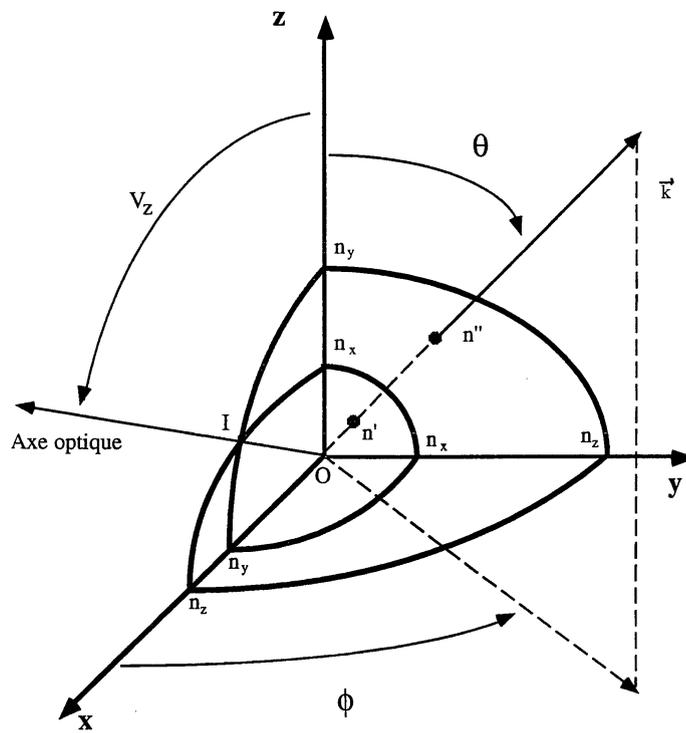
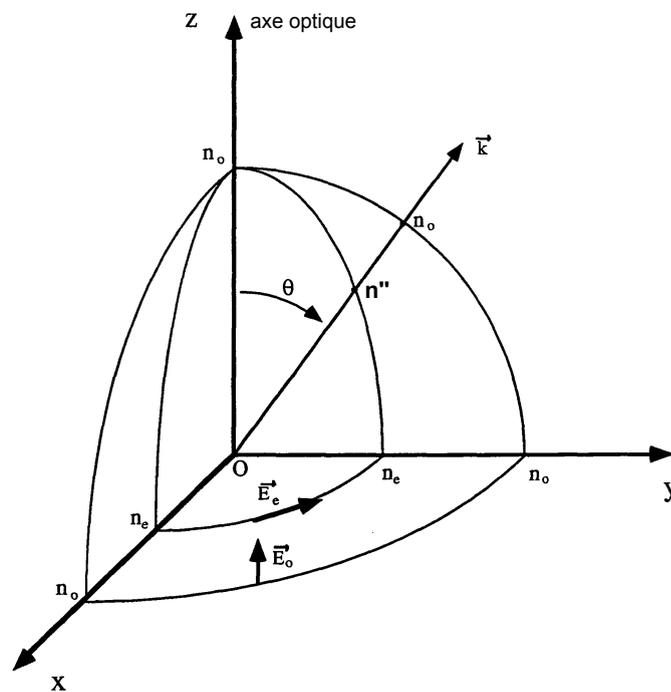
$$\tan(\rho + \theta) = \frac{n_{o3}^2}{n_{e3}^2} \tan \theta \quad (2.10)$$

Dans nos conditions expérimentales, l'angle de double réfraction vaut 88,9 mrad. La valeur tirée de différentes données expérimentales, en particulier les données d'indices, disponibles par le logiciel SNLO (Select Non-linear Optics) [SNLO] vaut 88,52 mrad.

### Susceptibilité non linéaire

L'évaluation de la susceptibilité non linéaire  $\underline{\chi}$  dicte l'efficacité de conversion de fréquence, comme je le détaillerai en partie 2.3, et ajoute une contrainte finale à l'orientation du cristal.

Développons l'équation 2.1 dans le cas d'une somme de fréquences. La  $i$ -ème composante

(A) Surface des indices dans un cas général ( $n_x \neq n_y \neq n_x$ )

(B) Surface des indices dans le cas du BBO : cristal uniaxe négatif.

FIGURE 2.4: Surface des indices [BOURZEIX1995]

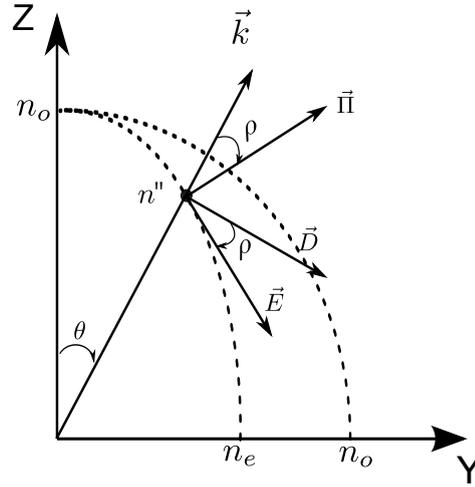


FIGURE 2.5: Coupe de la surface des indices dans le plan (OY)/(OZ).

de la polarisation  $\vec{P}(\omega_3)$  s'exprime ainsi :

$$P_i(\omega_3 = \omega_1 + \omega_2) = \epsilon_o \sum_{j,k} \chi_{i,j,k}^{(2)}(\omega_3; \omega_1, \omega_2) E_j(\omega_1) E_k(\omega_2) \quad (2.11)$$

On repère la direction de propagation des champs électriques par leur direction  $(\theta, \phi)$ . Les composantes de la direction ordinaire  $\vec{e}_o$ , d'indice  $n_o$ , et extraordinaire  $\vec{e}_e$ , d'indice  $n''$ , s'écrivent :

$$\vec{e}_o = [a_i] = \begin{pmatrix} \sin \phi \\ -\cos \phi \\ 0 \end{pmatrix} \quad \text{et} \quad \vec{e}_e = [b_i] = \begin{pmatrix} -\cos(\theta_m + \rho) \cos \phi \\ -\cos(\theta_m + \rho) \sin \phi \\ \sin(\theta_m + \rho) \end{pmatrix} \quad (2.12)$$

avec  $\theta_m$  l'angle permettant l'accord de phase.

Comme nous l'avons vu précédemment, la géométrie d'accord de phase impose que les deux champs incidents soient orientés suivant la polarisation ordinaire.

De plus on utilise plus couramment le tenseur diélectrique  $d_{i,j,k}$ , tel que  $2d_{i,j,k} = \chi_{i,j,k}^{(2)}$ .

On arrive ainsi à l'expression suivante pour la polarisation non linéaire :

$$P_i(\omega_3) = 2\epsilon_o \sum_{j,k} d_{i,j,k} a_j a_k E_o(\omega_1) E_o(\omega_2) \quad (2.13)$$

On projette ensuite  $\vec{P}(\omega_3)$  sur la direction extraordinaire :

$$P_{oo}^e(\omega_3) = \vec{e}_e \cdot \vec{P}(\omega_3) = \sum_i b_i P_i(\omega_3)$$

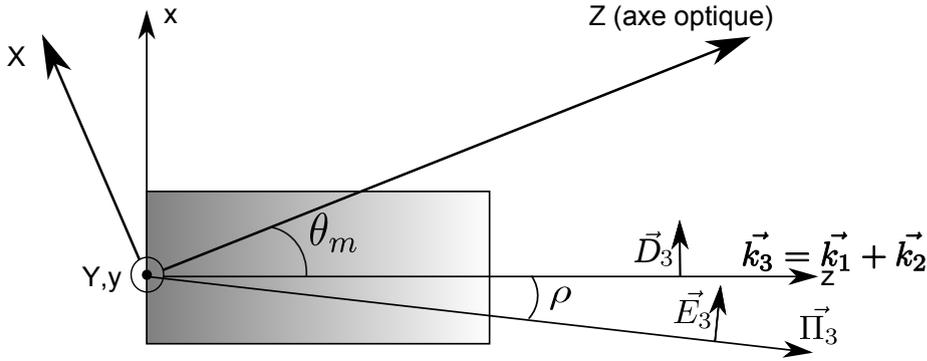


FIGURE 2.6: Coupe longitudinale de notre cristal de BBO avec  $\rho$  l'angle de double réfraction et  $\theta_m$  l'angle d'accord de phase.

$$\text{donc : } P_i(\omega_3) = 2\epsilon_o \underbrace{\sum_{i,j,k} b_i d_{i,j,k} a_j a_k}_{d_{eff}} E_o(\omega_1) E_o(\omega_2) \quad (2.14)$$

On introduit ainsi  $d_{eff}$ , la susceptibilité effective dans la direction d'accord de phase. En faisant l'hypothèse que le cristal n'absorbe pas aux fréquences considérées, la susceptibilité effective est symétrique par libre permutation de ses trois indices (symétrie de Kleinmann).

De plus le cristal BBO appartient au groupe cristallographique "3m" : il possède un axe de symétrie (l'axe 3), qui correspond à l'axe optique OZ (voir figure 3.1.4). On en déduit l'expression du tenseur diélectrique  $d$  du cristal BBO, dont les coefficients nous sont fournis dans la littérature :

$$d = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & d_{31} & -d_{22} \\ -d_{22} & d_{22} & 0 & d_{31} & 0 & 0 \\ d_{31} & d_{31} & d_{33} & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (2.15)$$

Finalement, en prenant en compte les symétries propres au BBO et en projetant les champs sur les axes propres du cristal, on obtient l'expression de la susceptibilité effective :

$$d_{eff} = d_{31} \sin(\theta_m + \rho) - d_{22} \cos(\theta_m + \rho) \sin 3\phi \quad (2.16)$$

On veut que les deux ondes ordinaires soient polarisées suivant le plan (yOZ) donc  $\phi$  vaut  $\pi/2$ . Il existe ainsi deux positions d'accord de phase pour la susceptibilité non linéaire dont l'une est meilleure que l'autre, tout dépend du signe de  $\theta_m$ . Nous retenons la valeur de 1,7 pm/V pour le coefficient de susceptibilité non linéaire [SNLO]. Notre cristal BBO est taillé de sorte que son axe horizontal (O,z) soit approximativement l'axe de propagation de l'onde sommée comme l'illustre la figure 2.6.

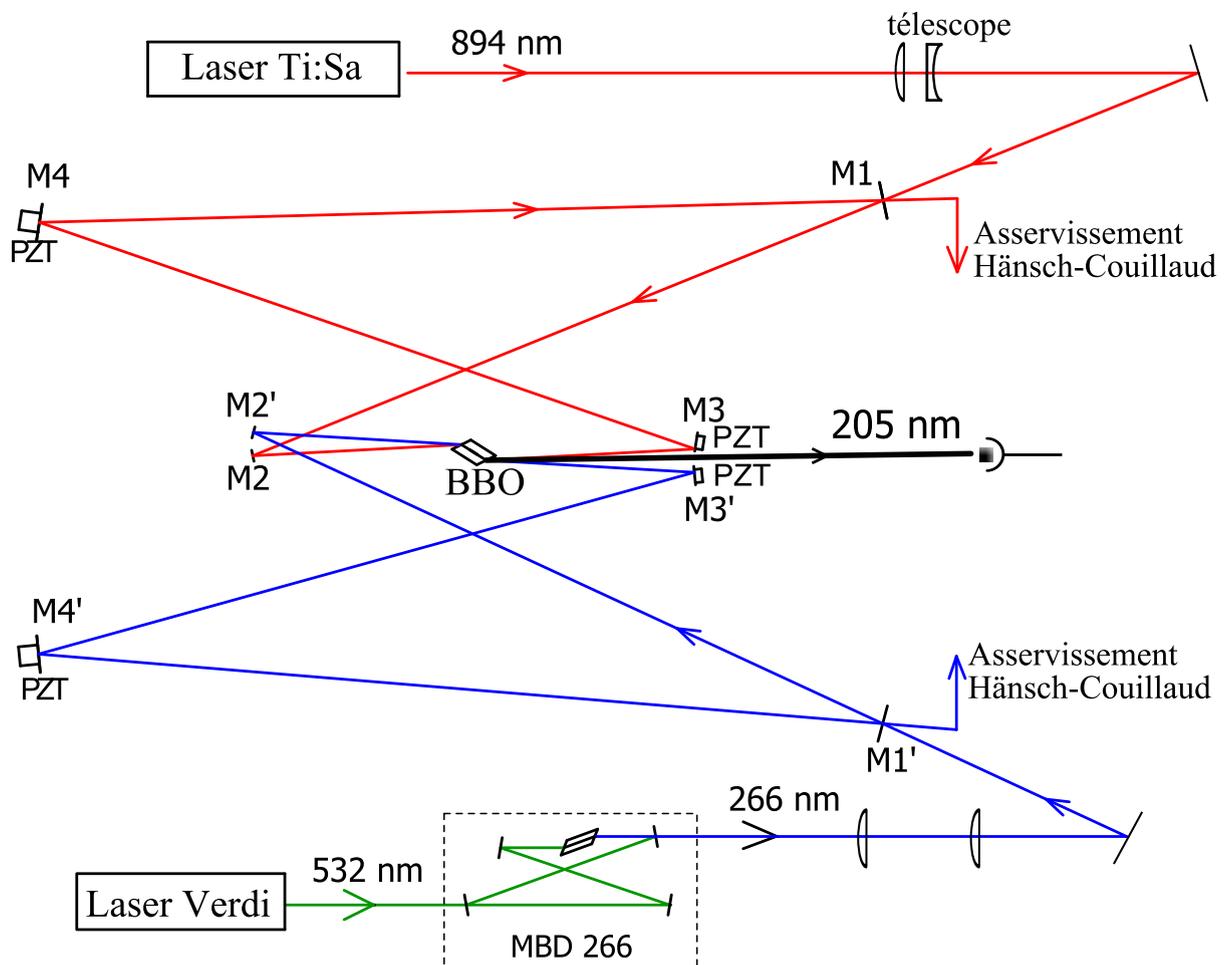


FIGURE 2.7: Schéma des deux cavités imbriquées formant la cavité de somme de fréquences. La disposition des deux cavités est à l'échelle. La longueur réelle de chaque cavité est d'environ 2 mètres.

On ajuste alors finement l'angle  $\theta_m$  grâce à une rotation d'axe (O,y) permise par notre support de cristal.

### 2.1.1 Montage expérimental

La somme de fréquences des faisceaux à 894 nm et 266 nm est réalisée dans le cristal BBO. Afin d'augmenter l'amplitude des deux ondes dans le cristal pour favoriser l'effet non linéaire, les deux faisceaux sont injectés dans deux cavités de surtension. Leurs chemins respectifs doivent ensuite se superposer au même endroit, dans le cristal, au minimum de leur waist, entre les deux miroirs concaves.

A cause des différentes longueurs d'onde, les angles de réfraction des deux ondes différent, rendant possible la configuration en "nœud papillon". Le montage expérimental est représenté sur la figure 2.7.

## 2.2 Les deux cavités imbriquées

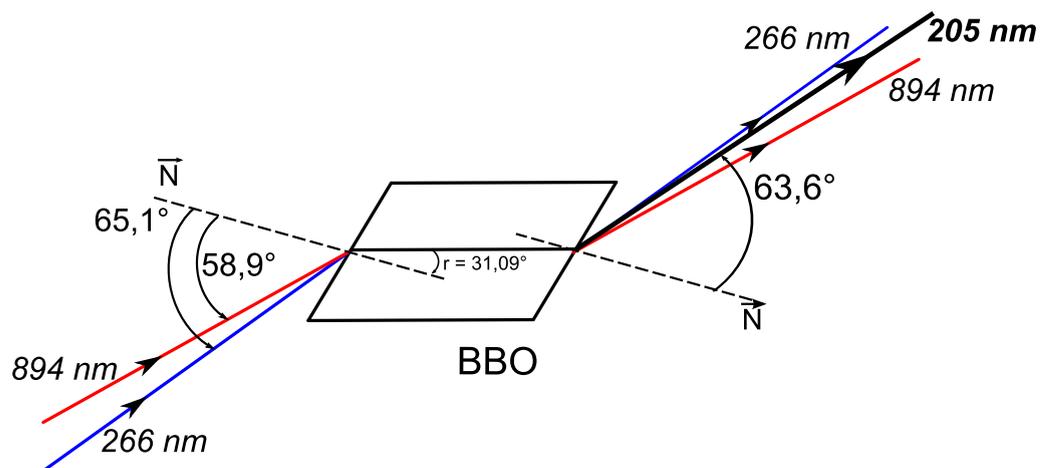


FIGURE 2.8: Récapitulatif des angles des différents faisceaux impliqués dans la somme de fréquences et du faisceau de sortie.

### Géométrie de la somme de fréquences

Le cristal est placé à l'angle de Brewster pour minimiser les pertes dues à la réflexion du faisceau incident, polarisé horizontalement, sur les faces d'entrée et de sortie du cristal.

Nous avons donc le choix d'optimiser la puissance effective du faisceau infra-rouge ou du faisceau ultra-violet. Or le cristal absorbe préférentiellement la lumière ultra-violette : la température du cristal augmente avec la puissance UV. Ceci provoque dans un premier

temps un effet de lentille thermique et dans un deuxième temps un endommagement du cristal. De même que dans l'expérience [BERKELAND1997], l'incidence sur le BBO est optimisée pour minimiser les pertes du faisceau IR. Cependant pour atténuer cet effet de lentille thermique à 266 nm et pour éviter l'absorption de l'eau par le cristal [BROMLEY1988], celui-ci est monté sur un module à effet Peltier, ce qui permet de stabiliser la température du cristal autour de 40 °C.

L'angle d'incidence du faisceau ultra-violet est contraint par l'angle de réfraction dans le cristal dans lequel les deux faisceaux doivent se superposer. La figure 2.8 résume les angles imposés par toutes ces différentes contraintes. On peut ainsi prévoir l'angle de sortie du faisceau à 205 nm et adapter la position des supports de miroirs en conséquence afin qu'ils ne bloquent pas sa sortie. L'extraction de la cavité du faisceau de somme n'était pas mécaniquement évidente. J'ai ainsi mené un travail important sur la conception de la cavité à l'aide de logiciels de dessin industriel.

Je vais dans un premier temps exposer quelques généralités sur les cavités de surtension pour pouvoir dans un deuxième temps caractériser les deux cavités imbriquées.

### 2.2.1 Généralités sur les cavités de surtension

#### Compensation de l'astigmatisme

Dû à la courbure des miroirs et aux faces à Brewster du cristal, le foyer optique n'est pas le même dans le plan horizontal ou dans le plan vertical.

Il faut ainsi construire la cavité de sorte que l'astigmatisme des faces à Brewster compense celui des miroirs [KOGELNIK1972].

$$\frac{l}{2} \left( \frac{1}{n} - \frac{1}{n^3} \right) + f \left( \cos \theta - \frac{1}{\cos \theta} \right) = 0 \quad (2.17)$$

où  $\theta$  étant l'angle d'incidence sur le miroir sphérique de focale  $f$  et  $n$  l'indice du cristal (de longueur  $l$ ) à la fréquence du faisceau incident.

On contraint ainsi l'angle d'incidence du faisceau infrarouge (respectivement ultra-violet) sur les miroirs M2 et M3 (respectivement M2' et M3'). Cet angle vaut 20,28° pour le faisceau IR et 20,72° pour le faisceau à 266 nm. Il ne reste plus qu'à fermer la cavité avec le miroir M4 (respectivement M4').

#### Zone de stabilité

Une cavité est dite stable géométriquement quand après un tour de cavité, le faisceau revient identique à lui-même. Du point de vue de la stabilité géométrique, une cavité en anneau est équivalente à une cavité linéaire où les deux miroirs sphériques sont remplacés par deux lentilles convergentes de même focale. Par symétrie on peut "replier" la cavité sur elle-même comme indiqué sur la figure 2.9. Deux distances limites entre la lentille

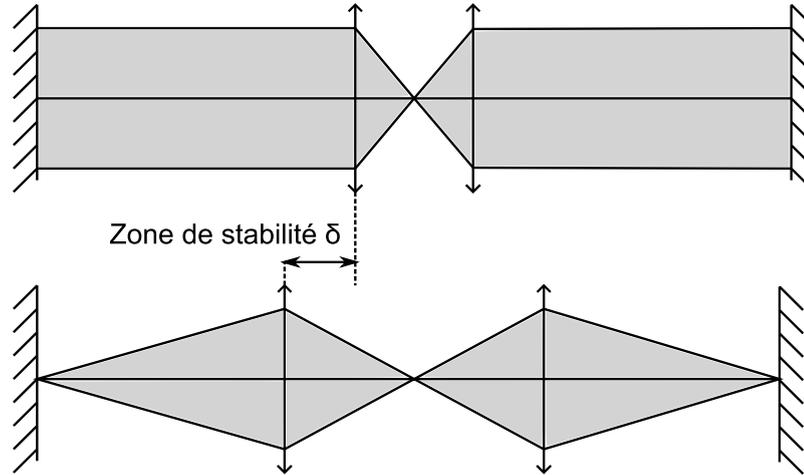


FIGURE 2.9: Positions extrêmes de stabilité d'une cavité équivalente à une cavité en anneau.

convergente et le miroir voisin dictent les deux situations extrêmes de stabilité. Soit  $L$  la longueur de la cavité et  $f$  la focale de la lentille, l'optique géométrique nous donne la valeur de la zone de stabilité  $\delta$ , en considérant  $\delta$  très petit devant  $f$  et  $L$  :

$$\delta = \frac{f^2}{\frac{L}{2} - 2f} \quad (2.18)$$

Dans le cas de faisceaux gaussiens, la cavité est stable si la lentille est située entre  $d_{min} = f$  et  $d_{max} = f + \delta$ . Dans le cas de notre cavité cette zone de stabilité est large de 37,5 mm.

### Asservissement Hänsch-Couillaud

Les deux cavités de surtension sont asservies suivant la méthode proposée par T. W. Hänsch et B. Couillaud en 1980 [HÄNSCH1980]. Une lame demi-onde à l'entrée de la cavité permet de tourner légèrement la polarisation du faisceau initialement rectiligne horizontale. La fenêtre de Brewster du cristal BBO joue le rôle de lame polarisante. En analysant la polarisation du faisceau réfléchi par le miroir M1, on peut facilement asservir la cavité au sommet de sa résonance sans avoir besoin de moduler la longueur de la cavité.

La composante horizontale du faisceau réfléchi par le miroir M1,  $E_r^{hor}$ , est la somme du faisceau incident réfléchi par le miroir M1 avec le champ  $E_{int}$  circulant dans la cavité transmis par ce même miroir. Ce dernier champ dépend de la phase  $\delta$  accumulée par l'onde durant un tour de cavité. Si l'on suppose la fenêtre de Brewster optimale, la composante verticale du champ incident ne circule pas dans la cavité et est entièrement réfléchie par le miroir M1.

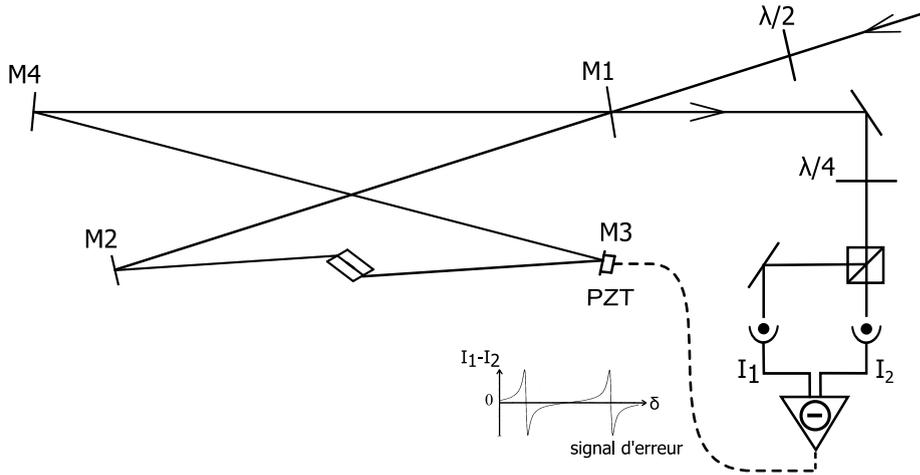


FIGURE 2.10: Schéma d'asservissement Hänsch-Couillaud.

Soit  $T$  la transmission en intensité du miroir M1. En négligeant l'absorption du miroir, les composantes horizontale et verticale du champ réfléchi s'écrivent :

$$E_r^{hor} = E_i^{hor} \sqrt{1-T} + E_{int}^{hor} \sqrt{T} \quad (2.19)$$

$$= E_i^{hor} \left( \sqrt{1-T} - \frac{T e^{i\delta}}{1 - \sqrt{1-T} e^{i\delta}} \right) \quad (2.20)$$

$$E_r^{vert} = E_i^{vert} \sqrt{1-T} \quad (2.21)$$

À résonance,  $\delta = 0$ , le champ réfléchi est en phase avec le champ transmis circulant dans la cavité : la polarisation du faisceau réfléchi par le miroir M1 est donc rectiligne. Dans le cas contraire, sa polarisation est elliptique.

On construit le signal d'erreur à l'aide d'une lame quart-d'onde et d'un cube polariseur comme illustré sur la figure 2.10. La lame quart-d'onde est orientée de sorte que les deux photodiodes voient la même intensité dans le cas d'une polarisation incidente linéaire. Cette lame quart-d'onde transforme une onde rectiligne en une onde circulaire : les deux intensités  $I_1$  et  $I_2$  sont donc égales à résonance et leur différence est nulle. Hors résonance la polarisation reste elliptique après passage par la lame  $\lambda/4$ ,  $I_1$  et  $I_2$  diffèrent. On a ainsi construit le signal d'erreur qui, transmis sur les cales piézoélectriques montées sur les miroirs M3 et M4, permet d'asservir la longueur de la cavité sur le pic de résonance.

### Calcul des pertes et adaptation

On veut maintenant calculer les pertes de chaque cavité accumulées sur un tour ainsi que le taux d'adaptation des faisceaux dans la cavité, c'est à dire le pourcentage de la puissance qui entre effectivement dans la cavité. On utilise les notations suivantes :

- $\eta$  le taux d'injection dans la cavité,
- $p$  les pertes de la cavité,
- $T$  la transmission du coupleur d'entrée M1,

- $P_i$  la puissance incidente,
- $P_{int}$  la puissance qui circule dans la cavité lorsque celle-ci est asservie,
- $P_r$  la puissance qui est réfléchiée par le coupleur d'entrée hors résonance,
- $P_{ra}$  cette même puissance la cavité asservie.

Pour toute cavité Fabry-Perot, avec  $T$  et  $p$  petits devant 1, on a la relation suivante [BOURZEIX1995].

$$P_{int} = \eta P_i \frac{4T}{(T+p)^2} \quad \text{and} \quad \frac{P_{ra}}{P_r} = \eta \frac{T-p^2}{T+p} + 1 - \eta \quad (2.22)$$

Cette relation reste valable dans notre cas où nous négligeons les pertes par conversion de fréquence lors de la somme. Ce système à deux équations et deux inconnues ( $\eta$  et  $p$ ) se résout en :

$$p = \frac{1-R}{S} \quad \text{and} \quad \eta = \frac{(1-R+TS)^2}{4TS} \quad (2.23)$$

avec  $S$  la surtension  $S = P_{int}/P_i$  et  $R$  le rapport  $P_{ra}/P_a$ .

En adaptant la distance entre les deux lentilles du télescope ainsi que le rapport de leurs focales on va pouvoir changer le rayon de courbure et le diamètre du faisceau incident et ainsi optimiser le taux d'injection dans les deux cavités.

### Caractéristiques communes des deux cavités imbriquées

La longueur des deux cavités imbriquées est identique, elle vaut 1800 mm. Les deux miroirs de rayon de courbure  $Rc = 300$  mm sont placés symétriquement autour du cristal. La zone de stabilité est ainsi de 37,5 mm, ce qui laisse de la marge pour jouer sur la focalisation des miroirs afin d'optimiser la somme de fréquences. Ce réglage est assez délicat. En effet, on peut espérer augmenter l'efficacité de conversion en augmentant la puissance effective dans le cristal et donc en focalisant fortement dans le cristal. Cependant on diminuerait la longueur de Rayleigh des faisceaux pompes ; les faisceaux interagissent sur une plus petite distance, ce qui diminue l'efficacité de conversion. Cet optimum de focalisation, étudié dans la référence [BOYD1968], sera traité en section 2.3.

On va vouloir connaître le waist des faisceaux au centre du cristal. La cavité peut être encore plus simplement modélisée par un miroir sphérique à la distance  $d$  d'un miroir plan. On peut montrer que le waist du faisceau sur le miroir plan (c'est-à-dire, physiquement, au centre du cristal) prend l'expression suivante [KOGELNIK1966] :

$$w_o^2 = \frac{\lambda}{\pi} \sqrt{d(Rc-d)} \quad (2.24)$$

On trouve une trentaine de microns pour les deux cavités.

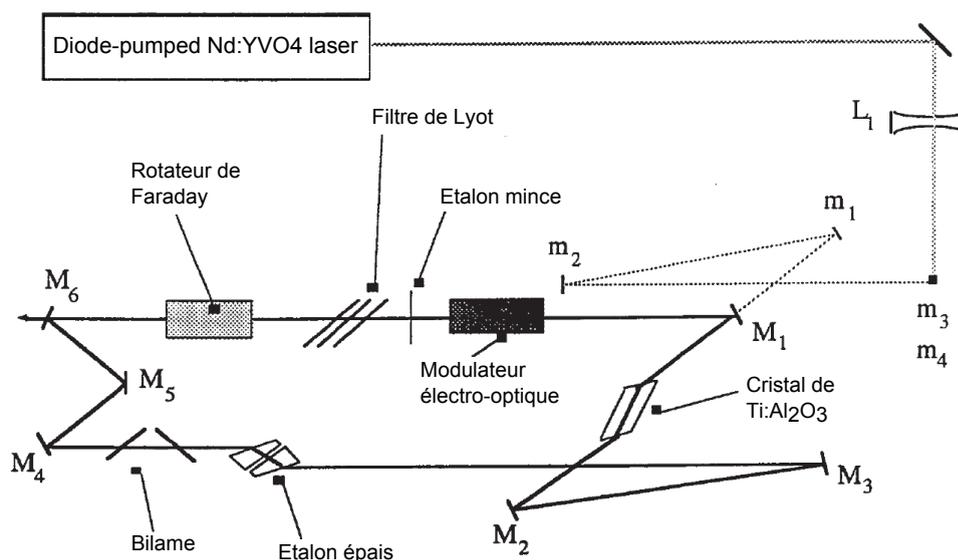


FIGURE 2.11: Schéma du laser titane-saphir.

## 2.2.2 La cavité à 894 nm

### Le laser titane-saphir

Le laser titane-saphir (TiSa) utilisé sur notre expérience est un laser conçu par François Biraben et fabriqué au sein du laboratoire. Son schéma de principe est représenté en figure 2.11. Le cristal de saphir dopé avec des ions de titane est pompé par un laser Nd :YVO<sub>4</sub>, laser Millennia XV de la firme Spectra Physics.

La longueur de la cavité en anneau est de environ 1,70 m. Le laser contient trois éléments sélectifs en longueur d'onde : un filtre de Lyot, un étalon mince et un Fabry-Perot épais.

- **Le filtre de Lyot** permet de sélectionner une zone de longueur d'onde de 0,05 nm de large. Le filtre est constitué d'une succession de 4 lames biréfringentes d'épaisseur successive [1-2-4-16] et orientées à l'incidence de Brewster. Un moteur permet de tourner les lames dans leur plan ce qui a pour conséquence de faire varier la longueur d'onde transmise par le filtre.
- **L'étalon mince** est une simple lame de silice d'épaisseur 0,4 mm dont l'orientation par rapport au faisceau incident est réglable par un moteur.
- **Le Fabry-Perot épais** permet de sélectionner une zone de 8 GHz avec un intervalle en ordre de 19 GHz dicté par l'épaisseur du Fabry-Perot, ce qui lui permet de sélectionner un mode de la cavité. Son épaisseur est balayée avec une cale piézoélectrique.

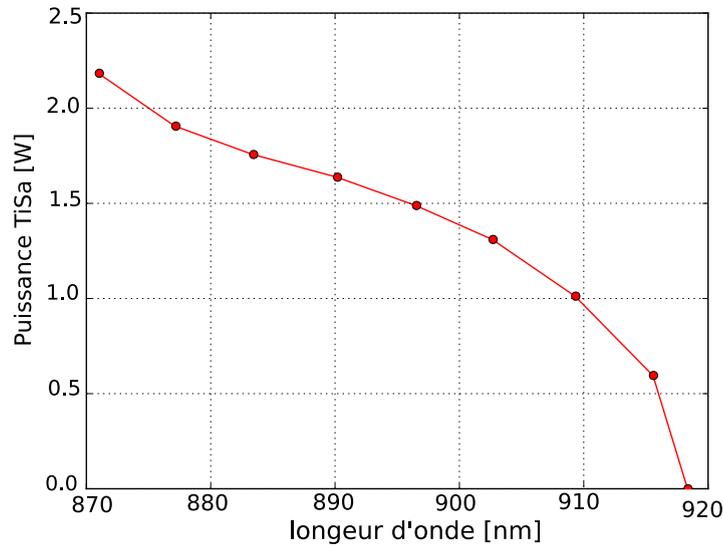


FIGURE 2.12: Puissance du laser TiSa en fonction de la longueur d'onde.

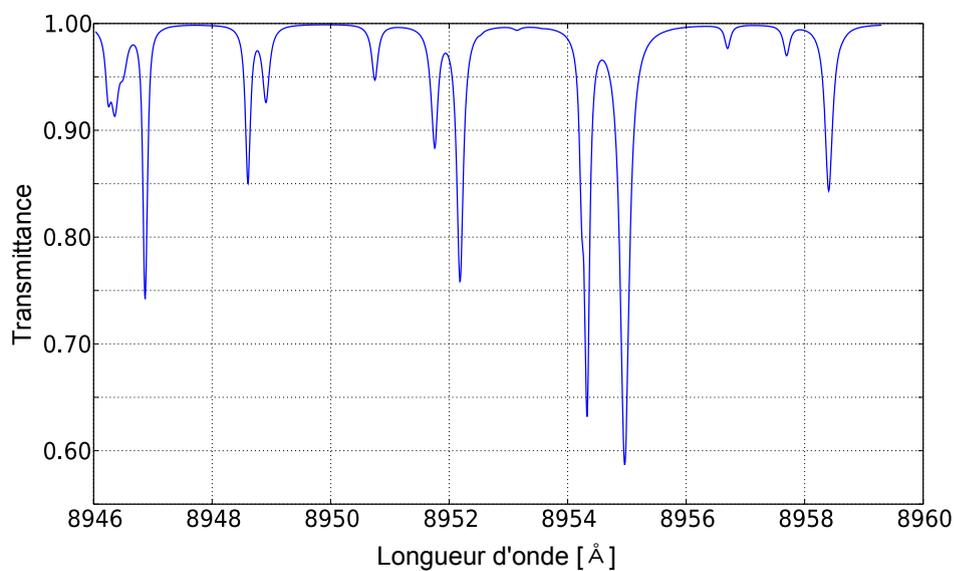
Ce montage permet ainsi un fonctionnement monomode du laser. On s'approche grossièrement de la longueur d'onde voulue avec le filtre de Lyot. Puis à l'aide du moteur monté sur l'étalon mince, on sélectionne l'un des pics d'Airy du Fabry-Perot épais qui sélectionne à son tour un mode de la cavité.

La procédure complexe d'asservissement sera détaillée dans le chapitre 3.

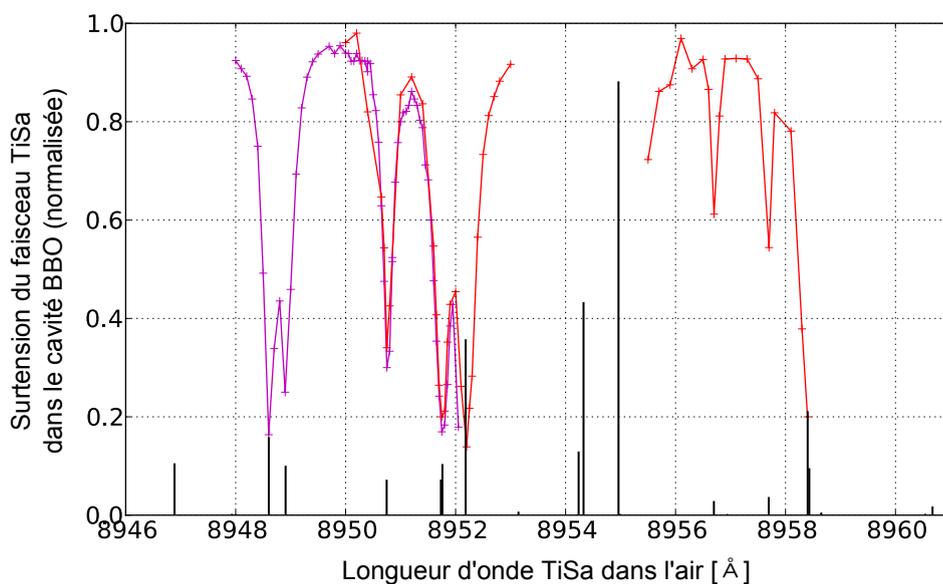
Pour les expériences précédentes, la longueur d'onde du laser était de 820 nm. On rappelle que deux doublages successifs permettaient d'atteindre la longueur d'onde de 205 nm. Pour les besoins de cette nouvelle expérience il a fallu ré-optimiser le laser TiSa à 894 nm. Pour cela nous avons changé tous les miroirs de la cavité laser par des miroirs de réflexion maximale à 894 nm. En figure 2.12 est représentée la puissance émise par le laser en fonction de sa longueur d'onde.

### La cavité BBO

Nous avons été dans un premier temps surpris de voir la surtension baisser lorsqu'on asservissait la cavité BBO à 894 nm. On a découvert que cet effet dépendait de la longueur d'onde. Une étude méthodique de la surtension en fonction de la longueur d'onde du laser (mesurée au lambdamètre) nous a permis de découvrir que cet effet était dû à l'absorption des molécules d'eau présentes dans l'atmosphère (voir figure 2.13). Avec une surtension de 100, la longueur effective parcourue par la lumière dans la cavité est de 180 mètres. Ainsi une absorption de 0,5 %/m devient gênante pour notre expérience. Nous avons donc placé le système des deux cavités imbriquées sous flux d'air comprimé sec, ce qui a éliminé cet effet.



(A) Raies d'absorption de l'air sur 180 m obtenues à partir de la base de données HITRAN. À ces longueurs d'onde les raies correspondent essentiellement à la molécule d'eau  $H_2O$ .



(B) Rapport entre la puissance du faisceau infrarouge qui circule dans la cavité BBO lorsque celle-ci est asservie et la puissance infrarouge maximale lorsque la cavité BBO est balayée. En noir est indiquée la position des raies du spectre d'absorption de l'eau.

FIGURE 2.13: Mise en évidence de l'absorption de l'eau dans la cavité de surtension du TiSa. La longueur d'onde dans l'air du laser TiSa qui coïncide avec le centre de la résonance  $1S - 3S$  vaut environ 895,2 nm.

Avec 13,5 W pour le laser pompe à 532 nm, on obtient environ 1,5 W de faisceau infra-rouge à 894 nm. À l'aide d'un télescope le diamètre du faisceau est divisé par deux et sa courbure est ajustée afin d'optimiser l'injection dans la cavité de somme.

Avec un coupleur d'entrée de transmission de 2,3% et une surtension de 100, et grâce aux équations 2.23, nous estimons un taux d'injection de 85,2 % et les pertes de la cavité à 0,5 %.

### 2.2.3 La cavité à 266 nm

#### Le doublage de fréquence

Le faisceau à 266 nm est obtenu par doublage de fréquence à partir d'un laser Nd :YVO<sub>4</sub> doublé à 532 nm (Verdi de la société Coherent). Ce doublage, effectué dans une cavité en anneau avec un cristal BBO, a été fourni par cette même entreprise (appareil MBD 266). On injecte environ 1,2 W de la puissance du Verdi dans la cavité de doublage pour ne pas risquer de détériorer le cristal. Pour assurer une stabilité d'efficacité de conversion et éviter l'absorption par le cristal de la vapeur d'eau atmosphérique, sa température est stabilisée à 50°C. La longueur de la cavité de doublage en anneau mesure une trentaine de centimètres. Sa longueur est asservie par la méthode Hänsch-Couillaud.

On obtient environ 260 mW à 266 nm.

#### La cavité BBO

Une lentille cylindrique positionnée à la sortie du MBD 266 assure un faisceau rond à environ deux mètres, ce qui correspond approximativement à l'entrée de la cavité de somme de fréquences. On utilise de même un télescope dont on ajuste la distance entre les lentilles pour optimiser la surtension dans la cavité en anneau. On a choisi un coupleur d'entrée avec une transmission de 6%. L'équation 2.23 nous donne une estimation du pourcentage de la lumière injectée dans la cavité, soit environ 66%. Ce faible taux d'injection est dû d'une part à la face d'entrée du BBO, dont l'angle d'incidence est optimisé pour le faisceau infrarouge, et non pour le faisceau UV. D'autre part le couplage de mode est rendu difficile par le caractère elliptique du faisceau en sortie de doublage. Les pertes de la cavité sont évaluées à 3,5%.

Sans la présence du cristal, la surtension de la cavité à 266 nm est de 19 et décroît à 13 en présence du cristal. La puissance intra-cavité s'élève ainsi à 2,5 W.

À ce stade, nous n'avons pas cherché à améliorer le couplage de mode dans la cavité à 266 nm. En effet, les expériences précédentes de génération de faisceau UV par conversion de fréquence ont mis à jour que les effets thermiques dus à l'absorption résiduelle du cristal dans l'UV réduisent l'efficacité de conversion.

## 2.3 Efficacité de somme

### 2.3.1 Rappels théoriques

Dans un premier temps nous allons estimer l'efficacité de la somme à partir des équations de Maxwell. En injectant le vecteur déplacement électrique  $\vec{D}$  dans les équations de Maxwell, on obtient l'équation de propagation des ondes électromagnétiques dans un milieu diélectrique non chargé.

$$\Delta \vec{E} - \vec{\nabla}(\vec{\nabla} \cdot \vec{E}) - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} = \mu_o \frac{\partial^2 \vec{D}}{\partial t^2} \quad (2.25)$$

En première approximation on se place dans le cas particulier d'une onde plane progressive :  $\vec{E}(z, t) = \vec{e} A(z) e^{i(kz - \omega t)} + cc..$  On peut ainsi obtenir l'équation régissant l'évolution de l'amplitude du champ exciteur  $A(z)$  :

$$\frac{\partial A}{\partial z} = \frac{i\omega_3}{n_3 c} \underbrace{\vec{e}_3 \cdot \chi^{(2)}(\omega_1, \omega_2) : \hat{e}_1 \cdot \hat{e}_2}_{\chi_{eff}^{(2)}} A_1 A_2 e^{i\Delta \vec{k} \cdot \vec{z}} \quad (2.26)$$

On a posé  $\Delta \vec{k} = (\vec{k}_1 + \vec{k}_2) - \vec{k}_3$ . On se place à l'accord de phase parfait  $\Delta \vec{k} = 0$ . On considère de plus que l'amplitude des champs  $A_1$  et  $A_2$  est constante sur toute la longueur du cristal  $l$ . Ceci n'est pas évident, en effet l'énergie des faisceaux pompes est convertie en énergie ultra-violette. Cependant, comme nous le verrons plus loin, cette perte par conversion de puissance est négligeable devant les puissances intracavité. En notant arbitrairement  $\chi_{eff}^{(2)} = 2d_{eff}$ , on obtient l'expression de l'amplitude de l'onde sommée suivante :

$$A_3(l) = \frac{2i\omega_3}{n_3 c} d_{eff} A_1 A_2 l \quad (2.27)$$

Or la puissance d'une onde  $i$  s'exprime ainsi :  $P_i = 2\epsilon_o n_i |E_i|^2 a_i$  où  $a_i$  est la section du faisceau. La puissance de l'onde sommée s'écrit donc :

$$P_3 = \frac{8\omega_3^2 \epsilon}{n_3 c} d_{eff}^2 A_1^2 A_2^2 l^2 a_3$$

L'efficacité de conversion  $\alpha$  devient finalement :

$$\alpha = \frac{2\omega_3^2 d_{eff}^2}{\underbrace{n_3 n_1 n_3 c^3 \epsilon_o}_{\mathbf{K}_{\omega_3}}} \frac{l^2 a_3}{a_1 a_2} \quad (2.28)$$

On remarque que la constante  $K_{\omega_3}$  de somme de fréquences est 4 fois plus grande que celle obtenue par doublage de fréquence [BOYD1968].

### Faisceaux gaussiens

Nous utilisons dans notre expérience des faisceaux gaussiens focalisés au centre du cristal. En les focalisant beaucoup, l'intensité lumineuse est importante ce qui favorise les interactions non linéaires mais la condition d'accord de phase est moins bien réalisée du fait que les faisceaux ne sont parfaitement colinéaires que sur une plus petite longueur. En ne les focalisant pas assez, le recouvrement des deux ondes pompes est bon mais l'intensité plus faible ce qui diminue le rendement de la somme. Il existe ainsi un optimum de focalisation qui maximise la puissance de l'onde générée. Boyd et Kleinman ont étudié en détail cet optimum dans le cas d'un doublage de fréquence pour un cristal uniaxe [BOYD1965].

L'efficacité de conversion est alors proportionnelle à une fonction  $h_m(B, \xi)$  qui est calculée numériquement dans l'article ci-dessus et dépend de l'angle de double réfraction  $\rho$  et du waist du faisceau incident :

$$\alpha_{2\omega} = \frac{P_\omega}{P_{2\omega}} = K(\omega) \frac{lk_\omega}{\pi} h_m(B, \xi)$$

où  $P_{2\omega}$  est la puissance de l'onde doublée,  $k_\omega$  est le vecteur d'onde de l'onde incidente et  $P_\omega$  sa puissance.

Dans le cas d'une somme de fréquences, les auteurs définissent une onde "moyenne". Les indices 1, 2, 3 et 0 décrivent respectivement les deux ondes incidentes, l'onde générée et l'onde moyenne. La pulsation de l'onde moyenne est  $\omega_0 = (\omega_1 + \omega_2)/2$ , à cette pulsation l'indice du cristal est  $n_o = (n_1 + n_2)/2$ . Le waist de l'onde moyenne est  $w_o^2 = 2w_3^2$  et son vecteur d'onde est défini par  $k_o = n_o\omega_o/c$ .

L'efficacité de conversion dans le cas d'une somme de fréquences devient alors :

$$\alpha_{SFG} = 4K_{\omega_0} \frac{lk_o}{\pi} h_m(B, \xi) \frac{(1 - a^2)(1 - \gamma^2)}{(1 + a\gamma)} \quad (2.29)$$

$$\text{avec } B = \rho \frac{\sqrt{lk_o}}{2}$$

$$\text{et } \xi = \frac{l}{b_o} \quad \text{avec } b_o = k_o w_o^2$$

Les deux paramètres sans dimension  $\gamma$  et  $a$  sont définis comme suit :

$$\gamma = \frac{\omega_1 - \omega_2}{\omega_1 + \omega_2} \quad a = \frac{n_1 - n_2}{n_1 + n_2}$$

On se reporte aux courbes de la figure 2.14, données dans [BOYD1965], pour déterminer la valeur prise par la fonction  $h_m(B, \xi)$  dans notre expérience.

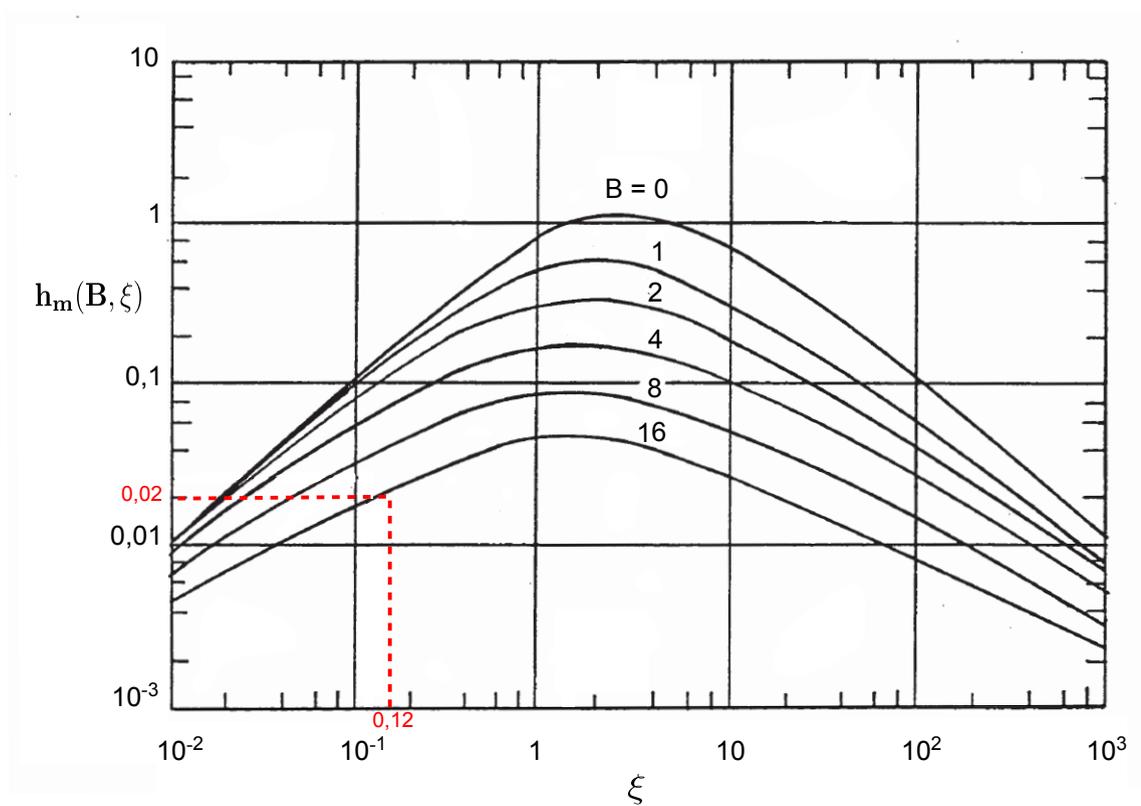


FIGURE 2.14: Efficacité de conversion en fonction du paramètre de focalisation  $\xi = l/b$  pour différents paramètres de double réfraction  $B$ . En rouge est indiquée notre situation expérimentale.

### Modifications dues à l'incidence de Brewster

Comme nous l'avons vu précédemment, le cristal de BBO est taillé à l'incidence de Brewster pour limiter les pertes par réflexion. Dans le cristal la section du faisceau devient elliptique : le waist dans le plan vertical n'est pas modifié  $w_y = w_o$  alors que le waist dans le plan horizontal devient  $w_x = nw_o$ . Sophie Bourzeix a effectué dans le cadre de sa thèse le calcul détaillé de Boyd et Kleinman dans le cas d'un faisceau elliptique. Le résultat est le suivant :

$$\alpha_{\text{Brewster}} = \frac{\alpha_{\text{Boyd et Kleinman}}}{n}$$

Ce résultat reste valable dans le cadre de l'onde moyenne.

On néglige de plus l'absorption dans le cristal et on obtient l'efficacité finale de conversion suivante :

$$\alpha_{SFG} = 4K_{\omega_0} \frac{lk_o}{n\pi} h_m(B, \xi) \frac{(1-a^2)(1-\gamma^2)}{(1+a\gamma)} \quad (2.30)$$

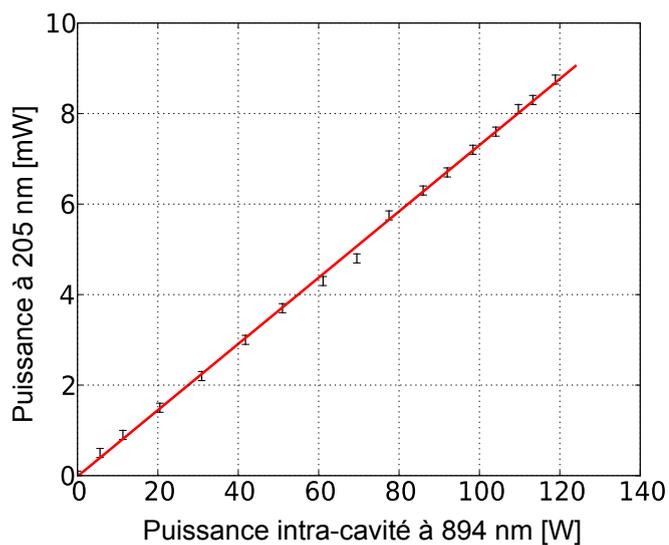
#### 2.3.2 Performances obtenues

Avec un cristal de longueur 5,75 mm, nous calculons  $B = 16,3$  et  $\xi = 0,12$ . Nous pouvons ainsi estimer la fonction  $h_m(B, \xi)$  à approximativement 0,02 (voir figure 2.14). L'efficacité de conversion  $\alpha_{SFG}$  attendue théoriquement vaut ainsi environ  $1 \times 10^{-4} \mathbf{W}^{-1}$  (l'approximation considérant que la puissance des faisceaux pompes est faiblement réduite par conversion de fréquence est ainsi bien vérifiée).

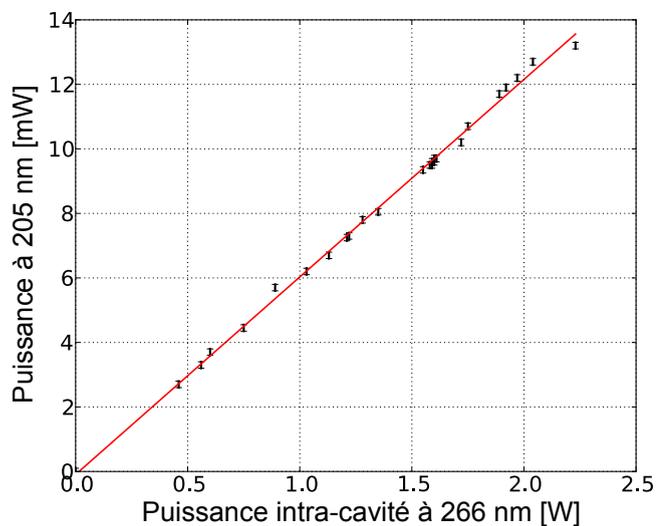
Nous avons représenté sur les figures 2.15b et 2.15a l'évolution de la puissance du faisceau à 205 nm en fonction de la puissance du faisceau à 266 et à 894 nm respectivement tout en laissant la puissance de l'autre faisceau fixe. On observe un comportement linéaire en parfaite adéquation avec la théorie. La pente de la droite nous donne accès au facteur d'efficacité  $\alpha_{SFG}$ . Il vaut  $6,12 \times 10^{-5} \mathbf{W}^{-1}$  pour la courbe 2.15b et  $4,9 \times 10^{-5} \mathbf{W}^{-1}$  pour la courbe 2.15a.

Les pertes à 205 nm dues à la fenêtre de sortie taillée à l'incidence de Brewster sont estimées pour le faisceau à 205 nm à 30%. L'efficacité réelle de conversion vaut alors **8,7** et  $7 \times 10^{-5} \mathbf{W}^{-1}$ , ce qui est très proche de la valeur estimée théoriquement ( $1 \times 10^{-4} \mathbf{W}^{-1}$ ).

Contrairement à l'expérience précédente nous n'avons pas observé de dégradation brutale de la puissance du faisceau à 205 nm. Il faut noter que nous avons utilisé deux cristaux de différentes entreprises (Crylight et Casix). Seul celui de la société Crylight nous a permis de générer un faisceau continu à 205 nm. Ce résultat est probablement dû à un procédé de fabrication différent (impuretés,...).



(A) On mesure la puissance UV à 205 nm à environ deux mètres du cristal BBO. La puissance intra-cavité du faisceau à 266 nm est de 1,5 W. On fait varier la puissance du faisceau à 894 nm en changeant la puissance du laser de pompe du TiSa.



(B) On mesure la puissance UV à 205 nm à environ deux mètres du cristal BBO. La puissance intra-cavité du faisceau à 894 nm est de 100 W. On fait varier la puissance du faisceau à 266 nm en changeant la puissance du laser Verdi V6.

FIGURE 2.15: Dépendance de la puissance UV en fonction de la puissance des lasers sources.

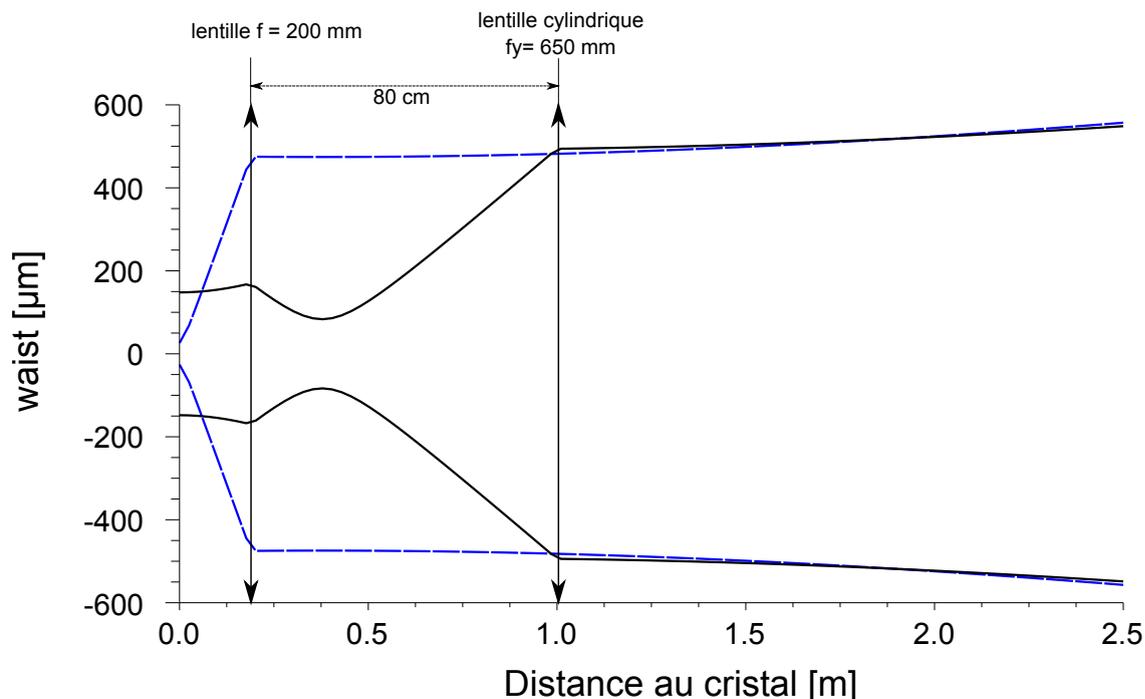


FIGURE 2.16: Propagation du plan horizontal (en tirets) et vertical (en trait plein) du faisceau en sortie du cristal et position optimale des lentilles pour obtenir un faisceau rond.

### 2.3.3 Adaptation du faisceau au jet atomique

Le faisceau à 205 nm est elliptique à la sortie du cristal. Son waist dans le plan horizontal est de  $w_{ox} = 26 \mu\text{m}$  et dans le plan vertical  $w_{oy} = 154 \mu\text{m}$ . Comme il doit être injecté dans la cavité du jet atomique il est donc indispensable d'obtenir un faisceau rond à l'entrée du jet. Pour cela nous allons stopper le divergence rapide du faisceau sur le plan horizontal par une lentille convergente. On place celle-ci de sorte que le faisceau soit au mieux collimaté dans le plan horizontal. Puis on dispose une lentille cylindrique pour collimater à son tour le faisceau dans le plan vertical. Comme nous ne disposons pas de lentille cylindrique anti-reflet à 205 nm, celle-ci doit être orientée à l'incidence de Brewster pour minimiser les pertes. Il faut alors tenir compte de la légère modification de sa focale suivant son angle d'incidence. De plus le constructeur nous indique la focale à 633 nm. La focale à 205 nm vaut  $\frac{n_{633}-1}{n_{205}-1} \times f_{633}$  et est ainsi 10 mm plus petite. Après étude de la propagation des faisceaux gaussiens, nous avons choisi de placer une lentille de 200 mm de focale à 189 mm du cristal puis une lentille cylindrique de 650 mm de focale dans le plan vertical à 1 mètre du cristal. La figure 2.16 illustre ce choix de lentille. L'allure du faisceau à l'entrée de la cavité UV est représenté sur la photographie 2.17.

Le faisceau à 205 nm se propage ensuite dans l'air. L'absorption résiduelle de l'air est négligeable : elle est inférieure au pour-cent d'après les données d'HITRAN.

## Conclusion

J'ai décrit dans ce chapitre la source continue monomode accordable réalisée pour la spectroscopie de l'atome d'hydrogène. Le choix de remplacer les doublages de fréquences utilisés précédemment par une somme de fréquences s'est trouvé conforté par l'excellent résultat obtenu. Durant des mois, pendant mon travail de thèse, cette source a délivré quotidiennement une puissance supérieure à 10 mW.

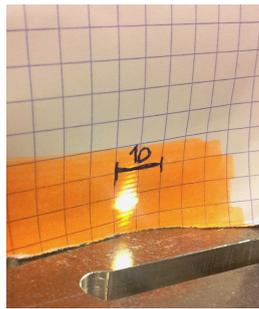


FIGURE 2.17: Fluorescence d'un papier enduit de Stabilo Boss® à l'excitation du faisceau UV à 205 nm. Cette image est prise juste avant l'entrée du faisceau dans la cavité UV située dans l'enceinte à vide.

## Chapitre 3

# Mesures absolues de fréquences optiques

La spectroscopie de haute résolution requiert deux impératifs : posséder des lasers étroits spectralement et avoir accès de façon très précise à leurs fréquences. Dans ce chapitre, je vais montrer comment nous répondons à ces exigences. Premièrement je vais décrire les asservissements des lasers utilisés pour générer l'onde à 205 nm : le laser titane-saphir et le laser Nd :YVO<sub>4</sub> doublé. Je vais ensuite introduire un outil indispensable en métrologie des fréquences optiques : un peigne de fréquences optiques généré à l'aide d'un laser femtoseconde. Il nous permettra d'avoir accès à la fréquence absolue de nos lasers. La fréquence absolue de l'onde sommée à 205 nm étant alors connue, on pourra sonder les atomes d'hydrogène ; ce sera le thème de la troisième partie.

### 3.1 Le contrôle des fréquences des lasers sources

La procédure d'asservissement des sources lasers est détaillée en figure 3.1.

#### 3.1.1 Le laser titane-saphir

Le laser titane-saphir a été décrit dans le chapitre 2. Nous disposons à ce stade d'un laser monomode balayable en longueur d'onde. Pour notre expérience il faut réduire sa largeur de raie et contrôler plus finement sa fréquence. Les fluctuations rapides de fréquence du laser sont corrigées à l'aide d'une cavité Fabry-Perot auxiliaire (FPA<sub>TiSa</sub>). Le contrôle fin de la fréquence est assuré par une deuxième boucle d'asservissement sur la cavité Fabry-Perot de référence (FPR).

Le laser TiSa est asservi sur la cavité FPA<sub>TiSa</sub> grâce à la méthode Pound-Drever-Hall (PDH) en utilisant un modulateur électro-optique de phase [DREVER1983]. Par effet Pockels, le champ électrique appliqué au cristal électro-optique va modifier son indice

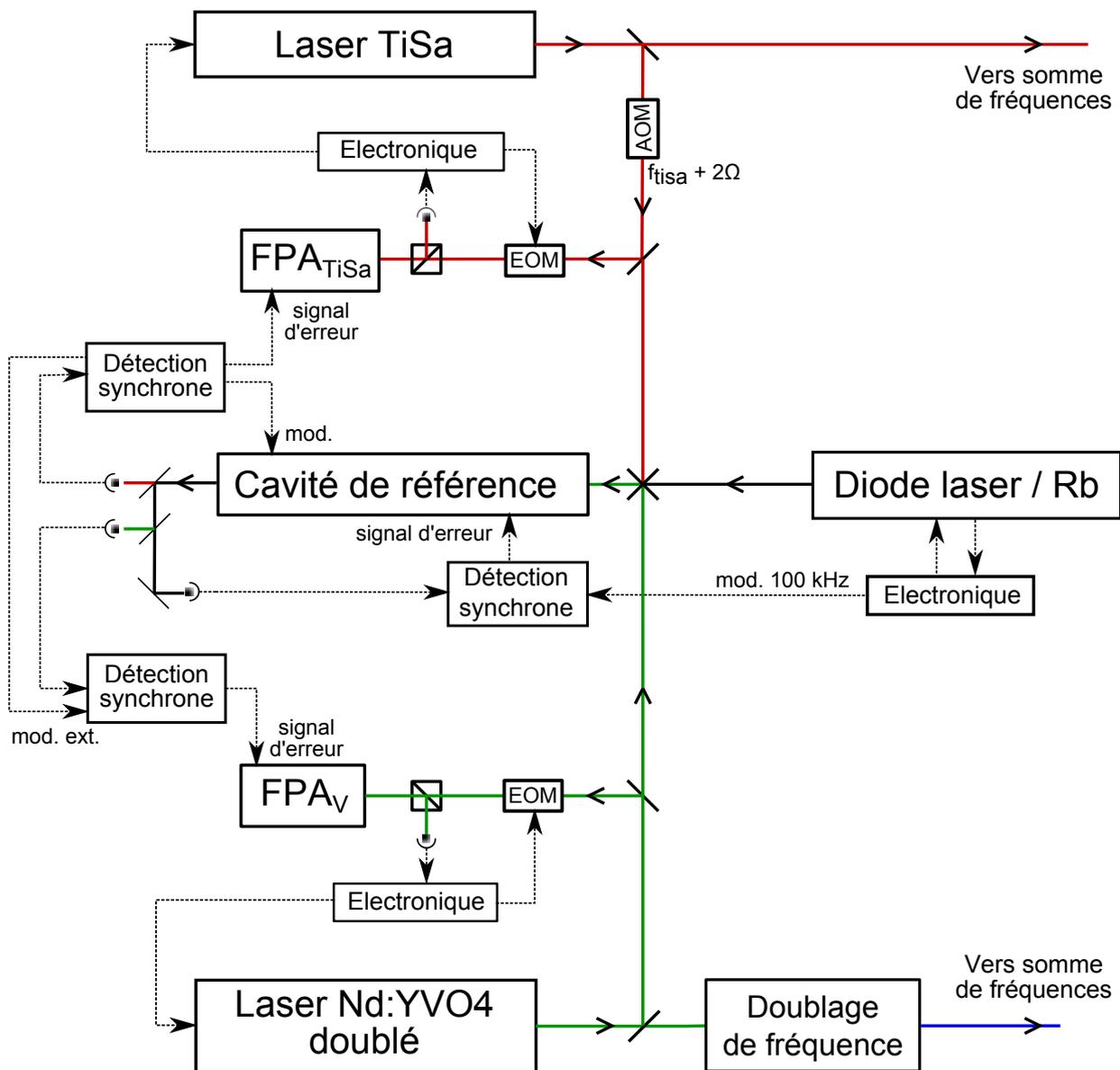


FIGURE 3.1: **Schéma d'asservissement des deux lasers.** Les lasers sont envoyés simultanément dans la cavité de référence FPR puis séparés en sortie, en jouant sur la polarisation des faisceaux et/ou leurs longueurs d'onde. En effet, la polarisation du laser étalon (DL/Rb) est verticale alors que celles des deux autres lasers est horizontale. Le faisceau à 532 nm est aisément séparé des autres faisceaux par un miroir  $R_{max}$  à 532 nm. Un miroir (690-770 nm) et un polariseur permettent de séparer les faisceaux à 894 et 778 nm. Les miroirs de la cavité FPR sont formés par un dépôt métallique d'argent et sont donc réfléchissants dans une large plage de longueur d'onde (450 à 2000 nm).

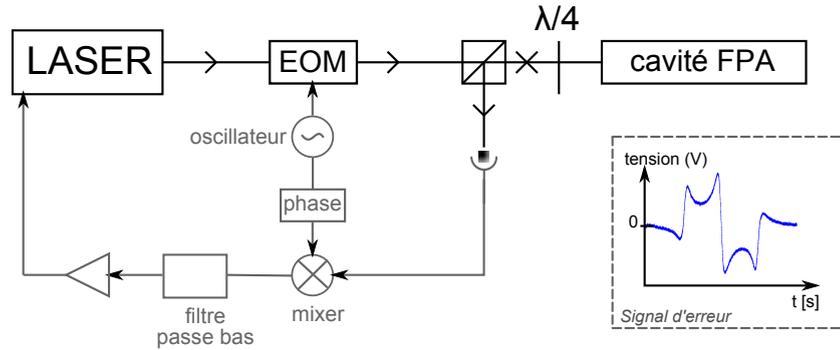


FIGURE 3.2: Schéma d'asservissement Pound-Drever-Hall

optique. Comme le champ électrique (de fréquence RF  $\Omega$ ) est sinusoïdal, on rajoute une modulation de fréquence à l'onde optique (de fréquence  $\omega$ ) traversant le cristal. Le faible indice de modulation fait que seules deux bandes latérales de fréquences sont visibles (de fréquence  $\omega \pm \Omega$ ). Lorsque l'onde optique est résonante avec la cavité FPA<sub>TiSa</sub>, les deux bandes latérales sont réfléchies par la cavité avec la même phase en valeur absolue. Lorsque l'onde optique est légèrement désaccordée avec la résonance de la cavité, les deux bandes latérales seront réfléchies avec des phases différentes. L'information sur le désaccord par rapport à la résonance est alors obtenu en analysant l'onde réfléchie par la cavité. Cette onde est détectée avec une photodiode rapide et contient entre autre les deux bandes latérales.

Pour effectuer cette analyse, le signal de la photodiode rapide est mélangé avec la modulation RF de phase bien déterminée. Le signal basse fréquence a alors une forme de dispersion idéale avec des "ailes" très larges et une pente très élevée au proche voisinage de la fréquence de résonance du FPA<sub>TiSa</sub>. Un modèle quantitatif expliquant la forme de ce signal est fort bien détaillé en référence [BLACK2001]. Grâce à ce signal d'erreur, on peut corriger très efficacement les fluctuations de fréquence du laser TiSa.

Le schéma typique d'asservissement PDH ainsi qu'un signal d'erreur généré typique sont représentés en figure 3.2.

Pour notre longueur d'onde (894 nm), il a fallu changer les miroirs de la cavité FPA<sub>TiSa</sub> par rapport à la situation précédente à 820 nm. Cette cavité est formée d'un barreau d'invar long de 25 cm, d'un miroir d'entrée de réflexion  $R = 97\%$  et de rayon de courbure  $R_c = 1$  m et d'un miroir de sortie de réflexion maximale à 770 nm (réflexion comprise entre 700 et 900 nm) et de rayon de courbure  $R_c = 4$  m. La finesse de la cavité vaut donc théoriquement 100, soit une largeur de pic d'environ 6 MHz. La fréquence de la modulation appliquée au modulateur électro-optique vaut 15 MHz.

Le signal d'erreur est amplifié et envoyé sur le modulateur électro-optique situé dans la cavité du laser TiSa et sur une cale piézoélectrique montée sur le miroir M4 de la cavité.

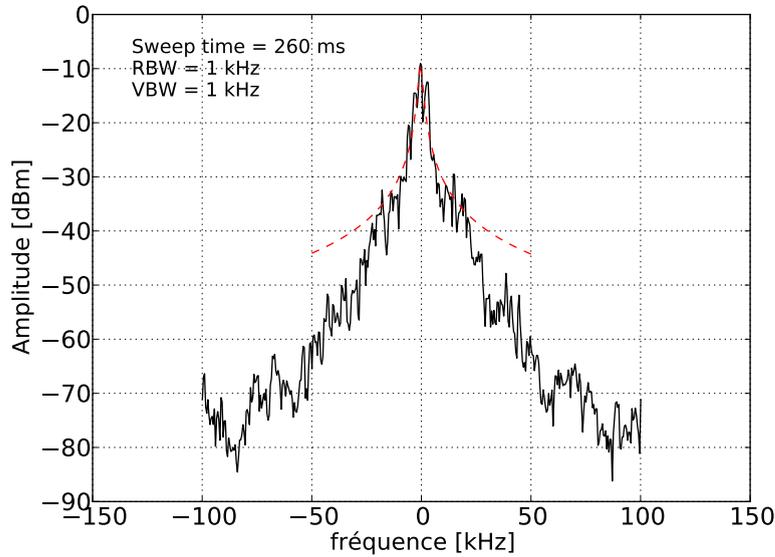


FIGURE 3.3: Battement du laser TiSa sur lui-même dont une partie a été retardée de  $30 \mu\text{s}$  environ. La largeur à mi-hauteur du battement est évaluée comme la largeur du signal mesurée à un seuil de  $-3 \text{ dBm}$  en deçà du maximum du battement.

À ce stade, seules les fluctuations de fréquence du laser sont contrôlées. La longueur de la cavité  $\text{FPA}_{\text{TiSa}}$  variant avec la température, la fréquence du laser asservi sur cette cavité n'est pas suffisamment stable dans le temps pour balayer de manière reproductible un signal atomique étroit ( $1 \text{ MHz}$ ). La deuxième boucle d'asservissement va régler ce problème.

Comme présenté sur la figure 3.1, une détection synchrone est utilisée pour asservir la longueur de la cavité  $\text{FPA}_{\text{TiSa}}$  sur celle de la cavité de référence FPR. Comme la longueur de la cavité FPR est asservie sur un laser étalon de référence, à ce stade de la description elle peut être considérée comme fixe. Ainsi le signal de transmission de la cavité FPR, filtré par une détection synchrone, est utilisé pour piloter la longueur de la cavité  $\text{FPA}_{\text{TiSa}}$  afin de maximiser la transmission du laser TiSa pour la cavité FPR (cette cavité sera décrite plus en détail dans le paragraphe 3.1.4).

### Largeur de raie du laser TiSa

Comme nous ne disposons pas d'une autre source laser étroite spectralement à cette longueur d'onde, nous avons utilisé les deux fibres optiques reliant notre laboratoire au laboratoire du SYRTE (Systèmes de Référence Temps-Espace) comme une ligne à retard optique, puis réalisé le battement entre le train d'onde ayant fait l'aller-retour dans la fibre et un train d'onde local. On peut montrer avec les hypothèses d'un spectre de la raie laser lorentzien et d'un module de la fonction de cohérence exponentiel décroissant que le battement ainsi obtenu est celui de deux sources non corrélées.

En théorie, il faudrait une largeur de raie laser plus petite que 11 kHz pour obtenir un battement entre deux ondes cohérentes [DEBEAUVOIR1997a]. Dans la pratique les bruits acoustiques sur la fibre viennent modifier la phase de l'onde transportée par cette fibre. Ainsi, quand bien même le laser TiSa était optimisé pour exciter la transition 2S-8S/8D de l'hydrogène ( $\Delta_{TiSa} < 10$  kHz), il n'a pas été possible de réaliser un battement entre deux ondes cohérentes : il faudrait des lasers beaucoup plus étroits spectralement. Il faut noter qu'il existe d'autres effets non linéaires (Diffusion Raman stimulée, effet Brillouin) dans la fibre optique qui peuvent rajouter du bruit de fréquence. Cependant la puissance optique utilisée est faible et ces effets sont négligeables dans notre expérience [DEBEAUVOIR1997a].

Concrètement, une partie du faisceau laser est envoyée dans les fibres optiques qui nous relient au laboratoire SYRTE . Les fibres sont bouclées l'une sur l'autre au SYRTE. Le faisceau fait donc un aller-retour et parcourt environ 6 km. On compare cette onde avec celle d'un faisceau local dont la fréquence a été décalée de 192 MHz. On observe à l'analyseur de spectre le battement RF entre ces deux faisceaux, soit la convolution de leurs deux enveloppes spectrales. La largeur du battement nous donne alors accès à la largeur spectrale du laser TiSa .

Nous avons réussi à améliorer cette largeur de raie en augmentant la puissance optique envoyée vers les systèmes d'asservissements de fréquence. Ceci a permis de ramener la largeur de raie de 40 kHz à environ 10 kHz (cf Fig. 3.3). La largeur naturelle du signal atomique vaut environ 1 MHz, le laser TiSa ne contribuera donc pas significativement à un élargissement de ce signal.

### 3.1.2 Le laser Nd :YVO<sub>4</sub> doublé

Le laser Nd :YVO<sub>4</sub> doublé, ou laser Verdi, est asservi exactement de la même manière que le laser TiSa. Le laser Verdi est doté de deux cales piézoélectriques, une lente et une rapide. La longueur de la cavité du laser est asservie sur une cavité nommée FPA<sub>V</sub> par la procédure d'asservissement Pound-Drever-Hall (PDH). Cette cavité est identique à celle du FPA<sub>TiSa</sub>. Elle est formée d'un barreau d'invar de longueur 25 cm, d'un miroir de réflectivité maximale à 532 nm et de rayon de courbure 12 m et monté sur une cale piézoélectrique ainsi que d'un miroir R = 98,5 % et Rc = 1 m. La finesse de la cavité est donc de 415 et la largeur de raie du pic Fabry-Perot d'environ 1,5 MHz. La stabilité long terme est de même assurée par l'asservissement de la cavité FPA<sub>V</sub> sur la cavité FPR.

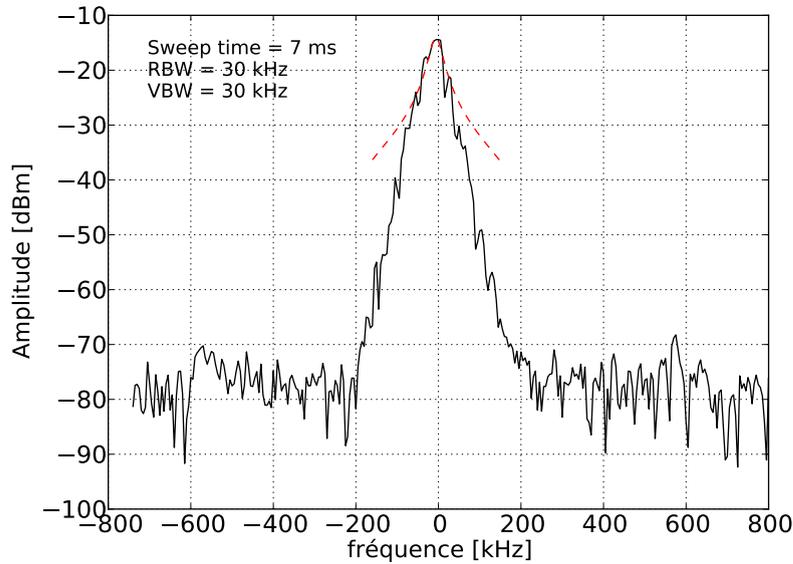


FIGURE 3.4: Battement entre notre laser Verdi et le laser Prometheus du SYRTE. La largeur à mi-hauteur du battement est évaluée comme la largeur du signal mesurée à un seuil de -3 dBm en deçà du maximum du battement.

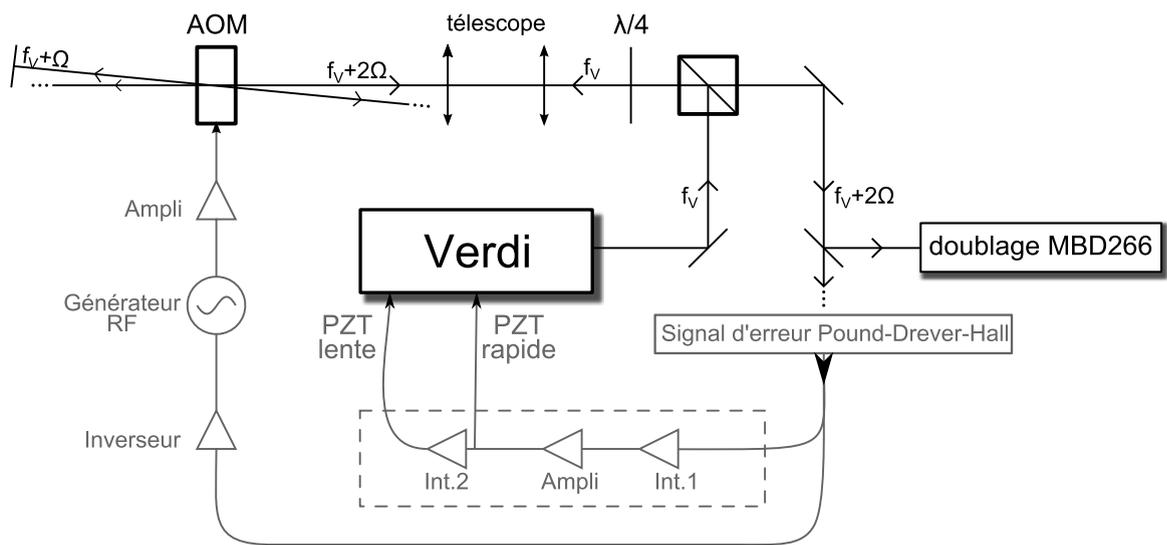
### Largeur de raie du laser Verdi

Afin de mesurer la largeur de raie du laser Verdi, nous avons tout d'abord pensé refaire la même expérience que pour le laser TiSa. Cependant la fibre qui fait l'aller-retour avec le laboratoire SYRTE est une fibre Telecom. L'absorption résiduelle de ces fibres aux longueurs d'onde Telecom est d'environ 0,3 dB/km alors qu'à 532 nm elle vaut 10 dB/km. L'expérience ne peut donc pas être réalisée à 532 nm. Notons qu'à la longueur d'onde du titane-saphir, l'atténuation dans une fibre Telecom est d'environ 1,5 dB/km, ce qui rendit possible l'expérience.

Nous avons alors pensé à utiliser un faisceau résiduel à 1064 nm en sortie du laser Verdi. Mais la puissance disponible ne vaut que quelques microwatts, ce qui est insuffisant pour effectuer l'aller-retour avec le SYRTE. D'autres méthodes ont donc été utilisées.

Pour effectuer une première estimation de largeur de raie, on mesure l'amplitude des fluctuations du signal d'erreur de l'asservissement PDH alors que le laser est asservi sur la cavité  $FPA_V$  (elle-même asservie sur la cavité FPR). De la pente du signal d'erreur PDH et de l'étalonnage temps/fréquence à l'aide des bandes latérales, on en déduit une largeur de raie d'environ 130 kHz. Cette méthode donne plutôt une limite haute à la largeur de raie du laser.

Une méthode plus rigoureuse consiste à mesurer le battement de notre laser avec un laser à la même longueur d'onde mais de largeur de raie plus étroite. La largeur du battement observé est alors très proche de la largeur de raie du laser le plus large.



(A) Schéma d'asservissement du Verdi avec compensation par un acousto-optique.

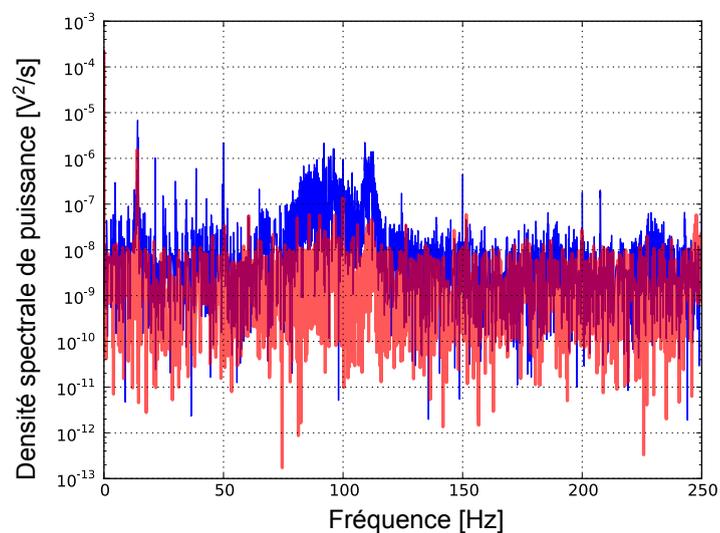
(B) Transformée de Fourier du signal d'erreur Pound-Drever-Hall lorsque le laser est asservi sur la cavité  $FPA_V$ . En rouge avec la correction du modulateur acousto-optique, En bleu sans cette correction. Taux d'échantillonnage de 500 Hz.

FIGURE 3.5

Avec la collaboration de Ouali Acef du laboratoire SYRTE, nous avons effectué un battement avec un deuxième laser vert de type Prometheus fabriqué par Innolight GmbH en Allemagne. La largeur de raie de ce laser dans l'IR (à 1064 nm) a été mesurée à 2 kHz. Le battement représenté en figure 3.4 peut être ajusté par une gaussienne de largeur 42 kHz.

Là encore la largeur de raie du laser Verdi, de cet ordre de grandeur, n'est pas gênante pour observer la transition  $1S - 3S$ .

Nous avons alors essayé d'améliorer cette largeur de raie en corrigeant les fluctuations de fréquence à l'aide d'un modulateur acousto-optique (AOM). La figure 3.5a illustre l'expérience mise en place avec le matériel disponible.

Le principe de cet asservissement est de corriger les fluctuations de fréquence rapides directement sur la faisceau de sortie du laser Verdi car la bande passante d'asservissement à l'aide de l'AOM est plus grande. Le prix à payer est une perte de puissance pour le reste de l'expérience (doublage à 266 nm).

Cependant, nous n'envoyons pas beaucoup plus d'un watt dans la cavité de doublage à 266 nm pour limiter le risque de détérioration du cristal doubleur de cette cavité; ce nouvel asservissement n'est donc pas limitant pour notre expérience.

Nous avons comparé la transformée de Fourier du signal asservi sur la cavité FPA<sub>V</sub> avec et sans la correction de l'AOM. On remarque alors sur la figure 3.5b que l'AOM corrige à très basse fréquence mais nous n'avons pas vu d'amélioration notable à haute fréquence. Nous aurions pu implémenter un module pour corriger les fluctuations d'intensité du laser Verdi sur la puissance RF pilotant l'AOM. Une telle modification ne se justifiait pas, le jitter du laser Verdi n'ayant pas augmenté. Nous n'avons pas non plus observé une augmentation des fluctuations d'intensité de l'UV généré à 205 nm.

### 3.1.3 Le laser étalon de fréquence

Les deux lasers source sont asservis sur la cavité de référence FPR qui est elle-même asservie sur une diode laser stabilisée sur une transition à deux photons du rubidium. Cet étalon de fréquence fut développé en partie par l'équipe en 1994 [DEBEAUVOIR1997a].

Je présente rapidement ici le fonctionnement de l'étalon DL/Rb qui est décrit en détail dans la thèse de Béatrice de Beauvoir. Un schéma d'ensemble de cet étalon est représenté en figure 3.8.

La diode laser (DL) est montée en cavité étendue : un réseau de diffraction agissant comme un coupleur de sortie est placé à 20 cm de la sortie de la DL. Une cale piézo-électrique montée sur le réseau permet la translation globale de celui-ci par rapport à la face d'émission pour maintenir un mode optique unique de fonctionnement.

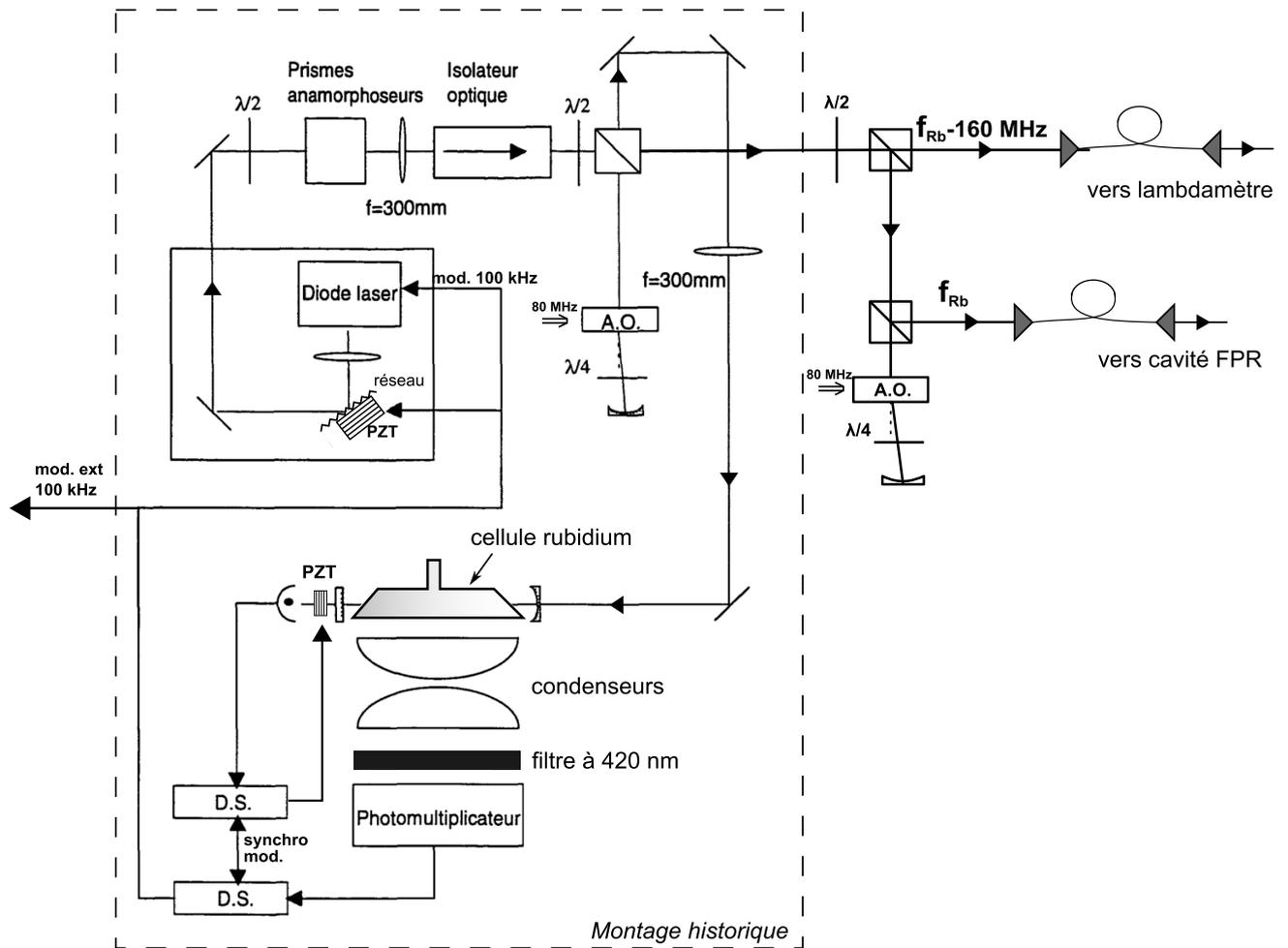


FIGURE 3.6: Schéma de principe et d'asservissement de l'étalon de fréquence à 778 nm.

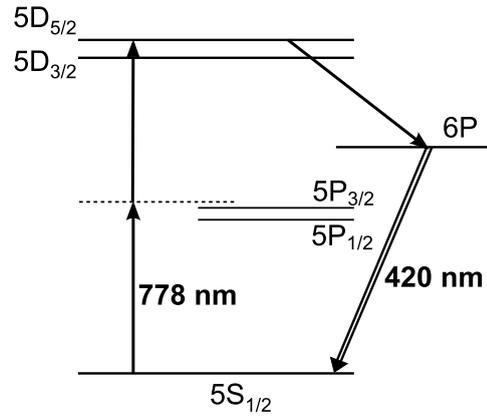


FIGURE 3.7: Niveaux d'énergie du rubidium.

Une partie du faisceau de sortie passe dans un modulateur acousto-optique et voit sa fréquence augmentée de 160 MHz. Ce faisceau est injecté dans une cavité Fabry-Perot au centre de laquelle se trouve une cellule de rubidium où est excitée la transition à deux photons du rubidium à 778 nm (voir figure 3.7). On détecte cette transition par la fluorescence à 420 nm à l'aide d'un photo-multiplicateur. Concrètement, la longueur de cette cavité Fabry-Perot est asservie pour être maintenue à résonance avec la fréquence de la diode laser.

Puis en balayant la cavité de la diode laser, par l'intermédiaire du réseau, on observe les niveaux de structure hyperfine de la transition  $5S_{1/2}(F=3)$  vers le niveau  $5D_{5/2}$ . La diode laser est asservie sur la composante la plus intense, c'est à dire sur la transition  $5S_{1/2}(F=3) - 5D_{5/2}(F=5)$  du rubidium 85.

Tous les asservissements utilisent chacun une détection synchrone avec une unique modulation à 100 kHz. La stabilité de fréquence de ce laser étalon est alors de 400 Hz sur 1 seconde d'intégration.

### 3.1.4 Étalonnage des fréquences

La cavité de référence FPR est constituée d'un barreau de zérodur (de longueur  $L=50$  cm) sur lequel sont adhésés optiquement deux miroirs métalliques, le tout placé sous vide poussé grâce à une pompe ionique. La finesse de la cavité était de 50 en 1993.

Cette cavité ayant toujours été gardée sous vide, les miroirs n'ont pas été oxydés par l'air et on peut estimer en première approximation que la finesse n'a quasiment pas varié. L'un des miroirs est monté sur un système de parallélogramme déformable par une cale piézoélectrique [Nez1993a]. Le système est conçu de telle manière qu'un peu plus d'un intervalle entre modes puisse être balayé. Comme la longueur du barreau est particulièrement stable, on peut facilement prévoir le numéro  $N$  du pic pour lequel la cavité sera résonante à 778 nm :

$$\nu_{\text{DL/Rb}} = N_{\text{DL/Rb}} \times ISL_{\text{FPR}} + \Phi \quad (3.1)$$

où  $\Phi$  est le déphasage de Fresnel de la cavité. Il ne dépend que de la géométrie de la cavité [GARREAU1989] et vaut environ 110 MHz.

Durant ma thèse, l'estimation de l'intervalle spectral libre de cette cavité est donc :

$$ISL_{FPR} = \frac{\nu_{DL/Rb} - \Phi}{1286040} \approx 299,590\,240\,094 \text{ MHz} \quad (3.2)$$

Soit  $N_i$  le numéro du pic asservi de la cavité FPR des lasers TiSa et Verdi. Leurs fréquences  $\nu_i$  respectives sont données par :

$$\nu_i = \nu_{DL/Rb} + (N_i - N_{DL/Rb}) \times ISL_{FPR} \quad (3.3)$$

Avant passage dans les cavités d'asservissement, le faisceau TiSa est injecté dans un modulateur acousto-optique monté en double passage. On peut ainsi balayer finement la fréquence du laser TiSa en balayant la fréquence RF envoyée à l'AOM, le faisceau après l'AOM étant maintenu à résonance (c'est à dire à fréquence fixe) avec la cavité FPR. La transition  $1S - 3S$  peut être ainsi balayée de manière parfaitement contrôlée par l'intermédiaire du laser TiSa.

La fréquence du faisceau IR asservi sur la cavité FPR correspond donc à la fréquence du laser TiSa auquel on ajoute deux fois la fréquence RF de l'AOM notée  $f_{AOM}$ . Le tableau ci-dessous résume les numéros des pics et la fréquence des faisceaux asservis correspondants de sorte que leur somme coïncide avec la transition  $1S - 3S$ .

Laser	Numéro pic	Estimation fréquence
Verdi	1880191	563 286 983,1 MHz
TiSa + $2 \times f_{AOM}$	1117519	334 797 895,5 MHz

On peut ainsi estimer la fréquence de nos lasers à quelques mégahertz près. Nous mesurons la longueur d'onde de nos lasers à l'aide d'un lambdamètre à mieux que 100 MHz près. L'intervalle spectral libre de la cavité FPR étant de 300 MHz environ, on peut ainsi verrouiller sans ambiguïté nos lasers sur la cavité FPR et retrouver la transition  $1S - 3S$ .

## 3.2 Le peigne de fréquences optiques

### 3.2.1 Intérêt et principe

La découverte du peigne de fréquences optiques par J. Hall et T. Hänsch (prix Nobel de physique en 2005) a révolutionné la métrologie des fréquences optiques. Cet outil permettant de mesurer en absolu des fréquences optiques très facilement, a grandement contribué aux hautes précisions atteintes par les expériences de spectroscopie de l'hydrogène.

Ce progrès technologique est né du développement des lasers femtosecondes à modes verrouillés en phase d'une part et d'autre part des fibres à cristal photonique qui permettent d'élargir le spectre optique de ces lasers femtosecondes sur plus d'une octave.

Le point de départ est donc un laser femtoseconde à modes bloqués. Ce laser délivre des impulsions dont le spectre est complètement déterminé par deux quantités : le taux de répétition des impulsions  $f_{\text{rep}}$  et une fréquence d'offset  $f_0$ .  $f_{\text{rep}}$  correspond à la différence entre deux fréquences successives du spectre et  $f_0$ , au décalage de l'extrapolation du peigne à l'origine par rapport au zéro de fréquence. Cette fréquence d'offset tient son origine physique de la différence entre la vitesse de phase (vitesse de la fréquence porteuse) et la vitesse de groupe (vitesse de l'enveloppe des impulsions) dans le laser. Ainsi la fréquence de la  $n^{\text{ième}}$  raie du peigne s'écrit :

$$f_n = f_0 + n \times f_{\text{rep}} \quad (3.4)$$

Les deux fréquences  $f_{\text{rep}}$  et  $f_0$ , dans le domaine des ondes radio, peuvent être comptées et contrôlées avec une grande précision et déterminent ainsi sans ambiguïté l'entier  $n$  et donc la fréquence  $f_n$ , pour peu que l'on connaisse suffisamment les valeurs possibles de la fréquence  $f_n$  à mesurer (à l'aide d'un lambdamètre par exemple).

Le taux de répétition  $f_{\text{rep}}$  est asservi sur un signal dérivé de l'horloge à césium du laboratoire SYRTE. La détermination de  $f_0$  nécessite que le spectre soit large d'au moins une octave. Le spectre du laser femtoseconde est élargi grâce aux diverses non linéarités d'une fibre à cristal photonique dans laquelle sont injectées les impulsions femtosecondes.

On peut alors mesurer le battement entre une raie du peigne doublée dans un cristal non-linéaire et le fondamental de cette même raie, on obtient alors un battement à la fréquence  $f_0$  :

$$2(f_0 + (n \times f_{\text{rep}})) - (f_0 + (2n \times f_{\text{rep}})) = f_0 \quad (3.5)$$

Pour mesurer précisément la fréquence d'un laser "inconnu"  $f'$  avec ce dispositif, il suffit de réaliser le battement entre ce laser et le peigne de fréquence.

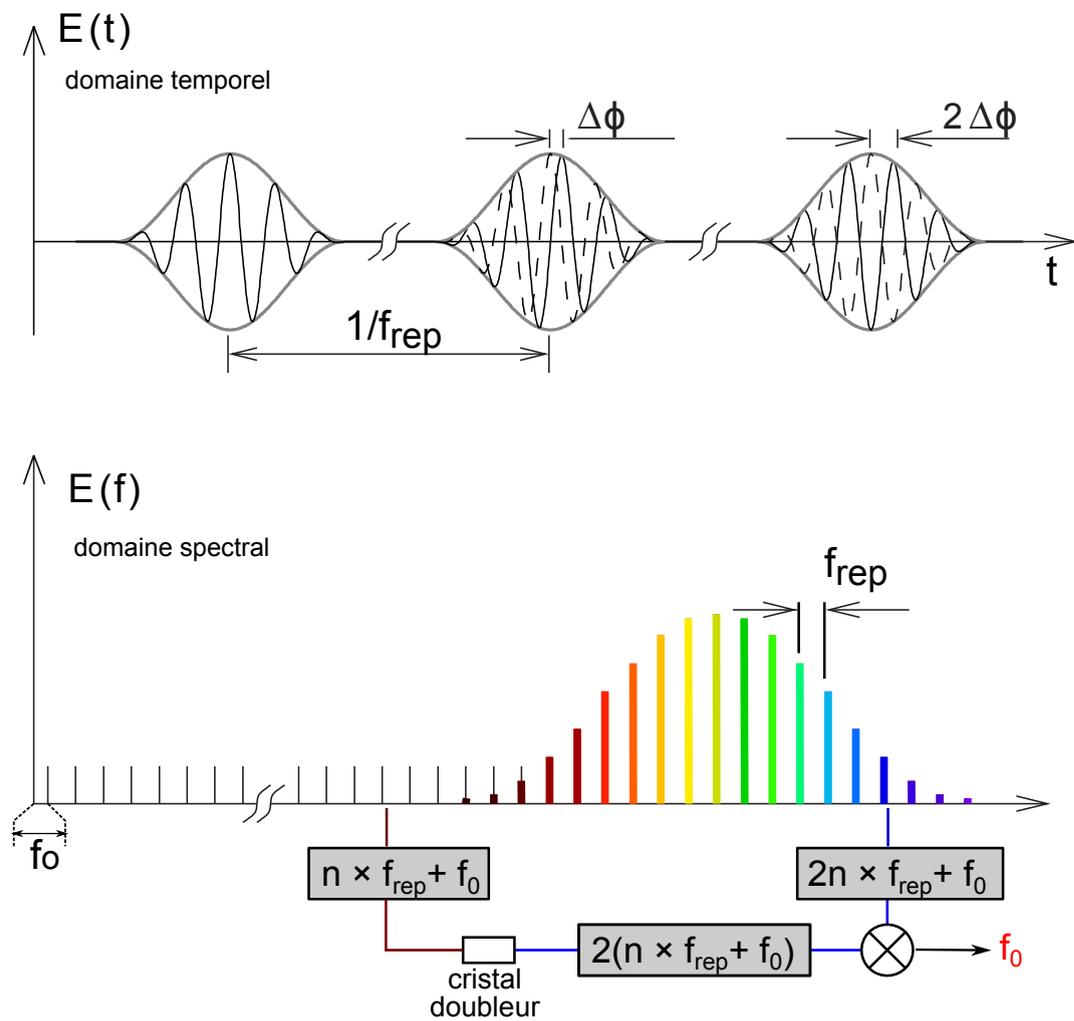


FIGURE 3.8: Schéma de principe d'un peigne de fréquence.  $f_0$  est relié à  $\Delta\Phi$  par la relation  $\Delta\phi = 2\pi \frac{f_0}{f_{rep}}$

La fréquence du battement  $f_{\text{batt}}$  s'écrit alors comme suit :

$$f_{\text{batt}} = f' \pm (n' \times f_{\text{rep}}) \pm f_0 \quad (3.6)$$

En changeant manuellement  $f_{\text{rep}}$  et  $f_0$  et en observant le comportement  $f_{\text{batt}}$ , on détermine aisément les signes de l'équation.

En pratique, nous mesurons le nombre  $n'$  pour une fréquence estimée avec l'étalonnage donné par la cavité FPR. Si  $n'$  est proche à quelques dixièmes de pour-cent d'un entier, sa valeur entière la plus proche injectée dans l'équation (3.6) nous donne accès à la fréquence absolue de notre laser.

### 3.2.2 Notre peigne de fréquences optiques

Grâce aux fibres optiques entre notre laboratoire et le laboratoire SYRTE, nous disposons pour nos expériences d'un signal à 100 MHz issu d'un maser à hydrogène. Celui-ci situé au SYRTE est comparé en permanence aux horloges à césium, sa fréquence est donc parfaitement connue. Localement, un quartz à 10 MHz est asservi en phase sur ce signal. C'est ce signal RF qui sert de référence pour nos compteurs, synthétiseurs de fréquences et pour l'électronique d'asservissement des lasers femtosecondes.

Nous possédons un laser femtoseconde commercial de la société MenloSystems dont le milieu amplificateur est une fibre dopée à l'erbium. Nous utilisons la sortie doublée du laser à 780 nm. Le taux de répétition des impulsions femtosecondes est voisin de 250 MHz. Nous verrouillons très facilement le taux de répétition ainsi que la fréquence d'offset via l'électronique de commande.

Concrètement, c'est la 4<sup>ème</sup> harmonique du battement entre modes à 1 GHz qui est utilisée pour asservir le taux de répétition. Un signal à fréquence fixe de 980 MHz permet de ramener le signal de battement à 20 MHz. Un synthétiseur ramène ce signal à zéro pour l'asservissement de phase. En changeant la fréquence de ce dernier synthétiseur on peut faire varier finement  $f_{\text{rep}}$ . Nous utilisons un synthétiseur Agilent N 5181A à la place de celui fourni avec le laser car ce dernier rajoutait du bruit de fréquence sur les battements.

Je rappelle que l'enjeu de la mesure de fréquence de notre expérience est de mesurer simultanément les fréquences des deux lasers à 532 nm et à 894 nm. Pour cela nous devons obtenir simultanément deux battements avec un bon rapport signal à bruit pour compter leurs fréquences sans erreur.

Nous avons changé la fibre PCF initiale par une nouvelle fibre testée par l'entreprise MenloSystems mais le résultat était décevant car notre laser commercial ne délivrait pas assez de puissance. Alors que le rapport signal à bruit du battement IR était acceptable,

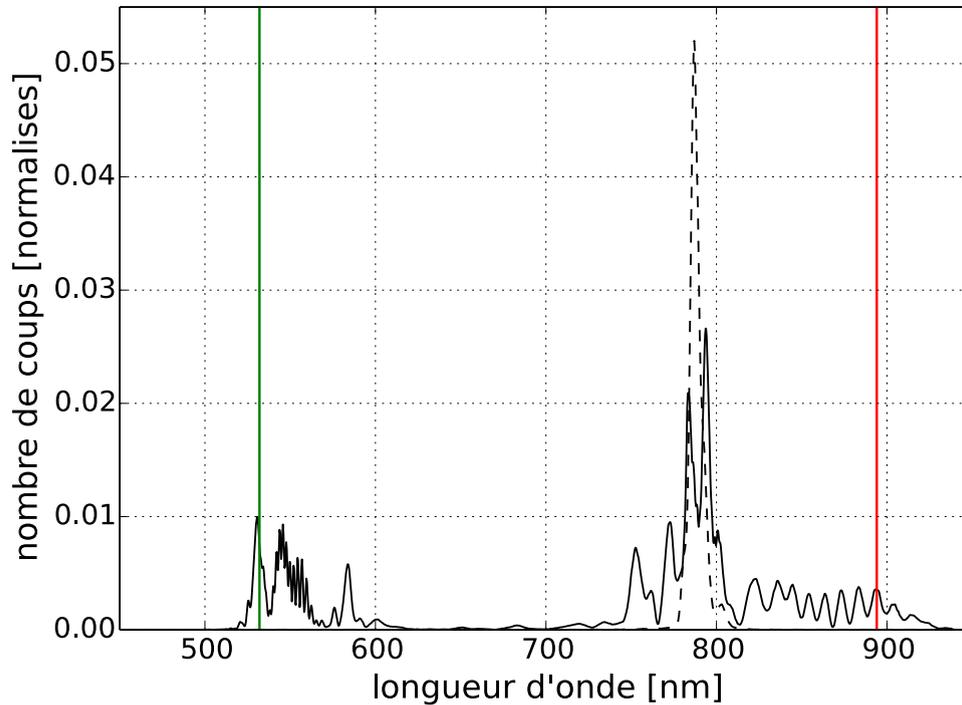


FIGURE 3.9: Spectre du laser en sortie de la fibre photonique. En rouge et vert sont indiquées les longueurs d'onde des laser TiSa et Verdi respectivement. En tiret est indiqué le spectre du laser femtoseconde *MenloSystems* avant passage dans la fibre photonique.

la puissance délivrée par la PCF dans le spectre vert était insuffisante pour compter le battement avec le laser Verdi. Dans un premier temps, il a alors fallu utiliser le laser TiSa femtoseconde mis au point par Olivier Arnoult durant sa thèse [ARNOULT2006]. Or ce laser ne pouvait pas être référencé sur lui-même. En effet l'alignement dans la fibre à cristal photonique (PCF) est très délicat ; en optimisant la génération de lumière à 532 nm on perd l'octave nécessaire au battement  $f_0$ .

L'astuce est de mesurer le battement entre le battement vert et le battement de la diode laser verrouillée sur le rubidium (DL/Rb) avec ce peigne de fréquences. Le peigne de fréquences commercial centré à 780 nm pouvait tout à fait mesurer simultanément la fréquence du laser TiSa et la DL/Rb. En utilisant conjointement les deux peignes de fréquences, nous pouvions alors retrouver la fréquence du Verdi.

Ce protocole expérimental était très lourd et demandait d'y consacrer un temps précieux. Quelques mois plus tard, le laser commercial a pu être réparé et sa puissance de sortie a été multipliée par 1,6. Les effets non-linéaires dans la fibre PCF ont été amplifiés et le spectre en sortie de la fibre a été ainsi élargi (cf Fig. 3.9). A partir de ce jour il a été possible de mesurer simultanément et plus facilement la fréquence des deux lasers

sources, ce fut un pas décisif dans notre travail de spectroscopie.

Une lame demi-onde permet de tourner la polarisation des impulsions laser avant leur injection dans la fibre à cristal photonique, ce qui modifie l'amplitude des différentes composantes spectrales en sortie de fibre. On ajuste donc cette lame afin de maximiser la puissance dans le spectre vert à exactement 532 nm et dans le spectre infra-rouge à la longueur d'onde du laser TiSa. La lame est montée sur un plateau motorisé, possédant un pas minimum de  $0,02^\circ$ . Grâce à ce plateau, un compromis à été précisément trouvé pour maximiser l'amplitude des battements des deux lasers. La figure 3.10 illustre la finesse de ce réglage, la puissance en sortie peut varier du simple au double sur une plage de quelques nanomètres.

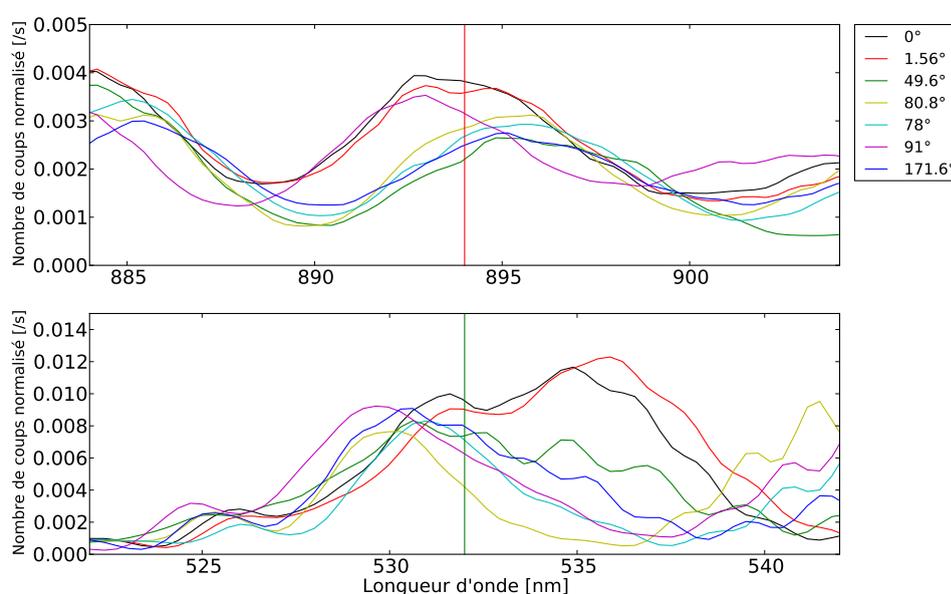


FIGURE 3.10: Évolution de la puissance en sortie de la fibre PCF pour différentes positions de la lame demi-d'onde. La position optimale est prise pour origine angulaire. On mesure le nombre de coups arbitraires enregistrés par un spectromètre pendant une seconde. La position de la longueur du laser TiSa (figure du haut) et du laser Verdi (figure du bas) est indiquée par une barre verticale.

### 3.2.3 Les différents battements de fréquence

Je vais maintenant décrire les protocoles expérimentaux choisis pour mesurer les battements radio-fréquence des deux lasers sources ainsi que les résultats obtenus, qui seront analysés en terme de variance d'Allan.

Pour que le rapport signal à bruit du battement soit bon, il faut isoler au maximum de ses proches voisins, le mode du peigne qui va interférer avec le laser à mesurer. Nous avons mis en place différentes stratégies pour les différents lasers (TiSa, Verdi et DL/Rb).

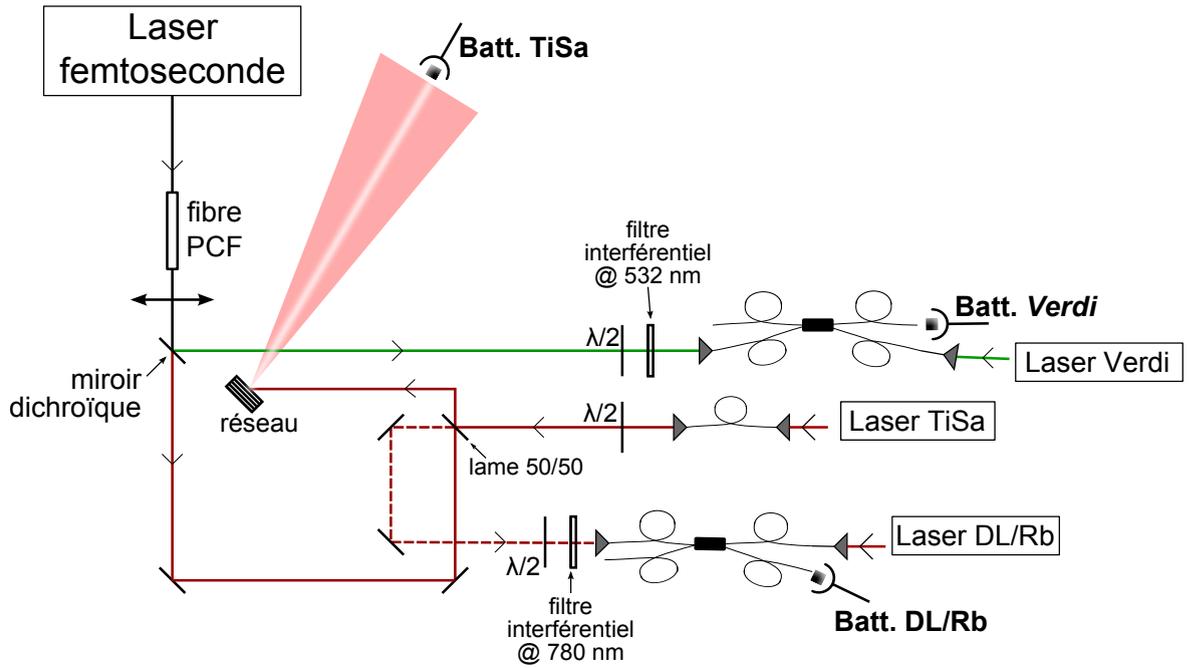


FIGURE 3.11: Schéma de mise en place des battements avec le peigne de fréquences commercial.

Nos choix expérimentaux sont illustrés sur la figure 3.11.

Une grandeur privilégiée en métrologie pour caractériser la dérive temporelle en fréquence des lasers est la variance d'Allan. Elle mesure l'écart-type des fréquences pour différents taux d'échantillonnage créés à partir du taux d'échantillonnage initial qui est dans notre expérience d'une seconde, fixé par la cadence de nos mesures. Son expression mathématique est la suivante :

$$\sigma(\tau) = \sqrt{\frac{1}{2} \langle (f_{i+1,\tau} - f_{i,\tau})^2 \rangle} \quad (3.7)$$

$\tau$  représente un taux d'échantillonnage, multiple entier du taux d'échantillonnage réel.  $f_{i,\tau}$  est la fréquence moyenne mesurée pendant ce taux d'échantillonnage. La variance d'Allan permet ainsi de mesurer le spectre du bruit d'un signal.

Nous représentons ensuite  $\log(\sigma(\tau))$  en fonction de  $\log(\tau)$ . La pente de la courbe renseigne sur la nature des fluctuations de fréquence. Prenons l'exemple auquel nous serons confrontés sur l'expérience, qui est le bruit blanc de fréquence. La fréquence peut s'exprimer ainsi :

$$f(t) = f_0 + x(t) \quad (3.8)$$

avec  $f_0$  la valeur moyenne de la fréquence et  $x(t)$  un bruit aléatoire qui ne dépend pas de la fréquence. On peut alors montrer que la variance d'Allan est inversement proportionnelle à la racine carrée de  $\tau$ , soit une pente de  $-1/2$  sur le diagramme log-log.

### Le laser TiSa

Le battement entre le peigne de fréquences et le laser TiSa continu est réalisé dans une configuration "à l'air libre" [Yi2008]. Nous profitons de la dispersion par un réseau pour isoler au mieux le mode du peigne utile à 894 nm et ainsi réduire le bruit de grenaille (ou *shot noise* en anglais) des modes adjacents. Le signal du battement est prélevé par une photo-diode à avalanche située à 30 centimètres du réseau. C'est la distance maximale permise sur notre banc optique mais largement suffisante pour l'expérience : le rapport signal à bruit du battement obtenu s'approche de 40 dB dans une bande passante de 1 MHz.

De plus, durant les enregistrements des signaux atomiques, la fréquence du laser TiSa est balayée grâce à un AOM comme nous l'avons vu précédemment. La fréquence du battement avec le peigne de fréquences n'est donc pas fixe, ce qui rend la mesure de fréquence peu précise. Le signal du battement est donc mélangé avec la deuxième harmonique de la fréquence RF pilotant l'AOM (on rappelle que l'AOM est monté en double passage). C'est la différence de fréquence entre ces deux signaux, indépendante de la fréquence de l'AOM, qui est comptée. Elle correspond à la fréquence du pic TiSa asservi sur la cavité FPR.

Une première partie de ce signal est comptée sur un compteur RF RACAL 1998. Parallèlement un oscillateur (VCO) est verrouillé en phase sur la deuxième partie du signal, prélevée à l'aide d'un coupleur 10 dB. La fréquence délivrée par l'oscillateur est mesurée sur un deuxième compteur RACAL 1998. La différence des deux comptages est inférieure à 1 Hz ce qui assure la fiabilité du comptage.

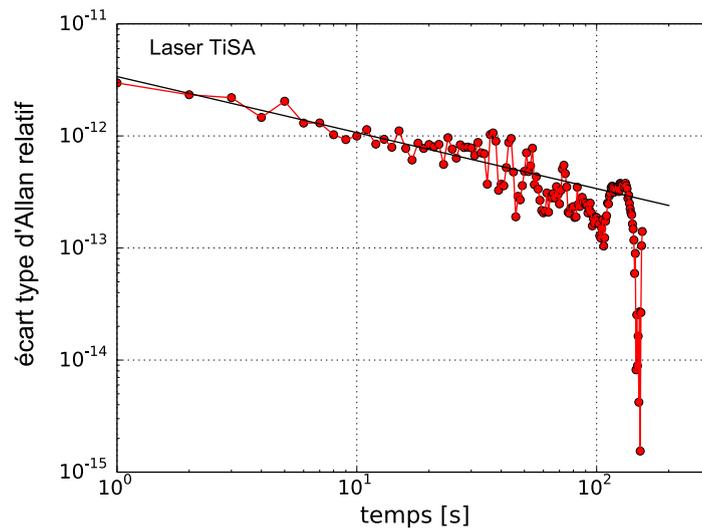
La fréquence du faisceau IR asservi sur la cavité FPR vaut :

$$f_{\text{TiSa}}^{\text{picFPR}} = 334\,797\,895\,352,900 \pm 0,994 \text{ kHz} \quad (3.9)$$

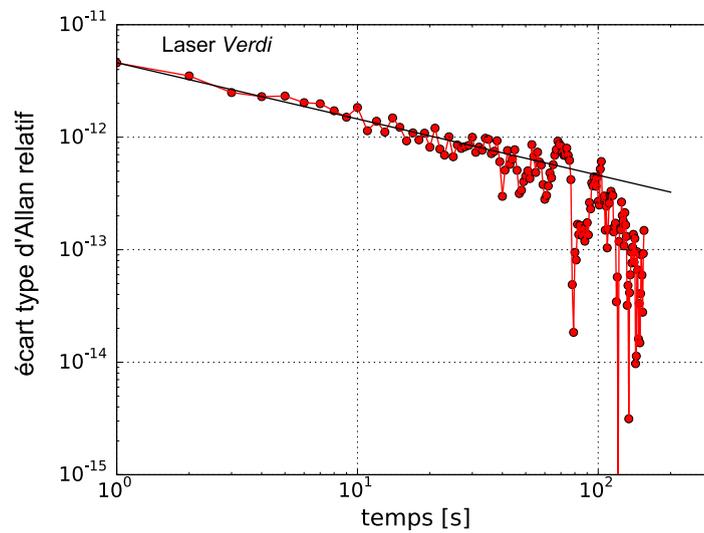
L'écart type d'Allan relatif du laser TiSa est de  $3,4 \times 10^{-12}$  à une seconde et est inversement proportionnelle à la racine carrée du temps d'intégration (cf Fig. 3.12a).

### Le laser Verdi

L'obtention d'un battement avec un bon rapport signal à bruit est plus délicate à la longueur d'onde de 532 nm où la puissance disponible dans le peigne de fréquences reste assez faible : nous l'avons estimée à quelques nanowatts par mode. Nous ne pouvions alors pas nous permettre de perdre de la puissance dans le premier ordre de diffraction d'un réseau. Nous avons dans un premier temps fait interférer les faisceaux sur une photo-diode très rapide après les avoir réunis au moyen d'une lame semi-réfléchissante (plusieurs valeurs de transmission de cette lame ont été testées). Le rapport signal à bruit restait faible, inférieur à 20 dB dans 300 kHz. Nous avons alors effectué le mélange dans un coupleur de fibre 50/50. Cette méthode a l'avantage de garantir la superposition



(A) Écart type d'Allan relatif pour le laser TiSa



(B) Variance d'Allan relative pour le laser Verdi

FIGURE 3.12: Écart type d'Allan relatif pour les deux laser TiSa et Verdi : taux d'échantillonnage de 1 seconde - durée d'acquisition de 6 minutes.

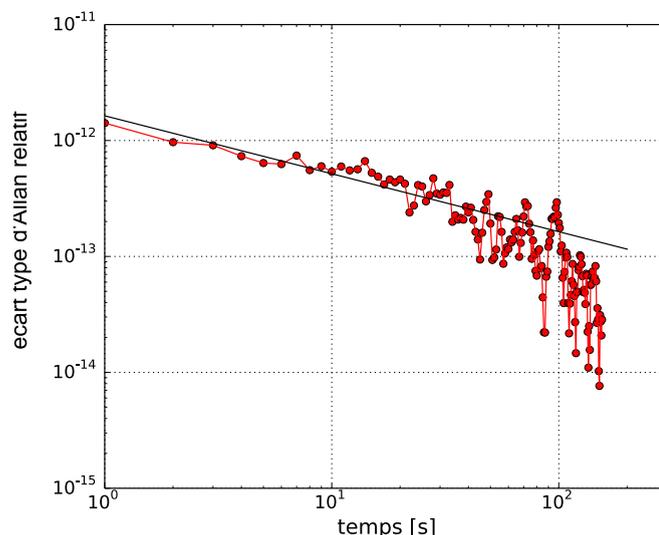


FIGURE 3.13: Écart type d'Allan relatif de la fréquence du battement entre le peigne de fréquence avec diode laser asservie sur le rubidium : taux d'échantillonnage de 1 seconde - durée d'acquisition de 6 minutes.

spatiale des faisceaux ainsi que la concordance des fronts d'onde. Le rapport S/B du battement obtenu est alors de 25 dB dans une bande passante de 1 MHz.

Le battement est compté une première fois avec un compteur RACAL 1998 et une deuxième fois directement après une atténuation de 10 dB. La différence entre les deux comptages est de l'ordre du hertz. La fréquence du laser Verdi est :

$$f_{\text{Verdi}} = 563\,286\,978\,440,6 \pm 2,6 \text{ kHz} \quad (3.10)$$

L'écart type d'Allan relatif du laser Verdi est de  $4,6 \times 10^{-12}$  à une seconde (cf Fig. 3.12b).

### Le laser étalon

Nous sommes souvent amenés à mesurer la longueur d'onde de la fréquence du laser étalon à 778 nm. En effet la fréquence délivrée par ce laser de référence dépend du bon fonctionnement (ou alignement) de deux modulateurs acousto-optiques comme illustré sur le schéma 3.8 ; c'est cette fréquence qui détermine le numéro du mode sur lequel la cavité FPR est asservie, déterminant la fréquence des deux lasers sources !

La visualisation du battement avec la DL/Rb est très aisée car le spectre du laser femtoseconde est centré à 780 nm. Ce battement est effectué à l'aide d'un coupleur de fibre 50/50. Son amplitude est alors de 40 dB sur 1 MHz. De la même manière que le battement IR, on compare la valeur du battement compté directement avec la fréquence d'un oscillateur asservi en phase sur le battement. Cette différence est inférieure au hertz

et la fréquence de l'étalon DL/Rb est indiquée ci-dessous avec son incertitude.

$$f_{DL/Rb} = 385\,285\,142\,358,45 \pm 0,50 \text{ kHz} \quad (3.11)$$

L'écart type d'Allan relatif de la diode laser DL/Rb est de  $1,4 \times 10^{-12}$  à une seconde (cf Fig. 3.13). La fréquence donnée ici diffère de celle publiée jusqu'à présent car elle n'est pas corrigée du déplacement lumineux inhérent aux transitions à deux photons. Comme ce laser ne sert qu'à stabiliser en fréquence la cavité FPR, la puissance laser utilisée pour exciter la transition  $5S - 5D$  n'a plus besoin d'être contrôlée très précisément.

### 3.3 La cavité du jet atomique

Un schéma d'ensemble du jet est représenté en figure 3.14. Sa structure est restée identique par rapport aux expériences précédentes de l'équipe. Je vais rappeler ici les motivations de ce montage ainsi que ses performances actuelles.

#### 3.3.1 Le jet atomique

Le jet d'atomes d'hydrogène est produit par dissociation radio-fréquence de molécules de dihydrogène. La fréquence RF utilisée vaut environ 25 MHz avec une puissance de 40 W. La décharge s'effectue dans un tube en pyrex refroidi par eau à 14°C. Les électrons présents dans le volume du tube de décharge atteignent rapidement l'énergie nécessaire pour dissocier les molécules de dihydrogène par collision.

Un jet thermique d'atomes d'hydrogène dans le niveau fondamental entre ainsi dans l'enceinte à vide via une buse en téflon. Leur trajet est alors dévié d'un angle proche de 90° comme illustré sur le schéma 3.14. La buse est faite en téflon pour minimiser la recombinaison des atomes d'hydrogène pendant ce "virage" [WALRAVEN1982]. Cette propriété a été vérifiée lors de la thèse de Gaëtan Hagel, où d'autres matériaux comme l'aluminium ou le laiton avaient été testés [HAGEL1995].

Cette géométrie particulière minimise le nombre de photons parasites captés par le photo-multiplicateur et produits par la décharge radio-fréquence. La distance entre la buse et la zone d'interaction vaut environ 20 cm.

Nous avons voulu optimiser la proportion d'atomes dans le niveau fondamental. Afin de mesurer le vide dans la cavité du jet nous utilisons une jauge de type Bayard-Alpert. Son principe est le suivant : un filament chauffé émet des électrons qui sont attirés par une grille hélicoïdale qui est parcourue d'un courant continu. Une partie des électrons traversent cette grille et ionisent par collisions les molécules présentes dans le volume formé par l'hélice. Un fil placé au centre de l'hélice, dit collecteur, attire les ions ainsi

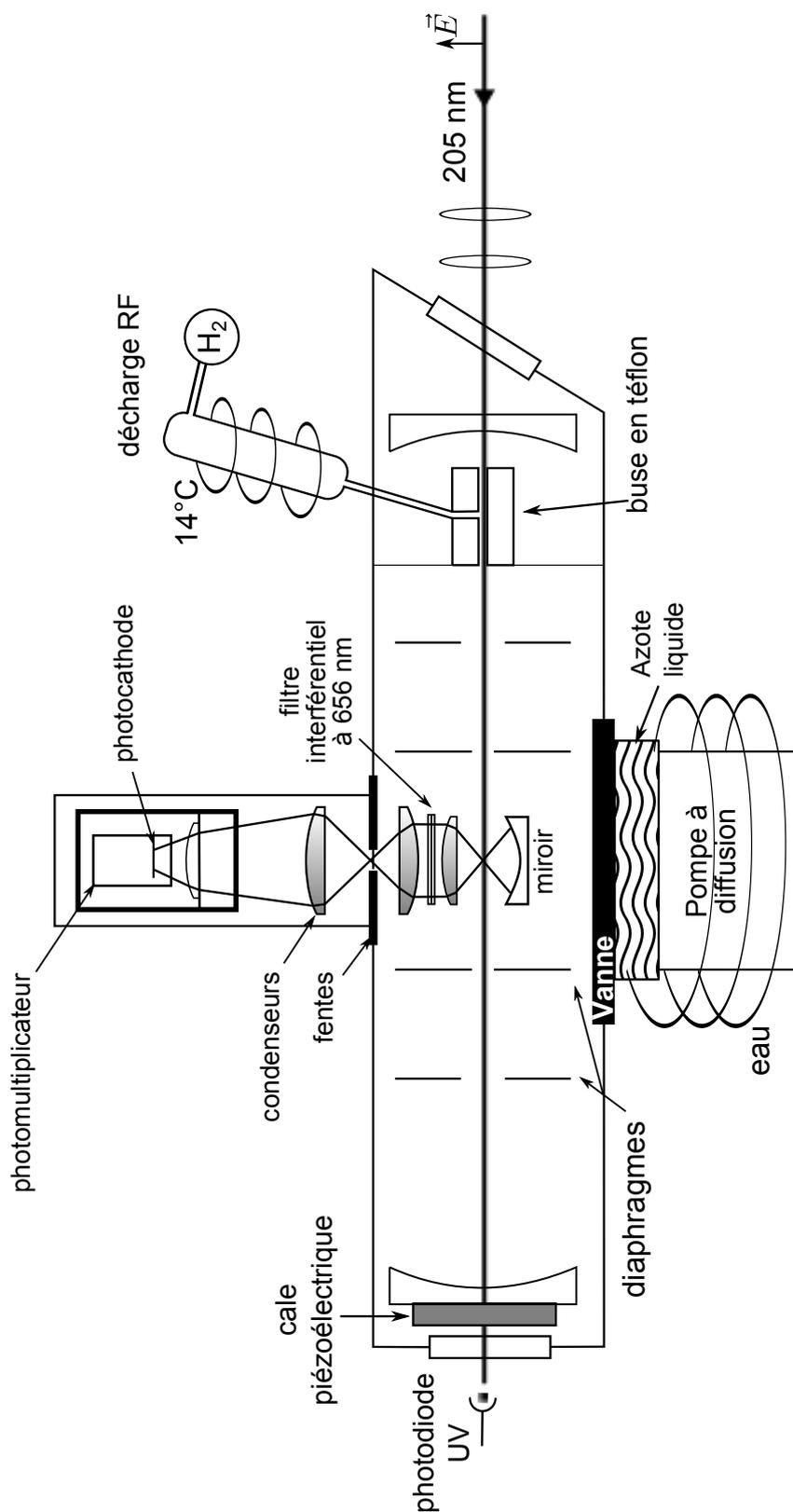


FIGURE 3.14: Schéma général de la zone et de l'optique de détection.

créés. Plus le courant généré par le collecteur est important, plus il y a de molécules présentes dans le milieu.

Cette jauge émet donc des électrons qui peuvent exciter les atomes d'hydrogène. Les photons issus de la désexcitation Lyman- $\alpha$  à 121,5 nm, du niveau  $2P$  vers le niveau  $1S$ , sont alors détectés avec un photo-multiplicateur UV placé perpendiculairement à la direction du jet atomique. Le nombre de photons Lyman- $\alpha$  collecté est donc proportionnel au nombre d'atomes d'hydrogène formés pendant la décharge RF. Nous comparons alors le nombre de coups lorsque la décharge est allumée  $N_{D.All.}$  et celui lorsque la décharge est éteinte  $N_{D.Et.}$ .

La pression du jet de dihydrogène et le seuil de déclenchement du discriminateur associé au photo-multiplicateur sont alors ajustés pour optimiser le rapport  $N_{D.All.}/N_{D.Et.}$ . Nous avons obtenu un rapport maximum (et empirique) de 15% après nettoyage soigneux du tube de la décharge et de la buse dans une cuve à ultra-sons.

La pression optimale d'atomes d'hydrogène est d'environ  $8 \times 10^{-5}$  mbar.

L'enceinte est pompée par une pompe à diffusion, appréciable par son absence de vibration. Celle-ci est à son tour pompée par une pompe primaire à palettes. Un bloc de ciment d'environ vingt litres, placé sur le tuyau reliant les deux pompes, tente d'absorber les vibrations provoquées par la pompe à palettes. Un piège à azote liquide isole l'enceinte de l'expérience des vapeurs d'huile de la pompe à diffusion. L'enceinte atteint ainsi un vide limite de  $2,3 \times 10^{-6}$  mbar sans présence d'atomes d'hydrogène.

### 3.3.2 La cavité UV

#### Géométrie de la cavité

Le faisceau à 205 nm entre dans l'enceinte à vide par un hublot en silice fondu orienté à l'incidence de Brewster. Il est ainsi injecté sous vide dans une cavité Fabry-Perot constituée de deux miroirs sphériques de rayon de courbure de 25 cm séparées de 49 cm. Cette configuration quasi-concentrique permet d'obtenir une section du faisceau la plus petite possible au niveau de la zone d'excitation des atomes, c'est-à-dire en son centre. On y maximise ainsi l'intensité lumineuse et la probabilité d'exciter la transition  $1S - 3S$ .

Chaque miroir est monté sur une cale piézoélectrique. Le faisceau sort de l'enceinte par un deuxième hublot en silice fondue. Une photodiode UV mesure l'intensité du faisceau de sortie. L'alignement de la cavité est assuré par des vis micrométriques montées sur les supports des miroirs de cavité et manipulables depuis l'extérieur. Deux miroirs UV à l'extérieur de la cavité mais situés à 2 mètres de celle-ci permettent d'injecter le faisceau laser à 205 nm dans la cavité quasi-concentrique. L'alignement est alors très

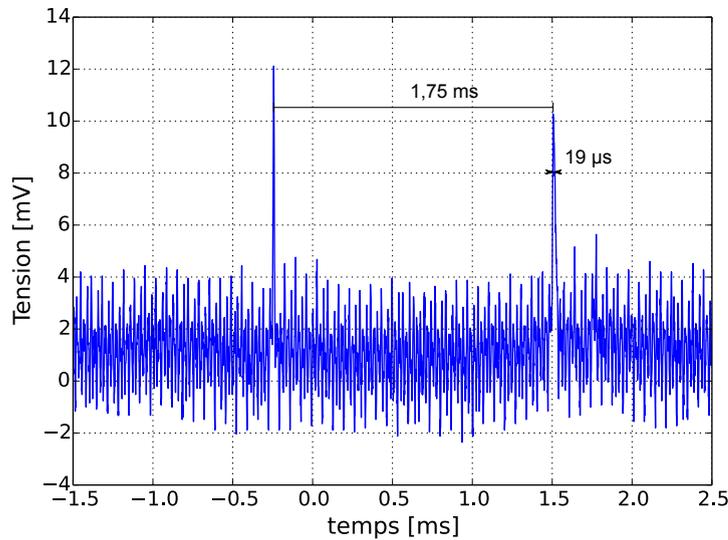


FIGURE 3.15: Pics d'intensité en transmission de la cavité du jet atomique (ou cavité UV). La finesse de cette cavité vaut environ 90.

délicat. Quatre diaphragmes placés dans la cavité du jet imposent une orientation au faisceau lumineux tout en délimitant le faisceau atomique ; cette géométrie maximise ainsi le recouvrement des deux faisceaux et est un obstacle supplémentaire aux photons parasites issus de la décharge RF.

La longueur de la cavité est ensuite modulée pour permettre son asservissement à l'aide d'une détection synchrone. Cet ultime asservissement est peu stable, principalement à cause du faible signal capté par la photodiode UV et dans une moindre mesure des multiples vibrations. Notons que l'asservissement de la cavité est plus stable en fin de journée où elle reste asservie en continu pendant une demi-heure à une heure.

Dans le cas d'une cavité linéaire de longueur  $d$  composée de deux miroirs concaves de même courbure  $Rc$ , le waist  $w_0$  au centre de la cavité est donné par [KOGELNIK1966] :

$$w_0^2 = \frac{\lambda\pi}{2} \sqrt{d(2Rc - d)} \quad (3.12)$$

Le waist du faisceau, qui se situe au centre de la cavité Fabry-Perot, vaut  $48 \mu\text{m}$ . La longueur de Rayleigh vaut alors  $35 \text{ mm}$ .

### Surtension de la cavité

Tout au long de ma thèse, il apparut crucial d'évaluer la surtension de cette cavité afin d'estimer la puissance vue par les atomes dans la zone de détection. Cette mesure n'est a priori pas immédiate, nous allons l'évaluer à partir de la mesure expérimentale de la finesse.

La finesse est définie comme le rapport entre l'intervalle entre deux pics de transmission et la largeur à mi-hauteur d'un pic. Pendant la campagne de mesure, nous avons mesuré une finesse de 90 (voir figure 3.15). Cette finesse peut aussi s'exprimer en fonction du produit  $R$  des coefficients de réflexion  $r_i$  en amplitude des miroirs de la cavité ( $R = r_1 r_2$ ) :

$$\mathcal{F} = \pi \frac{\sqrt{R}}{1 - R} \quad (3.13)$$

Avec la valeur de la finesse mesurée expérimentalement, on évalue le produit  $R$  à 0,966. Durant ma thèse, nous avons fait l'acquisition de nouveaux miroirs de l'entreprise Acton. Nous avons choisi un coupleur d'entrée de réflectivité de 96,7% (en intensité) et un coupleur de sortie de réflectivité de 98,5%. Suivant ces données constructeurs, le rapport  $R$  vaudrait 0,976 et la finesse théorique de la cavité exprimée selon l'équation (3.13) vaudrait alors 129. L'écart entre la valeur théorique et expérimentale s'explique par des sources de pertes dans la cavité et la détérioration des traitements diélectriques des miroirs UV.

La surtension  $S$  est définie comme le rapport entre l'intensité qui circule dans la cavité et l'intensité du faisceau incident. Son expression dans une cavité sans pertes et à résonance vaut [SIEGMAN1989] :

$$S = \frac{t_1^2}{(1 - R)^2} \quad (3.14)$$

Où  $t_1$  est le coefficient de transmission du miroir d'entrée en amplitude et vaut 0,19. Cette valeur est déduite du coefficient de transmission en intensité  $T_1$  mesuré à 3,6%. Avec le produit  $R$  mesuré expérimentalement, on déduit une surtension de 31 (et une surtension théorique de 62,5).

Les anciens miroirs d'entrée et de sortie de la cavité étaient de coefficient de réflexion respectifs 89% et 96% ( $R=0,924$ ). La surtension théorique était donc d'environ 19, à comparer à la surtension théorique de notre cas présent évaluée à 62,5, on devrait gagner plus d'un facteur 3 sur la hauteur du signal.

Nous avons en effet observé une légère amélioration de la hauteur du signal, qui s'est accompagnée d'une légère amélioration du rapport signal à bruit mais pas aussi importante qu'attendue. Plusieurs effets peuvent en être la cause. La présence d'UV dans la cavité semble créer des photons parasites à 656 nm et leur nombre est proportionnel à la puissance UV. Le processus de création n'a pas été clairement identifié [ARNOULT2006]. Il peut être dû à une fluorescence dans les optiques de détection ou à des photons UV non absorbés par les différentes épaisseurs de verre. La cavité Fabry-Perot UV est alignée au mieux mais comme le signal de transmission de cette cavité est faible, il est difficile d'affirmer qu'elle est parfaitement alignée en particulier par rapport aux diaphragmes.

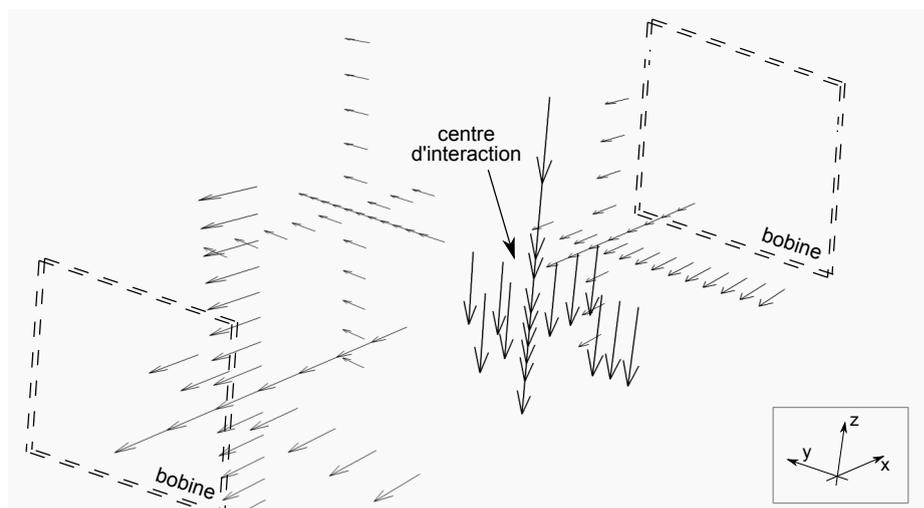


FIGURE 3.16: Cartographie du champ au niveau de la zone d'interaction des faisceaux atomiques et optiques et position des bobines de compensation. Les flèches noires représentent un champ de 220 mG et les flèches grises un champ d'environ 60 mG.

D'autre part pour ce domaine de longueur d'onde, la qualité de surface et l'absorption résiduelle des miroirs deviennent critiques.

Alors que nous réussissions à augmenter la puissance laser UV d'un facteur 3 et après avoir observé une augmentation très significative de la hauteur du signal, nous avons ensuite assisté à une détérioration très nette de cette hauteur. Cet effet confirme bien la détérioration des traitements diélectriques des miroirs UV. Nous avons observé une diminution de la finesse de la cavité brutale puis progressive après une centaine d'heures d'utilisation (faisceau asservi). Un effet similaire a été observé à Garching sur l'expérience  $1S - 3S$  dont la transition est excitée par un laser picoseconde. Notons que la trace du faisceau UV est nettement visible sur le traitement diélectrique des anciens miroirs démontés...

### 3.3.3 Le champ magnétique

Tout champ magnétique est susceptible de décaler la fréquence de la transition  $1S - 3S$ . Nous avons dans un premier temps mesuré le champ magnétique dans la cavité à l'aide d'un capteur à effet Hall qui fournit une tension proportionnelle au champ magnétique présent aux bornes du capteur. On place le capteur au plus près de la zone d'excitation des atomes. En changeant l'orientation du capteur, on peut alors effectuer une cartographie du champ magnétique résiduel, essentiellement terrestre, au centre de la cavité dans les trois directions (cf. Fig 3.16). Le champ terrestre est principalement vertical, dans la direction du champ magnétique apparent.

Deux jeux de bobines montées en configuration de Helmholtz permettent de compenser les champs magnétiques horizontaux, en ajustant leur courant. Finalement il règne

une dizaine de mG dans cette direction. Cette faible valeur du champ magnétique ne perturbera pas nos mesures à notre échelle de sensibilité, une discussion plus poussée sur le champ magnétique sera menée au chapitre 4.

### 3.4 Détection du signal de résonance

Les atomes sont excités par l'onde stationnaire UV formée entre les deux miroirs de la cavité optique. Cette configuration permet de compenser l'effet Doppler du premier ordre. En effet les deux faisceaux contra-propageants sont décalés en fréquence de la grandeur  $v/c$ , qui s'ajoute à la fréquence de l'onde si celle-ci se propage dans le sens inverse de l'atome, et qui se soustrait dans le cas contraire. La résultante est donc nulle. L'atome est alors excité vers le niveau  $3S$  en absorbant simultanément un photon dans chaque onde. On rappelle que c'est un processus non-linéaire, proportionnel au carré de l'intensité de la lumière. On collecte une partie des photons issus de la fluorescence vers les niveaux  $2P$  et  $2S$  à 656 nm avec un photo-multiplicateur. En effet les niveaux  $3P$  sont peuplés par l'action d'un champ magnétique comme nous le verrons au chapitre suivant. La cascade de désexcitation est représentée sur la figure 3.17. Théoriquement, on pourrait tout aussi bien détecter les photons de fluorescence Lyman  $\alpha$ . Les photons UV parasites à 205 nm ajoutent alors un bruit de détection plus important.

#### 3.4.1 L'optique de détection

Le photomultiplicateur utilisé est le modèle R943-02 de la société Hamamatsu (photocathode en GaAs(Cs)). Refroidi à  $-40^{\circ}\text{C}$ , son rendement quantique est de 15% à 656 nm. Un miroir métallique de diamètre 50 mm est placé de sorte que son centre de courbure se situe au waist du faisceau optique comme illustré sur le schéma 3.14. Il permet ainsi d'augmenter l'angle solide de détection. Un premier condenseur de diamètre 50 mm placé à distance focale du waist de la cavité collimate les rayons lumineux qui passent ensuite dans un filtre interférentiel à 656 nm (85 % de transmission à cette longueur d'onde). Un second condenseur de diamètre 75 mm focalise la lumière sur une fente. Le dernier condenseur image la fente sur la photo-cathode du photomultiplicateur. La zone de détection s'étend longitudinalement sur environ 10 mm, elle est limitée par l'angle d'incidence maximal transmis par le filtre interférentiel.

Cette optique de détection a été optimisée pendant la thèse de Gaëtan Hagel [HAGEL1995]. Le facteur de grossissement du système est de 1,5. Nous avons optimisé la position de la fente et son centrage sur l'axe de la cavité de sorte d'éliminer au mieux la lumière parasite.

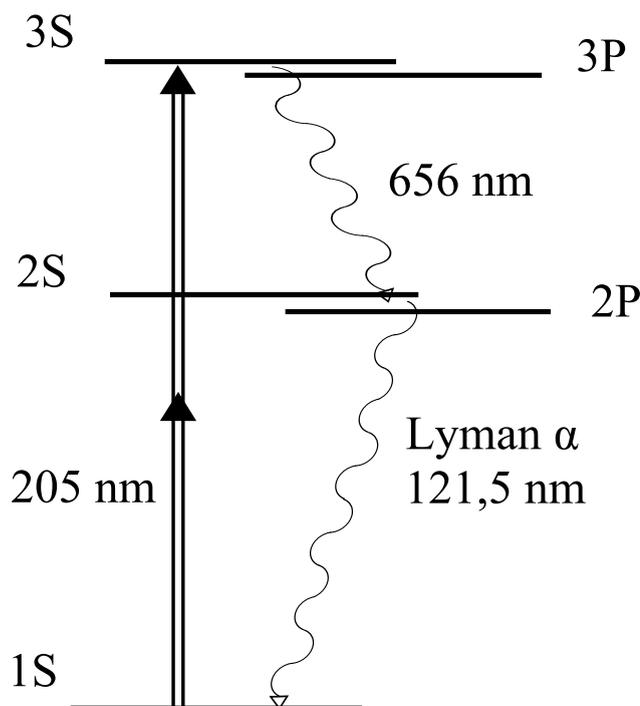


FIGURE 3.17:

Cascade de désexcitation radiative à partir des niveaux  $n=3$ . Le niveau  $3P$  est peuplé par l'application d'un champ magnétique

La tension des impulsions à la sortie du PM est alors comparée à une tension seuil à l'aide d'un comparateur électronique (ou discriminateur). Pour chaque impulsion supérieure au seuil, le comparateur délivre un créneau de hauteur fixe et de durée d'une centaine de microsecondes. Ces créneaux sont alors détectés par un compteur (Universal Counter Racal-Dana 1992).

Typiquement, en l'absence de lumière UV dans la cavité, le compteur enregistre moins d'une impulsion par seconde. Lorsque le faisceau UV est asservi mais hors résonance, le compteur enregistre une centaine de coups pour une puissance incidente UV mesurée à l'entrée de la cavité de 10 mW. Ce nombre augmente en moyenne de 50% lorsque la lumière UV est à résonance, où des photons à 656 nm sont collectés.

### 3.4.2 Enregistrement d'une courbe de résonance

#### Acquisition des données

On mesure simultanément le nombre de photons collectés par le photo-multiplicateur, la fréquence des battements des lasers Verdi et TiSa avec le peigne de fréquences, la fréquence RF de l'AOM balayant le laser TiSa ainsi que la hauteur du signal UV sur la photodiode à la sortie de l'enceinte à vide. Toutes ces mesures sont déclenchées et synchronisées à l'aide d'une carte analogique/numérique *National Instruments*. Particulièrement, la carte envoie un créneau dont la durée (une seconde) dicte la fenêtre d'acquisition des impulsions reçues par le compteur Racal-Dana 1992.

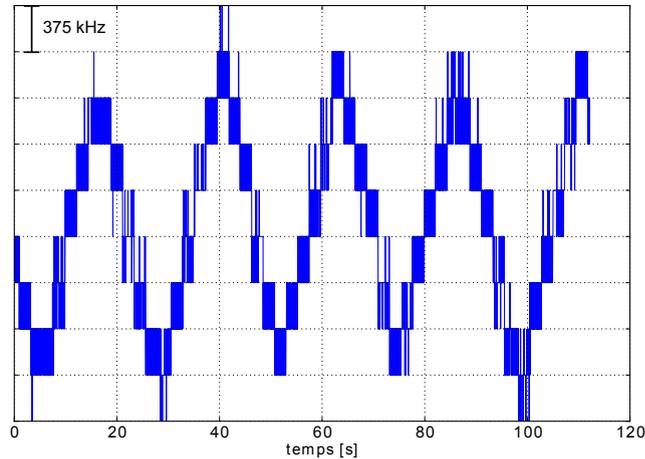


FIGURE 3.18: Longueur d'onde du laser TiSa, balayée par la fréquence RF du modulateur acousto-optique et mesurée à l'aide du lambdamètre HighFinesse WS7<sup>®</sup> d'une résolution annoncée de 10 MHz, mais bien meilleure à l'utilisation.

On balaye la fréquence de l'AOM sur une plage de 1,2 MHz de large avec une séquence bien particulière pour limiter toute dérive pendant l'enregistrement. Cette séquence se compose de 31 points d'une seconde chacun, ordonnés de sorte d'effectuer 3 allers-retours. L'ordre du balayage de ces 31 points est ainsi le suivant :

[ 1 ; 7 ; 13 ; 19 ; 25 ; 31 ; 26 ; 20 ; 14 ; 8 ; 2 ; 6 ; 12 ; 18 ; 24 ; 30 ; 27 ; 21 ; 15 ; 9 ; 3 ; 5 ; 11 ; 17 ; 23 ; 29 ; 28 ; 22 ; 16 ; 10 ; 4 ].

On peut visualiser ce balayage en fréquence du laser titane-saphir à l'aide d'un lambdamètre récent HighFinesse WS7<sup>®</sup>. La figure 3.18 représente ainsi les rampes de fréquence subies par le laser dont les 3 aller-retours constituant la séquence complète ci-dessus. La sensibilité du lambdamètre ne résout pas complètement les sauts de fréquence du laser (d'environ 400 kHz), sa résolution inférieure au mégahertz est tout de même remarquable.

Un enregistrement de la résonance est constitué de 10 balayages de la séquence de 31 points. Ceci correspond donc à 310 secondes (soit 5 minutes et 10 secondes) d'enregistrement. Durant ma thèse, j'ai réécrit et optimisé le programme d'acquisition et de pilotage des compteurs et synthétiseurs en langage Python. Ceci permet notamment d'analyser les résultats de façon plus automatique. Nous y reviendrons dans la partie forme de raie.

On moyenne ensuite les 10 valeurs du comptage correspondant à une fréquence d'AOM. Un exemple d'enregistrement en champ nul est représenté en figure 3.19.

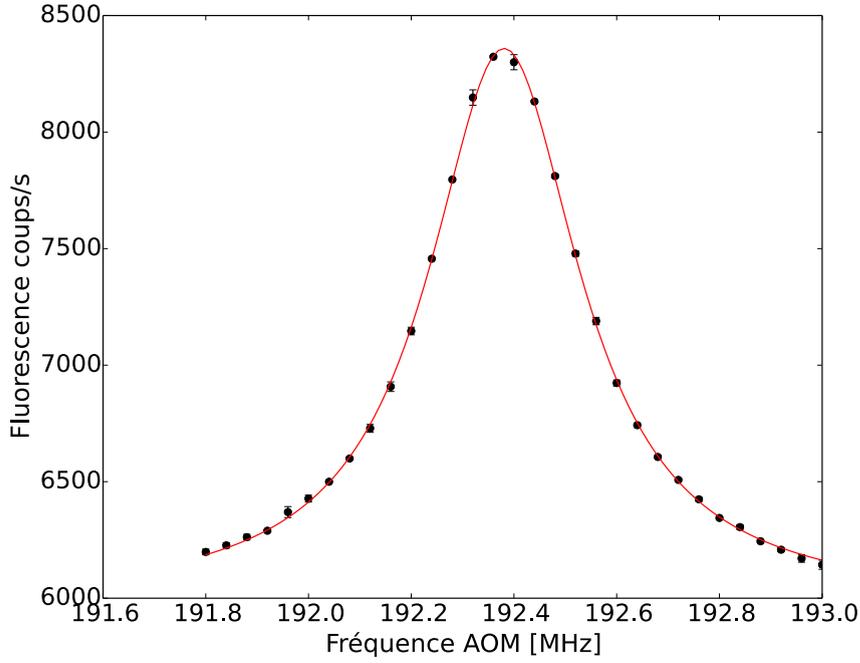


FIGURE 3.19: Signal de la résonance  $1S - 3S$  obtenu après 3h30 d'enregistrement et ajusté par une fonction lorentzienne :  $A + B \frac{2}{\pi\Gamma} / \left[ 1 + \left( \frac{x-x_0}{\Gamma/2} \right)^2 \right]$ . (paramètres :  $A= 6000$  cp/s,  $B=1346$  cp/s,  $\Gamma=360$  kHz et  $x_0 = 192,38$  MHz)

### Ajustement des points expérimentaux

On peut dans un premier temps ajuster ces points expérimentaux par une lorentzienne en laissant trois paramètres libres : l'amplitude du signal  $A$ , sa largeur  $\Gamma$  et sa position centrale  $\omega_0$ . On ajuste enfin un quatrième paramètre d'offset  $B$ .

$$f_{Lor}(A, B, \Gamma, \omega_0, \omega) = \frac{2A}{\pi\Gamma} \frac{1}{1 + \left(\frac{\omega - \omega_0}{\Gamma/2}\right)^2} + B \quad (3.15)$$

La lorentzienne de l'équation (3.15) est ajustée sur les points expérimentaux par la méthode des moindres carrés. L'abscisse de la figure 3.19 représente la fréquence du modulateur acousto-optique. La fréquence de la transition  $1S - 3S$  s'exprime alors de la façon suivante :

$$f_{1S-3S} = 2 \left[ 2 \times f_{Verdi} + \left( f_{TiSa}^{FPR} - 2 \times f_{AOM} \right) \right] \quad (3.16)$$

La largeur  $\Gamma$  du signal de la figure 3.19 vaut 360 kHz ce qui correspond à un signal atomique large de 1,440 MHz. Un premier facteur 2 provient du fait que le modulateur acousto-optique est monté en double passage. Le deuxième facteur deux intervient dans le cadre d'une spectroscopie à deux photons.

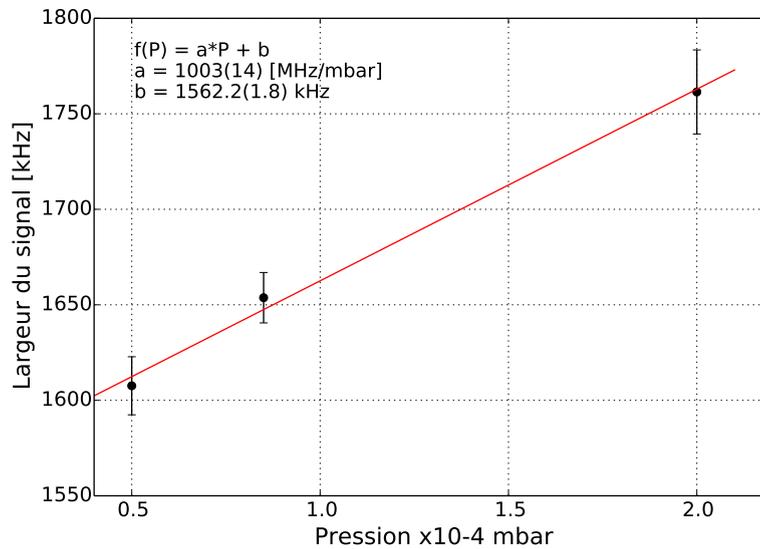


FIGURE 3.20: Largeur du signal de résonance en fonction de la pression dans l'enceinte à vide.

### 3.4.3 Discussion sur la largeur du signal

La largeur du signal est de l'ordre de 1,5 MHz ce qui est plus large que la largeur naturelle du niveau  $3S$  (1 MHz). Plusieurs pistes ont été suivies pour expliquer cet élargissement de type lorentzien.

#### Asservissement des lasers

Nous avons observé que cet élargissement dépendait du gain dans la boucle d'asservissement de la cavité FPA<sub>V</sub> sur la cavité FPR. La largeur de raie du laser Verdi a alors été mise en cause. L'optimisation des asservissements ainsi que l'ajout d'un AOM pour diminuer la largeur du laser V6 (détaillé au paragraphe 3.1.2) n'a malheureusement pas permis de descendre en dessous d'une largeur de 1,5 MHz.

#### L'élargissement collisionnel

Les collisions entre les atomes d'hydrogène ou avec le gaz résiduel peuvent causer un élargissement homogène dont le profil spectral est lorentzien. Son intégration complète dans les formes de raies est rapporté en détail dans la thèse de François Biraben. Je me bornerai ici à une étude quantitative afin de d'évaluer l'ordre de grandeur de la contribution des collisions dans l'élargissement de la raie.

Les collisions perturbent l'état interne de l'atome et participent à sa relaxation précoce et donc à une diminution de la durée de vie du niveau excité. Dans une moindre mesure, l'énergie apportée par les collisions est susceptible de mélanger le niveau  $3S$  avec

le niveau 3P. Le niveau 3P a une largeur d'environ 30 MHz, ce processus provoque donc un élargissement de la transition  $1S - 3S$  dont on rappelle que sa largeur naturelle est de 1 MHz. Cet élargissement  $\Gamma_{coll.}$  s'ajoute à la largeur naturelle de la transition et vaut à basse pression :

$$\Gamma_{coll.} = \beta P$$

$P$  est la pression du gaz et  $\beta$  est un coefficient d'élargissement par pression de l'ordre de  $10^{-1} \text{cm}^{-1} \cdot \text{atm}^{-1}$  soit de l'ordre du MHz/mbar.

Nous avons vérifié l'ordre de grandeur du coefficient d'élargissement  $\beta$  en mesurant la largeur de la transition pour trois pressions différentes, comme illustré sur la figure 3.20. Ce coefficient s'avère être de 1 GHz/mbar. Cependant la jauge mesure la pression dans l'enceinte et pas au niveau précis de la zone d'interaction, ces résultats sont donc à prendre avec une certaine prudence.

Néanmoins, avec une pression de  $10^{-4}$  mbar dans la cavité, nous calculons un élargissement de 90 kilohertz par rapport à l'extrapolation à pression nulle. Les collisions ne peuvent donc pas à elles seules expliquer l'élargissement de 500 kHz observé.

### L'élargissement lumineux

La transition est saturée si la probabilité d'absorption de l'onde est comparable à la probabilité d'émission spontanée, c'est-à-dire si la pulsation de Rabi caractéristique de la transition  $1S - 3S$  est comparable à la durée de vie du niveau  $3S$ .

Sous vide la surtension de la cavité fut estimée à 31. En moyenne la puissance à l'entrée de la cavité est de 10 mW. Cependant, la géométrie du mode du faisceau UV incident est assez éloignée du mode  $\text{TEM}_{00}$  de la cavité. On estime qu'environ 70 % du faisceau incident est injecté dans la cavité. La puissance intra-cavité est donc d'environ 217 mW. La pulsation de Rabi à deux photons est donnée par [HAAS2006] :

$$\Omega_{2\gamma} = 2(2\pi\beta_{ge})I \quad (3.17)$$

où  $I$  est l'intensité dans un sens. Le facteur deux prend en compte les deux ondes contre-propageantes. L'intensité  $I$  d'un faisceau lumineux gaussien sur l'axe de la cavité vaut :

$$I = 2 \times \frac{P}{\pi w_0^2} \quad (3.18)$$

$\beta_{ge}$  est un élément de matrice qui vaut  $1,0003 \times 10^{-5}$  pour la transition  $1S - 3S$  [HAAS2006]. Avec un waist  $w_o$  de 48  $\mu\text{m}$  et une puissance intracavité de 217 mW, on estime l'intensité maximale au centre du faisceau gaussien à 60 MW/m<sup>2</sup>.

$\Omega$  est une fréquence angulaire, l'élargissement par saturation associée est donc de l'ordre

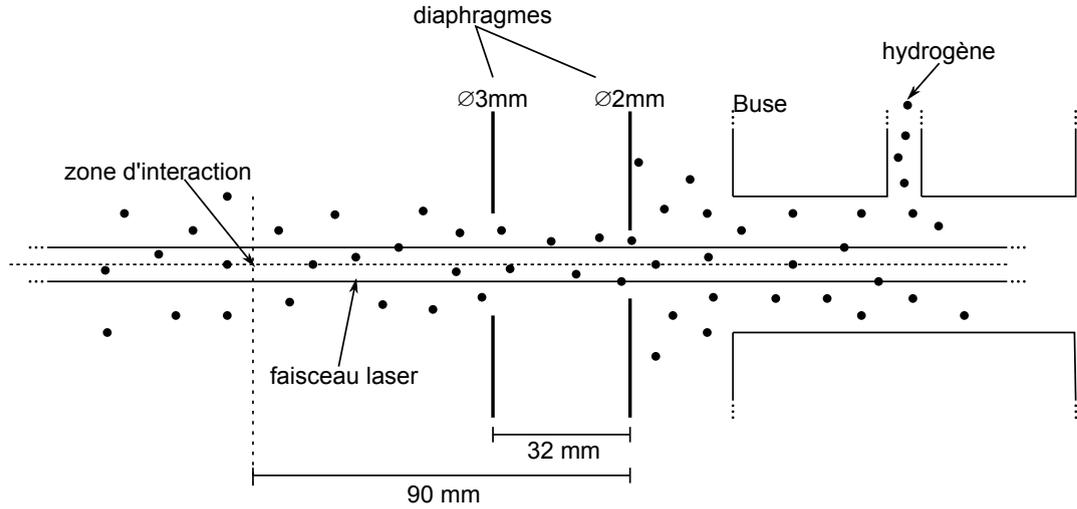


FIGURE 3.21: Positions des différents diaphragmes dans la cavité du jet atomique.

de :

$$\Delta\nu_{sat} = \frac{\Omega}{2\pi} = 1,2 \text{ kHz} \quad (3.19)$$

Cette valeur est bien inférieure à la largeur naturelle de la transition (1 MHz). On négligera donc cette cause d'élargissement.

Cependant au vu des fortes intensités en jeu, nous allons évaluer au prochain chapitre la contribution du décalage lumineux sur la fréquence de la transition. Ce sera aussi l'occasion d'estimer plus précisément l'intensité au niveau de la zone d'interaction.

### Élargissement par temps de transit

Les atomes qui ont une trajectoire non colinéaire avec le faisceau laser, sont soumis à une modulation de l'intensité en le traversant. Si l'atome met le temps  $\tau$  pour traverser le faisceau laser alors il voit une onde de largeur spectrale  $1/\tau$ . Cet effet qui est à l'origine d'une dispersion de fréquences provoque donc un élargissement de la raie.

Cet effet a été complètement étudié dans notre groupe [BIRABEN1979] dans le cas d'une transition à deux photons. Pour des atomes avec une vitesse transverse  $v_t$ , les auteurs montrent que le signal atomique est convolué par une gaussienne d'écart-type :

$$\sigma_t = \frac{v_t}{w_o} \quad (3.20)$$

Ceci se traduit par l'élargissement  $\delta_t$  suivant :

$$\delta_t = 2\sqrt{\ln 2} \frac{v_t}{\pi w_o} \quad (3.21)$$

Le waist  $w_o$  du faisceau laser vaut  $48 \mu\text{m}$ . Dans ce calcul d'ordre de grandeur, on suppose que la vitesse transverse vaut  $v_t = 2\sigma \sin(\theta)$  avec  $\sigma = \sqrt{kT/m}$ .  $\theta$  est l'angle maximal

pris par les atomes et permis par les diaphragmes. La géométrie des diaphragmes est représenté en figure 3.21 Cet angle vaut environ  $0,6^\circ$  ce qui correspond à l'élargissement suivant :

$$\delta_t \simeq 400 \text{ kHz} \quad (3.22)$$

Cet effet n'est donc pas négligeable et peut en partie expliquer la largeur du signal observé. Il s'agit cependant du cas extrême où l'atome forme le plus grand angle possible avec le faisceau. Un calcul plus précis pour estimer cet élargissement serait d'intégrer le signal sur d'une part toutes les trajectoires atomiques possibles et d'autre part sur leur distribution de vitesse. Néanmoins cet effet ne déplace pas la fréquence de la raie, les calculs seront donc faits dans un second temps, d'autant plus que l'alignement du faisceau est peu reproductible dans la cavité ce qui risque de fausser les calculs.

## Conclusion

Nous avons présenté dans ce chapitre les différents systèmes pour contrôler et mesurer les fréquences des lasers ainsi que notre source atomique. Ainsi nous pouvons exciter de manière contrôlée et reproductible la transition  $1S - 3S$  de l'atome d'hydrogène. À partir d'une analyse simple des signaux observés, nous avons mis en évidence la présence d'un élargissement parasite dont la cause principale serait le temps de transit des atomes dans le faisceau UV.

Les causes possibles de déplacement de la fréquence centrale de la transition atomique seront traitées au prochain chapitre.

## Chapitre 4

# Méthode de détermination de la fréquence de la transition 1S-3S.

À ce stade, nous connaissons la fréquence centrale absolue du signal de résonance. Il est maintenant nécessaire d'évaluer tous les effets physiques possibles qui peuvent induire un déplacement de la fréquence centrale de la transition 1S – 3S.

Je vais ainsi détailler dans ce chapitre les déplacements dus à la vitesse des atomes d'hydrogène via l'effet Doppler du second ordre, aux collisions dans le jet atomique et aux déplacements lumineux des niveaux. Je vais exposer les moyens mis en œuvre pour évaluer précisément ces décalages en fréquence.

### 4.1 L'effet Doppler du second ordre

En prenant en compte l'effet de dilatation du temps, un atome doté d'une vitesse longitudinale  $v$  perçoit la fréquence d'un faisceau lumineux  $\nu$  incident avec un décalage :

$$\nu' = \frac{1 - v/c}{\sqrt{1 - v^2/c^2}} \nu \quad (4.1)$$

Pour  $|v| \ll |c|$ , l'équation (4.1) se développe ainsi :

$$\nu' = \nu \left( 1 - \frac{v}{c} + \frac{v^2}{2c^2} \right) \quad (4.2)$$

Comme nous l'avons vu au chapitre 1, notre procédé de spectroscopie à deux photons permet de s'affranchir du terme du premier ordre en  $v$  (l'effet Doppler du 1er ordre). Cependant le décalage en fréquence quadratique en vitesse, ou encore l'effet Doppler du second ordre, n'est pas éliminé dans la condition de résonance à 2 photons qui devient :

$$\nu' + \nu'' = 2\nu \left( 1 + \frac{v^2}{2c^2} \right) = \nu_0 \quad (4.3)$$

La fréquence apparente de la transition est donc toujours diminuée par l'effet Doppler du second ordre d'une quantité  $\delta_{\text{Dop},2}$  dont l'expression est :

$$\delta_{\text{Dop},2} = -\nu_0 \frac{v^2}{2c^2} \quad (4.4)$$

Dans un jet à température  $T$  et dans l'approximation d'une distribution maxwellienne des vitesses, la distribution de vitesse est :  $v^3 \exp\left(-\frac{v^2}{2\sigma^2}\right)$  où  $\sigma = \sqrt{kT/m}$ . La vitesse des atomes la plus probable vaut  $\sqrt{3}\sigma$  soit environ 2,7 km/s à 300 K. Le décalage relatif induit est de  $4 \times 10^{-11}$  soit environ 120 kHz. Notre objectif étant d'atteindre une précision de l'ordre de quelques kHz sur la fréquence atomique, il est indispensable d'évaluer très précisément la valeur de cet effet et donc d'évaluer au mieux la vitesse des atomes du jet.

Il existe plusieurs méthodes pour mesurer la distribution de vitesse des atomes :

- par sélection de la vitesse avec une roue dentée. Différents groupes de recherche ont utilisé cette méthode ([WALRAVEN1982, PARTHEY2011] par exemple). Cependant l'utilisation d'une roue dentée aurait nécessité de reconstruire entièrement notre expérience. De plus son fonctionnement modifie localement la vitesse des atomes. Cette stratégie coûteuse en temps et ne donnant qu'une approximation de la distribution de vitesse à l'endroit exact d'excitation des atomes, n'a pas été retenue par notre équipe.

- En excitant à un photon la transition atomique, on peut facilement évaluer la vitesse des atomes en observant l'élargissement Doppler du 1<sup>er</sup> ordre. Ceci nécessiterait une source laser à 121,5 nm, ce qui est une expérience à part entière [EIKEMA2001].

Afin de déterminer la distribution de vitesse nous avons utilisé une méthode originale proposée par F. Biraben [BIRABEN1991]. Je vais tout d'abord présenter le principe de cette méthode, suivi de sa mise en pratique expérimentale.

#### 4.1.1 Principe de la compensation de l'effet Doppler du 2<sup>nd</sup> ordre

Le principe de cette méthode est de tirer profit du décalage en fréquence de la transition par effet Stark motionnel. Si un atome se meut à une vitesse  $\vec{v}$  dans un champ magnétique statique  $\vec{B}$ , il se crée alors, dans le référentiel de l'atome, un champ électrique  $\vec{E}$  ( $\vec{E} = \vec{v} \wedge \vec{B}$ ) qui décale les niveaux d'énergies par effet Stark. Ce décalage est quadratique en champ  $\vec{E}$ . Le déplacement induit est le suivant :

$$\delta_{\text{Stark}} = \frac{\alpha E^2}{\Delta\nu_{\text{SP}}} \quad (4.5)$$

Où  $\Delta\nu_{\text{SP}}$  est l'écart en fréquence entre les deux niveaux de parités différentes couplés par le champ électrique. Dans le cas des niveaux  $3S_{1/2}$  et  $3P_{1/2}$ , l'écart  $\Delta\nu_{\text{SP}}$  est positif. Cet effet étant de plus quadratique en vitesse, il permettrait de compenser l'effet Doppler

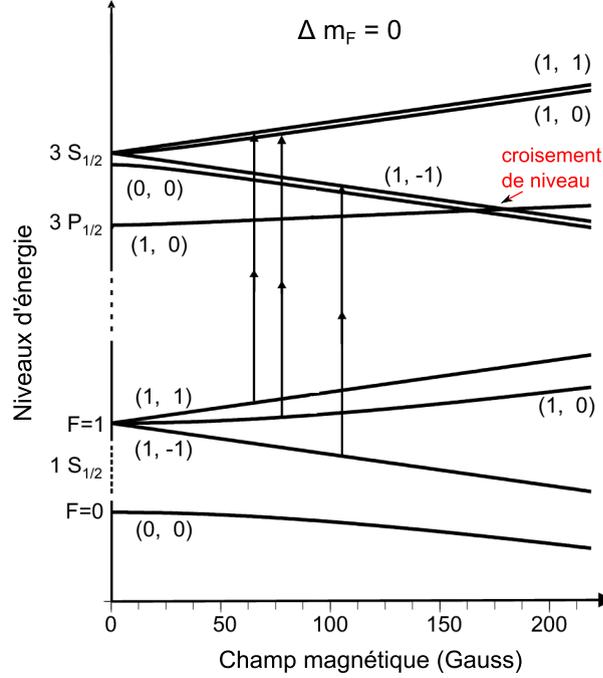


FIGURE 4.1: Diagramme Zeeman des niveaux d'énergie  $(F, m_F)$  de la transition  $1S - 3S$ . Le décalage en fréquence par l'effet Stark motionnel sera significatif au niveau du croisement de niveaux indiqué sur le diagramme.

du second ordre en appliquant un champ magnétique  $\vec{B}$  tel que :

$$\delta_{\text{Stark}} + \delta_{\text{Dop.2}} = v^2 \left( \frac{\alpha B^2}{\Delta\nu_{\text{SP}}} - \frac{\nu_0}{2c^2} \right) = 0 \quad (4.6)$$

Cette compensation n'est cependant pas réalisable pour notre signal. Nous allons en expliquer les raisons dans les paragraphes suivants.

### L'effet Zeeman

En l'absence de champ appliqué, le couplage entre le moment cinétique du noyau  $I$  et celui de l'électron  $J$  sépare les niveaux de nombres quantiques  $L$  et  $J$  donnés en sous-niveaux hyperfins caractérisés par le nombre quantique  $F$  ( $\vec{F} = \vec{I} + \vec{J}$ ). C'est la structure hyperfine, vue au chapitre 1. Nous nous limiterons à étudier la transition  $1S_{1/2}(F=1)$  vers  $3S_{1/2}(F=1)$  qui non seulement est la plus intense, mais aussi est celle dont la position est sensible à l'effet Stark motionnel.

Lorsqu'on applique un champ magnétique extérieur  $B$ , chaque niveau de nombre quantique  $F = 1$  est divisé en sous-niveaux Zeeman :  $m_F = -1, 0$  et  $1$ . Les énergies des sous-niveaux obtenus à partir de  $1S_{1/2}$  et  $3S_{1/2}$  sont représentés sur la figure 4.1 en fonction de la valeur du champ magnétique appliqué. Les transitions à deux photons imposent ici les règles de sélection suivantes :  $\Delta F = 0$  et  $\Delta m_F = 0$  [GRYNBERG1976].

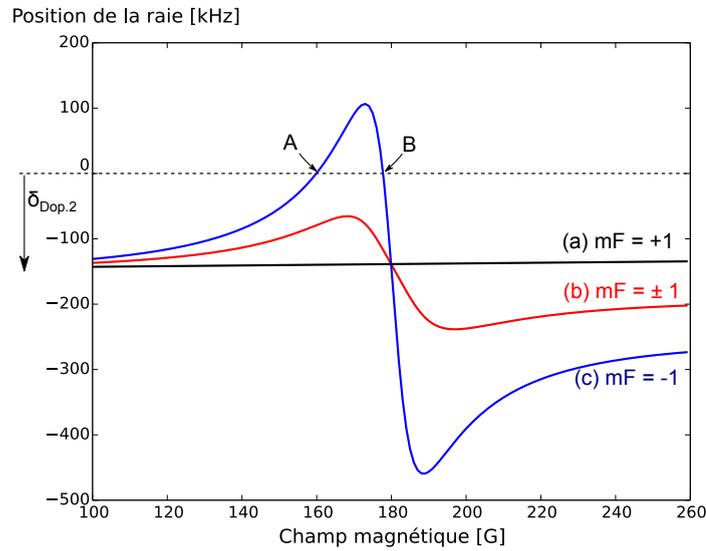


FIGURE 4.2: Position des transitions atomiques  $m_F = 1$  et  $m_F = -1$ . Compensation de l'effet Doppler du deuxième ordre aux points A et B. Nous observons expérimentalement la somme des deux transitions (courbe (b)) qui donne lieu à une compensation partielle de ce décalage Doppler.

Les fréquences des différentes transitions possibles ont des comportements différents en fonction du champ magnétique. En effet le champ magnétique couple les niveaux ( $F = 1, m_F = 0$ ) et ( $F = 0, m_F = 0$ ) et le déplacement en énergie des niveaux  $m_F = 0$  est quadratique en B. Comme la structure hyperfine est différente pour les niveaux 1S et 3S, le découplage hyperfin a lieu pour des valeurs différentes du champ et la fréquence de la transition  $1S_{1/2}(F = 1, m_F = 0) \rightarrow 3S_{1/2}(F = 1, m_F = 0)$  est déplacée d'environ 200 MHz pour 200 G. Au contraire, le déplacement en énergie des niveaux  $m_F = \pm 1$  est linéaire en B et quasiment identique pour les niveaux 1S et 3S. Les fréquences des transitions  $1S_{1/2}(F = 1, m_F = \pm 1) \rightarrow 3S_{1/2}(F = 1, m_F = \pm 1)$ , ne dépendent donc quasiment pas du champ magnétique appliqué.

On voit donc qu'en appliquant un champ magnétique on perd 1/3 du signal. En contrepartie, la transition  $m_F = 0$  nous aidera à étalonner le champ magnétique.

### Une compensation partielle

Lorsqu'il résulte d'un champ électrique motionnel, l'effet Stark est très faible. Il se manifeste si premièrement la transition étudiée dépend peu du champ magnétique et deuxièmement si l'un des sous-niveaux concernés est voisin d'un niveau de parité opposée.

La première condition nous restreint à l'étude des transitions  $m_F = \pm 1$  et la deuxième condition nous impose la valeur du champ magnétique qui doit être proche du point de croisement entre les deux niveaux  $3S_{1/2}(F = 1, m_F = -1)$  et  $3P_{1/2}(F = 1, m_F = 0)$  à 181 G (voir figure 4.1).

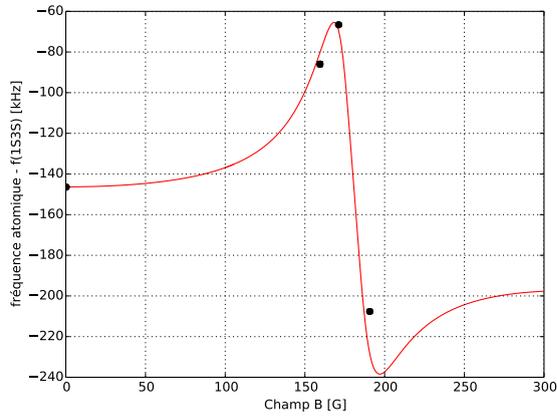


FIGURE 4.3: Fréquence du signal atomique en fonction du champ  $B$ . Les signaux sont ajustés par une lorentzienne. La forme de dispersion causé par l'effet Stark motionnel est nettement visible. La courbe théorique est obtenu pour un ensemble d'atomes à 3 km/s.

La fréquence de la transition  $m_F = -1$  présente alors en fonction du champ magnétique une forme de dispersion causée par la présence de ce croisement de niveau. Le décalage en fréquence compense bien le décalage dû à l'effet Doppler du 2nd ordre aux points A et B de la figure 4.2. Cependant le décalage en fréquence résultant (environ 147 kHz) est plus faible que la largeur naturelle du niveau 3S (1 MHz). Les transitions  $m_F = 1$  et  $m_F = -1$  ne sont donc pas résolues et nous observons expérimentalement la somme des deux fluorescences de ces transitions. L'évolution de la fréquence du signal observé, et représentée en rouge sur la figure 4.2, ne permet pas de compenser totalement l'effet Doppler du second ordre. On parle alors de compensation partielle qui est à hauteur de 73 % du décalage Doppler du second ordre, et ce à un champ magnétique de 170 G.

Alors que le but premier de satisfaire l'équation (4.6) est hors d'atteinte, cette méthode permet néanmoins d'évaluer de façon précise la vitesse de notre jet d'atomes ce qui permet d'estimer l'effet Doppler du 2nd ordre. En effet la position de la raie dépend du champ magnétique et de la distribution de vitesse caractérisée par le paramètre  $\sigma$ . En mesurant la position de la raie pour plusieurs valeurs du champ magnétique on peut ainsi déduire  $\sigma$  par une méthode d'ajustement.

La méthode consiste, pour un champ magnétique donné, à évaluer la fréquence atomique corrigée de l'effet Doppler du second ordre pour différentes valeurs de  $\sigma$ . L'intersection entre les différentes courbes  $\nu_B(\sigma)$ , obtenues pour différents champs magnétiques donne une estimation de  $\sigma$  et de la fréquence atomique. L'incertitude sur ces deux estimations s'évalue par l'incertitude à définir le point d'intersection sur chaque axe.

Les deux points importants à définir, qui seront traités en section 4.2, sont alors la distribution de vitesse des atomes et la forme de raie utilisée pour réaliser les ajustements avec les données expérimentales.

### La forme de dispersion expérimentale

Pour rendre compte du comportement dispersif de la fréquence de la résonance au voisinage de 180 G, j'ai ajusté les signaux avec une simple lorentzienne. Sur la figure 4.3 les données expérimentales sont comparées à une courbe de dispersion calculée pour un atome ayant une vitesse de 3 km/s. L'intérêt de cette comparaison est uniquement qualitatif, l'ajustement lorentzien étant assez éloigné de la forme de raie complète et la distribution de vitesse n'a pas été prise en compte.

#### 4.1.2 Le champ magnétique

##### Les bobines de l'expérience

Deux bobines d'axe vertical, de diamètre 37 cm et comptant 23 spires, sont placées de part et d'autre de l'enceinte à vide, chacune à environ 5,8 cm de la zone d'interaction. Dans cette configuration, et pour créer des champs magnétiques de l'ordre de 200 gauss, il faut faire circuler dans les bobines des courants de l'ordre de 150 ampères. Les bobines sont donc constituées d'un tube de cuivre creux dans lequel on fait circuler de l'eau à 14°C. La température peut tout de même atteindre les 50°C pour les champs les plus forts [HAGEL1995].

Chaque bobine est alimentée par une alimentation de courant très stable (Delta Elektronica SM 30-100 D). Les deux alimentations fonctionnent dans une configuration maître-esclave. Nous pouvons ainsi produire un champ magnétique stable à environ 0,1 gauss jour après jour.

Le champ magnétique créé au centre de bobines de rayon  $R$ , comptant  $n$  spires, séparées de la distance  $D$  et alimentées par un courant  $I$  vaut :

$$B = \mu_0 n I \frac{R^2}{[R^2 + (D/2)^2]^{3/2}} \quad (4.7)$$

##### Calibration du champ magnétique

Le champ magnétique a été calibré de deux façons différentes ; premièrement avec une sonde à effet Hall et deuxièmement avec les atomes d'hydrogène.

En faisant varier le courant  $I$  en ampères dans les bobines, nous avons mesuré le champ magnétique  $B$  en gauss à l'aide d'une sonde placée au niveau de la zone d'interaction. L'ajustement linéaire des données expérimentales, représenté en figure

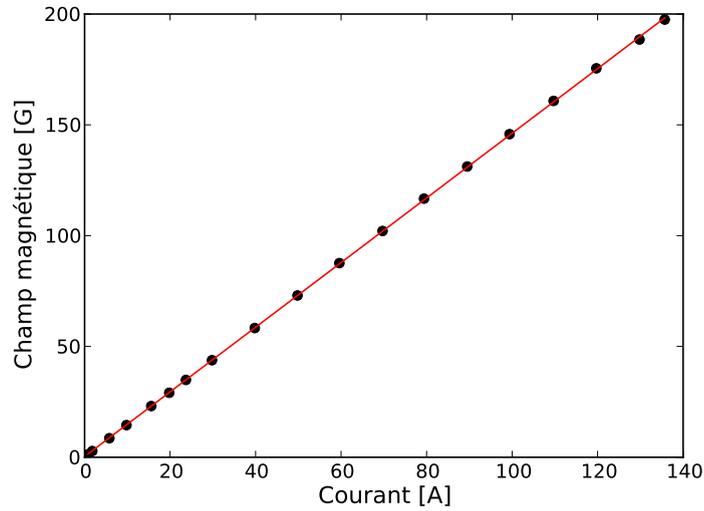


FIGURE 4.4: Calibration du champ magnétique à l'aide d'une sonde à effet Hall placée au centre de la cavité.

4.4, donne le résultat suivant :

$$B[\text{G}] = 1,46 I[\text{A}] + 0,00 \quad (4.8)$$

Deuxièmement, nous avons vu précédemment que la fréquence de la transition  $1S_{1/2}(F = 1, m_F = 0) \rightarrow 3S_{1/2}(F = 1, m_F = 0)$  dépend fortement du champ magnétique. En mesurant la fréquence de cette transition pour différentes valeurs du champ magnétique nous pouvons étalonner le champ magnétique qui règne dans l'enceinte à vide. En appliquant un champ d'une dizaine de gauss (à des fins surtout pédagogiques) nous sommes en mesure de visualiser les trois transitions : les deux transitions  $m_F = \pm 1$  confondues et la transition  $m_F = 0$  dont la fréquence s'éloigne avec B et qui nous sert de fréquence de calibration. Le signal de fluorescence résultant est représenté en figure 4.5.

Nous avons donc observé la transition  $m_F = 0$  pour les valeurs de courant utilisées pour mesurer la distribution de vitesse et qui correspondent à des champs d'environ 170 G, 190 G et -190 G. Des déplacements observés, nous déduisons une calibration plus précise du champ magnétique. La courbe expérimentale est représentée en figure 4.6 et l'ajustement linéaire donne le résultat suivant :

$$B[\text{G}] = 1,455 I[\text{A}] - 0,255 \quad (4.9)$$

L'incertitude sur le champ magnétique obtenu est de l'ordre de 10 mG. C'est cette dernière calibration plus précise qui sera utilisée pour l'analyse des résultats.

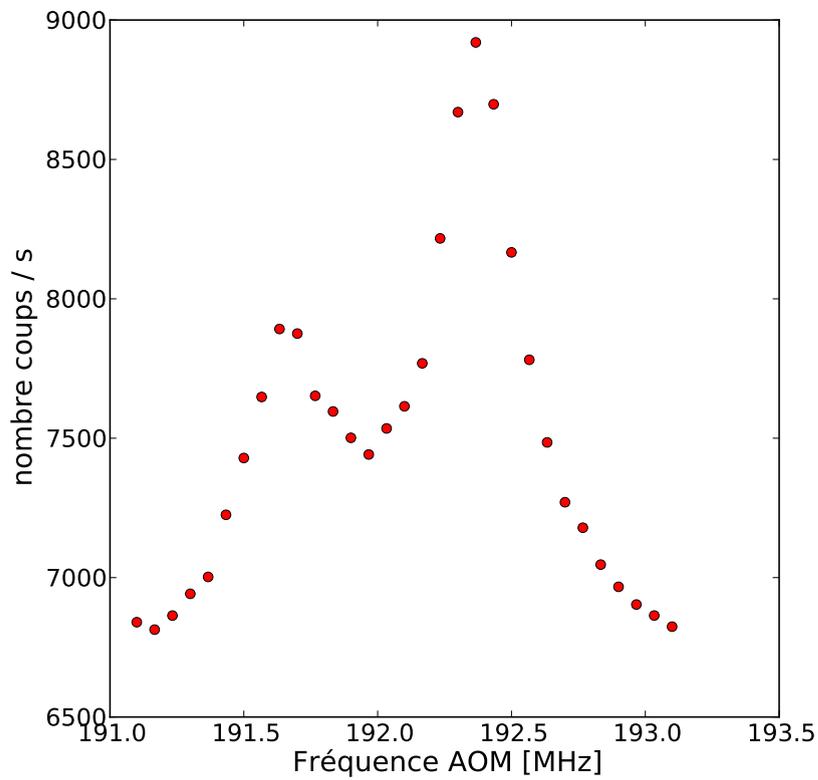


FIGURE 4.5: Application d'un faible champ :  $B = 10$  G. Visualisation de la séparation en fréquence de la transition  $m_F = 0$  qui correspond à environ un tiers des atomes. Le signal de résonance est représenté en fonction de la fréquence RF de l'AOM qui décale le laser TiSa en fréquence.

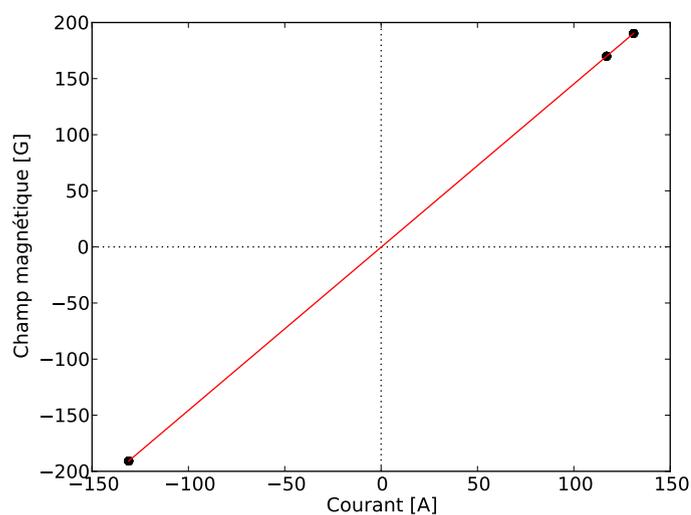


FIGURE 4.6: Calibration du champ magnétique en mesurant la fréquence de la transition  $1S_{1/2}(F = 1, m_F = 0) \rightarrow 3S_{1/2}(F = 1, m_F = 0)$  et en déduisant le champ magnétique responsable de ce décalage Zeeman.

## 4.2 La forme de raie théorique

### 4.2.1 Calcul de la fluorescence émise

Nous détectons expérimentalement la fluorescence  $3S - 2P$  et  $3P - 2S$  à 656 nm. Le calcul des différentes populations des niveaux excités, peuplés par l'onde laser ou par couplage dû à l'effet Stark, permet de déterminer la forme de raie de cette fluorescence. On peut pour cela utiliser le formalisme de la matrice densité. Ce calcul est détaillé dans la thèse de Gaëtan Hagel et à la référence [ARNOULT2010]. Je ne présenterai ici que les grandes lignes du calcul. Le programme de calcul des formes de raie, mis au point par mes prédécesseurs doctorant(e)s, a été réécrit en langage Python durant ma thèse.

L'évolution de la matrice densité  $\rho$  est régie par l'équation :

$$\frac{d\rho}{dt} = \frac{1}{i\hbar} [(H + H_L + H_{Stark}), \rho] + \left\{ \frac{d\rho}{dt} \right\}_{e.s} \quad (4.10)$$

où  $\left\{ \frac{d\rho}{dt} \right\}_{e.s}$  est le terme d'émission spontanée et vaut  $\Gamma_i \rho$ , où l'indice  $i$  correspond aux états  $e$  ou  $f$  (respectivement aux niveaux  $3S_{1/2}$  ou  $3P_J$ ).  $H_L$  correspond à l'opérateur excitation à deux photons et  $H_{Stark}$  à l'opérateur Stark.  $H$  est l'hamiltonien statique en champ magnétique non nul pour un atome immobile et comprend l'hamiltonien non perturbé  $H_0$  (incluant la structure fine), le couplage hyperfin  $H_{hsf}$ , l'effet Zeeman  $H_Z$  ainsi qu'une correction engendrée par l'effet diamagnétique  $H_{diam}$ .

$$H = H_0 + H_{hsf} + H_Z + H_{diam} \quad (4.11)$$

L'hamiltonien  $H_0$  est diagonal dans la base  $|L, J, m_J, m_I\rangle$ .

- L'hamiltonien hyperfin  $H_{hsf}$  s'exprime ainsi [SALPETER1951] :

$$H_{hsf} = \frac{3}{16} \frac{A}{n^3} \left[ \frac{2}{J(J+1)(L+\frac{1}{2})} \mathbf{I} \cdot \mathbf{J} + \frac{1 - \delta_{JJ'}}{L(L+1)(L+\frac{1}{2})} \mathbf{I} \cdot \mathbf{L} \right] \quad (4.12)$$

où la constante  $A$  dépend du niveau de structure fine concerné.

Seul le premier terme entre crochets est non nul pour les niveaux  $S$ . Dans la base couplée  $|L, J, F, m_F\rangle$ , ce premier terme donne deux matrices diagonales ( $4 \times 4$  : " $F=1$  ( $3 \times$  dégénérés)" + " $F=0$ ") pour les niveaux  $1S$  et  $3S$ . L'écart hyperfin obtenu, par exemple pour le niveau  $1S$ , est simplement égal à  $\Delta E_{HSF} = 2A$ . Comme nous l'avons vu au chapitre 1 (§ 1.1.3), l'expression ci-dessus n'est qu'approchée et l'écart hyperfin des niveaux  $S$  ne varie pas exactement en  $1/n^3$ .

Pour les niveaux  $P$ , le deuxième terme décrit des couplages entre niveaux de  $J$  différents et de même  $F$ , par exemple les niveaux  $|3P_{1/2}, F=1\rangle$  et  $|3P_{3/2}, F=1\rangle$ . Le niveau

3P est ainsi représenté par une matrice ( $12 \times 12$ ) avec 6 éléments non diagonaux. La diagonalisation de cette matrice donne les énergies des niveaux hyperfins 3P.

Dans tous les cas, en champ magnétique nul, les niveaux hyperfins sont dégénérés en  $m_F$ .

- L'application d'un champ magnétique lève cette dégénérescence en  $m_F$ . En présence d'un champ  $B$ , l'hamiltonien Zeeman de la structure hyperfine s'écrit ainsi :

$$H_Z = \mu_B B \left[ g_S S_Z + \left( 1 - \frac{m_e}{m_p} \right) L_Z - \frac{m_e}{m_p} g_N I_Z \right] \quad (4.13)$$

À cet hamiltonien s'ajoute la correction diamagnétique :

$$H_{diam} = \frac{q^2 B^2 r_{\perp}^2}{8m_e} \quad (4.14)$$

où  $r_{\perp}$  est la projection de l'opérateur  $\mathbf{R}$  sur une direction perpendiculaire à la direction du champ magnétique, cette dernière étant choisie comme axe de quantification.

Les corrections relativistes et QED sont contenues dans le facteur  $g_S$  [YEROKHIN2002]. L'hamiltonien  $H_Z + H_{diam}$  est diagonal dans la base  $|L, m_L, m_S, m_I\rangle$  mais pas dans la base  $|L, J, F, m_F\rangle$ . En particulier, les niveaux de même  $m_F$  et de  $F$  différents sont couplés par le champ magnétique. On doit donc diagonaliser l'hamiltonien total ( $H_{shf} + H_Z + H_{diam}$ ) pour déduire les niveaux d'énergies Zeeman. La nouvelle base se déduit de la base  $|L, J, F, m_F\rangle$  par une matrice de passage notée  $P_B$  qui est unique à un champ magnétique donné.

- Enfin, en présence d'un champ électrique  $\mathbf{E}$ , l'hamiltonien Stark est de la forme suivante :

$$H_{Stark} = q\mathbf{E} \cdot \mathbf{r} \quad (4.15)$$

Le champ  $E$  représente *a priori* toutes les sources possibles de champ électrique sur l'expérience, qu'il soit statique ou motionnel. On confirmera par la suite que le champ électrique motionnel est bien prépondérant devant tout autre champ statique.

Les éléments de matrice de cet opérateur entre deux états  $|n, L, J, m_J\rangle$  et  $|n', L', J', m'_J\rangle$  sont de la forme  $q E R_{nL}^{n'L'} A_{LJm_J}^{L'J'm'_J}$  où  $R$  et  $A$  sont respectivement la partie radiale et la partie angulaire de l'élément de matrice.

On peut montrer qu'en champ faible, on peut prendre en compte uniquement les interactions entre niveaux de même nombre quantique principal ( $\Delta n = 0$ ). L'opérateur dipolaire électrique étant impair, il ne couple que les états de parité opposée tels que  $\Delta L = 1$ . Les niveaux 3S sont alors exclusivement couplés aux niveaux 3P (le couplage du deuxième ordre avec les niveaux 3D sera négligé). La partie radiale vaut dans notre cas  $R = -9\sqrt{2}a_0$ , où  $a_0$  est le rayon de Bohr.

La partie angulaire est représentée par une matrice ( $16 \times 16$ ) décrivant le couplage entre les 4 sous-niveaux Zeeman du niveau  $3S_{1/2}$  (niveaux  $e$ ) et les 12 sous-niveaux des niveaux  $3P_{1/2}$  et  $3P_{3/2}$  (niveaux  $f$ ). Elle est écrite dans la base  $|L, J, m_J, m_I\rangle$  puis déduite dans la base  $|L, J, F, m_F\rangle$ . On utilise finalement la matrice de passage  $P_B$  pour calculer les éléments de matrice de  $H_{Stark}$  dans la base des états modifiés par le champ magnétique. Ces coefficients multipliés par  $qER$  donnent les termes de couplages Stark entre les niveaux  $e$  mélangés aux niveaux  $f$  que l'on note  $V_{ij}$ . Ces termes de couplages sont donnés dans l'annexe A.

On peut ainsi étudier l'évolution de la matrice densité dans l'espace des états propres modifiés (Eq. 4.10), les énergies étant préalablement corrigées des valeurs propres de l'hamiltonien statique  $H$  à un champ  $B$  donné. On se place tout d'abord dans le référentiel tournant à la pulsation des ondes lumineuses et on introduit la fréquence de Rabi à deux photon  $\Omega_e$  :

$$\begin{aligned} \langle e|H_L|g\rangle &= \frac{\hbar\Omega_e}{2} \exp(-2i\omega t) \\ \Omega_e &= \frac{8\pi a_0^2 |\langle e|Q_{2\gamma}|g\rangle| I}{mc^2\alpha} \end{aligned} \quad (4.16)$$

où  $\omega/2\pi$  est la fréquence laser et  $I$  son intensité. L'opérateur transition à deux photons  $Q_{2\gamma}$  est donné en unité atomique ( $\hbar = \alpha c = m = 1$ ) par l'équation ci-dessous, pour une polarisation du faisceau d'excitation le long de l'axe  $z$  :

$$Q_{2\gamma} = \sum_r \frac{z|r\rangle\langle r|z}{\omega - \omega_{rg}} \quad (4.17)$$

où  $\omega_{rg}/2\pi$  est la différence de fréquence entre l'état initial  $g$  ( $1S_{1/2}$ ) et n'importe quel niveau relais  $r$ .

On suppose ensuite que les niveaux excités se désexcitent beaucoup plus vite qu'ils ne sont peuplés par l'onde laser ( $\Omega_e \ll \Gamma_e$ ) : c'est à dire qu'on ne sature pas la transition. On peut alors négliger les populations et cohérences  $\rho_{ee'}$ ,  $\rho_{ff'}$  et  $\rho_{ef}$  des niveaux excités.

Dans le référentiel du champ tournant, on remplace l'opérateur densité par l'opérateur  $\sigma$  tel que :  $\sigma_{gg} = \rho_{gg}$ ,  $\sigma_{eg} = \rho_{eg} \exp(2i\omega t)$  et  $\sigma_{ge} = \rho_{ge} \exp(-2i\omega t)$ . On introduit les déplacements en fréquence suivants :  $\Delta_e = 2\omega - (\omega_e - \omega_g)$  et  $\Delta_f = 2\omega - (\omega_f - \omega_g)$ . À partir de l'évolution de l'opérateur densité 4.10, on obtient alors le système d'équations

suivant :

$$\frac{d\sigma_{gg}}{dt} = -\frac{i}{2}\Omega_e(\sigma_{eg} - \sigma_{ge}) \quad (4.18)$$

$$\frac{d\sigma_{eg}}{dt} = \left(i\Delta_e - \frac{\Gamma_e}{2}\right)\sigma_{eg} - i\frac{\Omega_e}{2}\sigma_{gg} - \frac{i}{\hbar}\sum_f V_{ef}\sigma_{fg} \quad (4.19)$$

$$\frac{d\sigma_{fg}}{dt} = \left(i\Delta_f - \frac{\Gamma_f}{2}\right)\sigma_{fg} - \frac{i}{\hbar}\sum_f V_{fe}\sigma_{eg} \quad (4.20)$$

où  $V_{fe} = \langle f|H_{Stark}|e\rangle$ .

Pour obtenir la forme de raie finale, on doit calculer la fluorescence à 656 nm des niveaux  $n = 3$  vers les niveaux  $n = 2$ . Cette fluorescence provient des désexcitations  $3S_{1/2} \rightarrow 2P_J$  et  $3P_J \rightarrow 2S_{1/2}$ , les niveaux  $3P_J$  étant peuplés par le couplage Stark. On doit donc calculer les populations  $\sigma_{ee}$ ,  $\sigma_{ff}$  et  $\sigma_{fe}$ . On considère pour cela que le régime est stationnaire : les populations et les cohérences ne dépendent pas du temps. Ceci est complètement justifié par la faible probabilité de transition à deux photons, qui s'écrit :

$$\Gamma_{2\gamma} = I^2 \frac{\omega^2}{c_0^2 \hbar^2} |Q_{2\gamma}^2| \frac{\Gamma_e}{(2\omega - \omega_{eg})^2 + (\Gamma_e/2)^2} \quad (4.21)$$

Pour un atome soumis à une puissance UV de 10 mW, ce taux de transition vaut typiquement  $10^{-1}$  Hz. Ceci est bien plus faible que la largeur naturelle  $\Gamma_e$  du niveau  $3S$  (1 MHz), ce qui justifie l'hypothèse du régime stationnaire.

Le calcul des populations des niveaux excités  $\sigma_{ee}$  et  $\sigma_{ff}$  est traité en détail dans les références [ARNOULT2010, HAGEL1995]. On prend finalement en compte le décalage dû à l'effet Doppler du second ordre en remplaçant la fréquence du laser  $\omega$  par  $\omega(1 + v^2/2c^2)$ .

La fluorescence  $F_k(\omega, B, v)$  émise par un atome initialement sur l'état  $k : |3S_{1/2}(m_F = k \text{ avec } k = 1, 0 \text{ et } -1)\rangle$ , possédant une vitesse  $v$  et soumis au champ magnétique  $B$  vaut :

$$F_k(\omega, B, v) = \Gamma_{3S} \sigma_{kk}(\omega, B, v) + \sum_f \gamma_{3P} \Gamma_{3P} \sigma_{ff}(\omega, B, v) \quad (4.22)$$

où on rappelle que les états  $f$  correspondent aux 12 sous-niveaux Zeeman des niveaux  $3P_{1/2}$  et  $3P_{3/2}$  peuplés par couplage Stark. Le terme  $\gamma_{3P}$  correspond au rapport de branchement de la cascade radiative du niveau  $3P$  vers le niveau  $2S$  et vaut 0,11834. Les valeurs numériques des largeurs des niveaux que nous avons utilisés sont :

$$- \Gamma_{3S} = 1,004945452 \text{ MHz}$$

$$- \Gamma_{3P} = 30,192 \text{ MHz}$$

Notons qu'à notre précision de calcul il n'est pas nécessaire de différencier les largeurs naturelles des niveaux  $3P_{1/2}$  et  $3P_{3/2}$ . Il en va de même pour leurs rapports de branchement.

La fluorescence totale  $F(\omega, B, v)$  est la somme des  $F_k$  sur les différents états  $k$ , correspondant aux trois sous-niveaux  $m_F = \pm 1$  et 0 du niveau  $3S_{1/2}(F = 1)$ . Il reste maintenant à intégrer la fluorescence finale sur la distribution de vitesse.

### 4.2.2 La distribution de vitesse

Dans un gaz à l'équilibre thermodynamique, la répartition des vitesses des particules du gaz suit une distribution maxwellienne :

$$f_M(v) = \frac{1}{\mathcal{N}} v^N \exp\left(\frac{-v^2}{2\sigma^2}\right) \quad (4.23)$$

où  $N=2$ ,  $\sigma = \sqrt{\frac{kT}{m}}$  et  $\mathcal{N}$  est un facteur de normalisation [GAGNAC1975].

Notre source atomique peut être assimilée à un jet effusif d'atomes d'hydrogène à température ambiante. La distribution de vitesse à la sortie de la buse s'exprime alors selon l'équation (4.23) avec un exposant  $N$  égal à 3.

Cependant divers auteurs ont montré que cette distribution de vitesse ne reproduisait pas exactement celle mesurée expérimentalement [HUBER1999] [OLANDER1970]. Comme cela a déjà été fait dans notre équipe pour l'étude des transitions  $2S-nS/nD$  [DEBEAUVOIR2000], nous avons d'abord simulé différentes distributions de vitesse en faisant varier l'exposant  $N$  de l'équation (4.23). Puis nous avons ajusté les formes de raie calculées avec ces distributions de vitesse sur nos signaux expérimentaux. Comme nous le verrons au prochain chapitre, la meilleure incertitude sur la fréquence de la transition  $1S - 3S$  est obtenue avec l'exposant  $N=3,84$ . Cela correspond à une distribution de vitesse contenant moins d'atomes lents que celle avec  $N=3$ . Ceci est l'effet Zacharias. Par collisions les atomes rapides poussent les atomes lents, ce qui diminue le nombre d'atomes lents présents dans le jet. Cependant cette distribution n'est pas justifiée théoriquement. Nous nous sommes alors inspirés des travaux antérieurs [OLANDER1970] et de ceux plus récents de l'équipe de J. Vigué [CHAMPENOIS2008] pour créer un nouveau modèle de distribution de vitesse.

La diminution du nombre d'atomes lents dans un jet atomique en fonction des collisions a été étudiée précisément dans la référence [OLANDER1970]. La dépendance de la vitesse atomique en fonction du libre parcours moyen a été modélisée par une perturbation  $P[\Psi(z), Kn]$  à la distribution de Maxwell  $f_M(v)$  où :

- $Kn$ , le nombre de Knudsen a pour expression  $Kn = \lambda_S/L$  où  $\lambda_S$  est le libre parcours moyen dans le tube à décharge et  $L$  la longueur de la buse.
- $z$  est la variable réduite telle que  $z = v/\sqrt{2}\sigma$

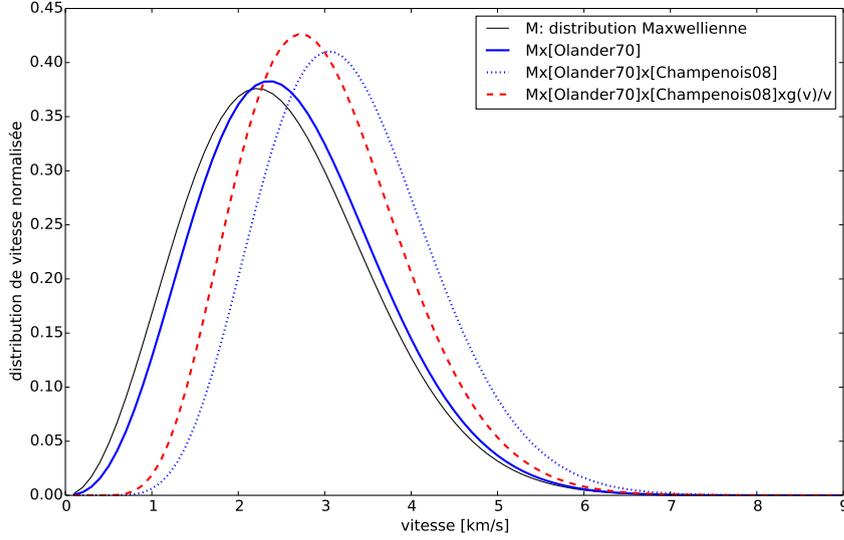


FIGURE 4.7: Les différents modèles de distributions de vitesse testés pour  $\sigma = v' = 2,2$  km/s et  $K_n = 0,012$ .

- $\Psi(z)$  décrit la dépendance du libre parcours moyen de la molécule à la vitesse de cette molécule. Une molécule de vitesse  $\alpha z$  où  $\alpha$  est sa vitesse la plus probable, évoluant dans un milieu de densité  $n$ , subit un nombre de collisions par seconde  $\sqrt{\pi}n\sigma^2\alpha\Psi(z)/z$  [KENNARD1938].

L'expression de la fonction  $\Psi(z)$  est la suivante :

$$\Psi(z) = \frac{z \exp(-z^2) + [\sqrt{\pi}/2](1 + 2z^2)\text{erf}(z)}{\sqrt{2\pi}z^2} \quad (4.24)$$

et la fonction de perturbation  $P[\Psi(z), Kn]$  s'écrit [OLANDER1970] :

$$P[\Psi(z), Kn] = \frac{\sqrt{\pi} \text{erf}[\Psi(z)/2Kn]^{1/2}}{2 [\Psi(z)/2Kn]^{1/2}} \quad (4.25)$$

Si  $Kn$  est beaucoup plus petit que 1, la distribution de vitesse s'éloigne d'une distribution maxwellienne et les atomes sortent plus "rapidement" de la buse.

Dans notre cas, la pression qui règne dans le tube de décharge est d'environ 0,3 Torr et la longueur de la buse est de 3 cm : le nombre de Knudsen est évalué à 0,013. À cette distribution et en nous inspirant des travaux de J.Vigué [VIGUÉ2014, CHAMPENOIS2008], nous avons ajouté un terme en exponentielle décroissante, mimant la forte déperdition du jet en atomes lents à l'endroit de l'excitation laser. La distribution de vitesse prend alors la forme suivante :

$$f(v) = v \times f_M(v, \sigma) P[\Psi(z), Kn] \exp\left(-\frac{v'}{v}\right) \quad (4.26)$$

où  $v'$  est proportionnel au nombre moyen de collisions par unité de temps subies par l'atome de vitesse  $v$  avec les particules résiduelles du vide, sur la distance qui sépare la buse de la zone d'interaction.

A cette distribution nous ajoutons un facteur  $\frac{1}{v}$  pour prendre en compte la probabilité de transition plus importante pour les atomes lents, suite au temps d'interaction plus long avec le laser. Cependant, ceci suppose que les atomes ont une probabilité de fluorescence indépendante de leur vitesse et donc que le profil spatial d'intensité est uniforme. Or notre faisceau a un profil gaussien. Nous ajoutons donc une fonction  $g(v)$  à la distribution de vitesse, qui dépend des paramètres géométriques du faisceau et qui est détaillée dans la thèse d'Olivier Arnoult [ARNOULT2006]. Ce facteur ajoute cependant une correction inférieure au kHz.

On intègre finalement la forme de raie sur la distribution de vitesse :

$$R(\omega, B, \sigma) = a \int_0^{+\infty} g(v) f(v, \sigma) F(\omega, B, v) dv \quad (4.27)$$

J'ai représenté sur la figure 4.7 le comportement de différentes distributions de vitesses, paramétrées avec la même valeur de  $\sigma$ .

Je détaillerai au prochain chapitre les résultats obtenus avec les différentes distributions de vitesse.

## 4.3 Déplacement de la fréquence centrale : effets systématiques

La fréquence de transition peut être décalée par différents phénomènes physiques. Je détaille ici leur ordre de grandeur ainsi que l'incertitude apportée à la fréquence centrale de la transition.

### 4.3.1 Déplacement collisionnel

Le déplacement dû aux collisions de la transition  $1S - 3S$  n'est pas connu. On peut cependant faire l'analogie avec la transition  $2S - 3P$  dans l'hydrogène. Le déplacement de la transition  $2S - 3P$  a été mesuré pour des atomes d'hydrogène dans un gaz d'hélium [WEBER1979]. Ce déplacement vaut environ -7 MHz/mbar. Dans notre expérience la pression du jet dans la cavité est d'environ  $10^{-4}$  mbar, ce qui se traduirait par un décalage en fréquence de 0,7 kHz.

Pour vérifier ce déplacement, nous avons mesuré la fréquence de résonance pour plusieurs valeurs de la pression. Cette étude est représentée en figure 4.8. La pression est mesurée

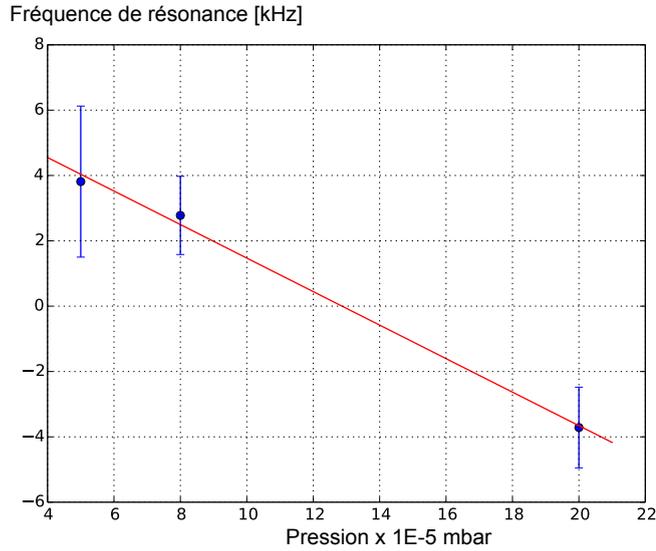


FIGURE 4.8: Déplacement de la fréquence de résonance à trois pressions différentes avec un modèle de distribution de jet effusif ( $N=3$ ). L'origine des fréquences est arbitraire.

en dehors de l'axe de la cavité du jet, à une dizaine de centimètres de la zone d'interaction. Sa valeur est donc une simple approximation de la pression qui règne dans la zone d'interaction. Expérimentalement, il semble qu'on ait un déplacement de la fréquence centrale d'environ 50 MHz/mbar, ce qui est supérieur à l'ordre de grandeur attendu.

Cependant il est légitime de penser qu'augmenter la pression change la distribution de vitesse des atomes du jet, ce qui provoquerait un déplacement de la fréquence de transition via l'effet Doppler du 2nd ordre. Il est donc indispensable d'estimer la distribution de vitesse des atomes d'hydrogène au niveau de la zone d'interaction, comme nous allons le détailler au chapitre suivant.

### 4.3.2 Déplacement lumineux

Pour une intensité du laser  $I$ , la fréquence de la transition s'écrit en fonction de la fréquence non déplacée :

$$\omega_{1S-3S} = \omega_{1S-3S}(0) + \beta_{ac}(1S - 3S) \times 2I \quad (4.28)$$

où  $\beta_{ac}$  est le coefficient de déplacement lumineux encore appelé coefficient de déplacement Stark dynamique, qui vaut  $\beta_{ac}(1S - 3S) = \beta_{ac}(3S) - \beta_{ac}(1S)$ . Le tableau ci-dessous donne les coefficients calculés dans la référence [HAAS2006] pour les niveaux en jeu. Le coefficient 2 provient du fait que le champ électrique total est une superposition de deux ondes contrapropageantes.

$\beta_{ac}(1S) [\text{Hz}(\text{W}/\text{m}^2)^{-1}]$	$\beta_{ac}(3S) [\text{Hz}(\text{W}/\text{m}^2)^{-1}]$
$-3,02104 \times 10^{-5}$	$9,80847 \times 10^{-5}$

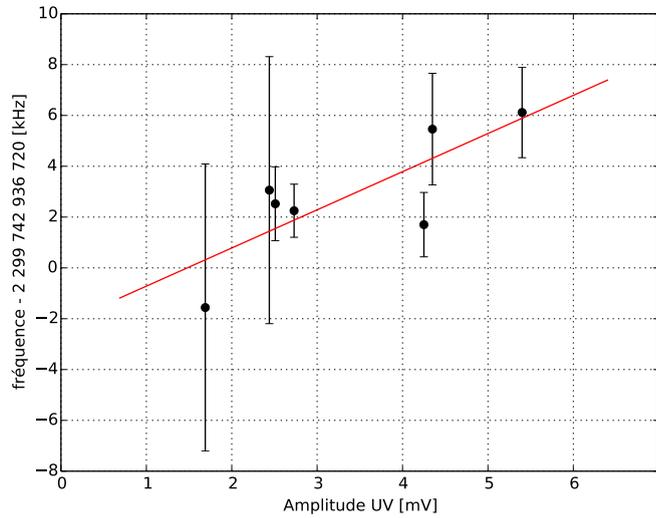


FIGURE 4.9: Déplacement lumineux de la transition en MHz. L'abscisse représente l'amplitude du signal enregistré sur la photodiode lorsque la cavité est asservie. Paramètres de la droite :  $X \times 1,50(52)[\text{MHz}/\text{V}] + 936,7178(19) [\text{MHz}]$

La fréquence de résonance augmente linéairement avec l'intensité lumineuse  $I$ . Or dans un faisceau gaussien, les atomes ne sont pas soumis à la même intensité lumineuse. En l'absence de saturation, la forme de raie observée peut être approximée par un triangle rectangle [GIRARD1983] : les atomes soumis à la plus forte intensité laser contribuent le plus au signal et subissent le plus fort déplacement lumineux. Le déplacement moyen de la raie est donc donné par les  $2/3$  du déplacement maximum subi par les atomes au centre du faisceau (barycentre du triangle).

Avec une intensité intracavité de  $60 \text{ MW}/\text{m}^2$  on trouve ainsi un déplacement lumineux de  $9,84 \text{ kHz}$ . Il est donc indispensable d'évaluer précisément ce déplacement pour l'objectif de précision actuel de la mesure (de l'ordre du kHz).

Nous avons en effet observé un décalage de la fréquence de résonance suivant le niveau de puissance UV incidente. Une étude *a posteriori* a alors été menée pour évaluer expérimentalement ce déplacement lumineux.

Concrètement, nous avons examiné la position de la fréquence de résonance en fonction d'une grandeur proportionnelle à la puissance intra-cavité. Cette grandeur est la tension de la photo-diode à la sortie de la cavité UV. En effet nous enregistrons la moyenne de cette tension durant la seconde d'acquisition d'un point de la séquence (soit pour une valeur donnée de la fréquence du laser TiSa).

Pour chaque jour (à champ nul) la fréquence de la résonance est reportée en fonction de l'amplitude du signal enregistré sur la photodiode lorsque la cavité est asservie (voir figure 4.9). L'extrapolation à amplitude nulle décale la fréquence d'environ  $8 \text{ kHz}$  au maximum. Ceci correspond à une intensité intra-cavité de  $177 \text{ mW}$  pour un faisceau, ce

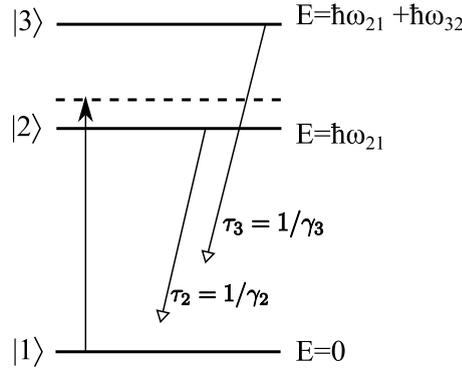


FIGURE 4.10: Atome à trois niveaux. Le laser d'excitation est quasiment à résonance avec la transition  $|1\rangle \rightarrow |2\rangle$  et est largement hors-résonance avec la transition  $|1\rangle \rightarrow |3\rangle$ .

qui est inférieur à notre précédente estimation via la finesse de la cavité (voir § 3.4.3).

Nous allons ensuite pouvoir corriger nos mesures de ce décalage lumineux. L'incertitude sur la pente de la figure 4.9 sera prise en compte dans notre analyse.

### 4.3.3 Déformation du signal de fluorescence par des effets de cohérence

Lorsqu'on détecte un signal de transition sur la fluorescence de niveaux excités, on doit tenir compte en toute rigueur non seulement des populations de ces niveaux, comme nous l'avons fait dans la formule (4.22), mais également des cohérences entre ces niveaux. En effet, comme l'opérateur dipolaire électrique qui intervient dans l'émission spontanée peut coupler plusieurs niveaux excités au même niveau fondamental, des termes d'interférence peuvent jouer un rôle dans le signal de fluorescence. Cet effet connu depuis longtemps (voir par exemple pour les transitions qui nous intéressent [GLASS-MAUJEAN1974]) a été redécouvert récemment par le groupe d'E. Hessels à l'Université de York qui étudie les transitions  $2^3S - 2^3P$  de l'hélium pour déterminer la constante de structure fine [MARSMAN2014]. Il doit en effet être pris en compte en spectroscopie de haute résolution, lorsqu'on détermine la position d'une raie à un niveau de précision qui correspond à une très petite fraction de sa largeur.

Le cas simple de trois niveaux, représenté sur la figure 4.10, a tout d'abord été analysé par l'équipe d'E. Hessels [HORBATSCH2010]. L'interférence entre les deux niveaux excités  $|2\rangle$  et  $|3\rangle$  conduit à un déplacement de la fréquence de résonance  $\omega_{12}$  qui s'exprime de la façon suivante :

$$\delta\omega_{12} = \frac{\Gamma_{23}^2 + |\Omega_3|^2}{4\omega_{32}} \quad (4.29)$$

où  $\Gamma_{23} = (\Gamma_2\Gamma_3)^{1/2}$  représente le terme croisé de la désexcitation radiative des états  $|2\rangle$  et  $|3\rangle$  et  $\Omega_3$  la fréquence de Rabi associée à la transition de  $|1\rangle$  vers  $|3\rangle$ .

Cet effet a été étudié théoriquement et expérimentalement dans l'hélium, et également mis en évidence très clairement sur les composantes hyperfines de la raie D2 des atomes de lithium  ${}^6\text{Li}$  et  ${}^7\text{Li}$  [BROWN2013]. Il joue aussi un rôle important pour la spectroscopie de la transition  $2S - 4P$  de l'atome d'hydrogène réalisée à Garching [BEYER2013]. Dans tous les cas, l'effet de déplacement apparent du signal, dont l'ordre de grandeur est donné par l'équation (4.29), dépend de la polarisation de la fluorescence détectée et est de signe opposé en polarisation  $\sigma$  et en polarisation  $\pi$ .

S'il joue un rôle important pour la spectroscopie des transitions à un photon, cet effet doit également être pris en considération pour les transitions à deux photons détectées sur la fluorescence émise, comme c'est le cas pour la transition  $1S - 3S$  de l'hydrogène excitée en impulsions picosecondes à Garching [PETERS2013] ou en continu dans notre groupe.

Dans notre cas, l'objectif est de déterminer la position de la transition  $1S - 3S$  à 1/1000 ème de sa largeur de raie (1kHz pour 1MHz) et nous détectons la fluorescence dans l'axe du champ magnétique  $B$ , c'est-à-dire en polarisation  $\sigma$ . En pratique, deux effets différents doivent être examinés :

- L'excitation laser à deux photons couple le niveau  $1S$  non seulement au niveau  $3S$  mais aussi aux niveaux  $3D_{3/2,5/2}$  hors résonance. L'effet d'interférence qui en résulte dans la fluorescence des niveaux  $n = 3$  est étudié par l'équipe de Garching [YOST2014b]. Le calcul de l'effet, en champ magnétique nul, n'est pas simple car il fait intervenir de nombreux niveaux hyperfins.

Un calcul d'ordre de grandeur avec l'équation (4.29) et faisant intervenir les niveaux excités  $3S_{1/2}$  et  $3D_{3/2}$  séparés d'environ 2,9 GHz et de largeurs respectives  $\Gamma_{3S} \approx 1$  MHz et  $\Gamma_{3D} \approx 10$  MHz,  $\Omega_3$  étant négligeable devant  $\Gamma_{23}$ , donne un déplacement d'environ 860 Hz. Un calcul plus précis fait par Dylan Yost avec le programme mis au point par le groupe de Garching donne un décalage en fréquence d'environ 500 Hz pour notre transition  $1S - 3S$  [YOST2014a]. De plus l'application d'un champ magnétique ne modifie quasiment pas l'écart d'énergie entre les niveaux  $3S$  et  $3D$  à nos échelles de champ magnétique. L'ordre de grandeur du décalage attendu reste inchangé [YOST2014a].

- Puisqu'au voisinage d'un anti-croisement l'effet Stark mélange les niveaux  $3S$  et  $3P$ , on peut se demander si un effet d'interférence n'affecte pas notre signal de fluorescence en présence d'un champ magnétique. Un tel effet dépendant du champ magnétique et de la polarisation d'observation, était à la base de l'observation des anti-croisements dans les années 70 [GLASS-MAUJEAN1974, JULIEN1974]. L'anti-croisement que nous avons utilisé concerne cependant un niveau  $S$  et un niveau  $P$  tous deux de  $J = 1/2$ , ayant donc un diagramme de rayonnement isotrope, contrairement aux niveaux

$J = 3/2$ . Dans la mesure où les niveaux  $P_{3/2}$  sont lointains et ont une contribution négligeable à la fluorescence, ce que nous avons vérifié avec notre programme de calcul de forme de raie, l'effet d'interférence discuté ici est négligeable pour nous.

#### 4.3.4 Effet Stark parasite

Afin d'étudier l'effet d'un champ électrique parasite sur la fréquence de la transition  $1S - 3S$ , nous avons ajouté un champ électrique faible aux coefficients Stark :

$$V = V_{\text{Stark}} \times E + \sum_i V_{\text{Stark}}(i) \times E_i \quad (4.30)$$

où l'indice  $i$  représente les trois directions spatiales du champ  $\vec{E}$  parasite. Nous avons ensuite ajusté les signaux expérimentaux sur cette forme de raie modifiée, et ce pour différentes valeurs du champ électrique entre 0 et 10 mV/cm.

Lorsque le champ électrique parasite est parallèle au champ magnétique, cet effet décale de façon négligeable la fréquence de transition : le déplacement maximal est d'environ 10 Hz.

Si le champ électrique parasite est perpendiculaire à l'axe du champ magnétique, c'est-à-dire parallèle au champ électrique motionnel, cet effet est plus important. Il induit un déplacement en fréquence maximal d'environ 400 Hz.

La présence d'un champ électrique parasite, d'un ordre de grandeur raisonnable, ne sera donc pas un facteur limitant pour notre objectif de précision, de l'ordre du kilohertz.

## Conclusion

Nous avons identifié dans ce chapitre les causes possibles de déplacement de la raie. L'effet Doppler du second ordre est l'effet prépondérant. Cela implique d'avoir une connaissance précise de la distribution de vitesse dans notre jet atomique, d'autant plus que la distribution de vitesse choisie conditionne les déplacements collisionnels et lumineux déduits de l'ajustement des signaux expérimentaux sur la forme de raie théorique. Ces ajustements feront l'objet du prochain chapitre.

# Chapitre 5

## Résultats

Dans ce chapitre je détaille nos données expérimentales et les méthodes d'ajustements de ces données, pour terminer sur les résultats de cette campagne de mesures qui aura duré 5 mois.

### 5.1 Données expérimentales

#### 5.1.1 Le champ magnétique

Le choix des valeurs de champs magnétiques retenues pour cette campagne de mesures fut bien entendu mené à partir de l'allure de la courbe de dispersion de la fréquence du signal en fonction du champ magnétique représenté sur la figure 4.2. Les quatre valeurs retenues sont les suivantes :

- les deux valeurs extrémales : 170 et 190 G. La valeur de 170 G correspond au point où l'effet Doppler est le mieux compensé. La fréquence en ce point est donc la plus proche de la fréquence absolue de la transition  $1S - 3S$ . Au contraire l'écart en fréquence est le plus important à 190 G, la fréquence de ce point dépend de façon critique de la distribution de vitesse utilisée. De plus à ces valeurs extrêmes, la fréquence dépend plus faiblement d'une possible mauvaise calibration du champ magnétique.
- la valeur de 160 G qui correspond au point A de la figure 4.2 permet d'obtenir une valeur sur un flanc de la dispersion et de contraindre ainsi la forme de la courbe.
- enfin nous effectuons une mesure sans utiliser les bobines de champ magnétique ce qui correspond à un champ  $B = -0,26$  G après calibration finale.

Afin de réduire tout effet systématique produit par le champ magnétique, les mesures ont aussi été effectuées en inversant le signe du champ magnétique. En prenant en compte l'offset du champ magnétique issu de la calibration finale, le nombre de valeurs de champ magnétique utilisées s'élève finalement à sept :  $-0,26$  G, 159,2 G,  $-159,7$  G,

170 G, -171,3 G, 190,3 G et -191 G.

### 5.1.2 Méthode d'ajustement

Un point de mesure correspond à la moyenne sur une seconde d'enregistrement du nombre de coups vu par le photomultiplicateur, de la puissance UV à la sortie de la cavité UV et des fréquences des battements des lasers sources avec le peigne de fréquences optiques. Les points de mesures sont automatiquement éliminés si la cavité UV se désasservit (ce qui correspond à une chute brutale du signal de la photodiode UV) et en cas d'un mauvais comptage des fréquences des lasers, c'est-à-dire si la différence de fréquence entre les battements directs ou indirects (après une atténuation de -10 dB ou après asservissement sur un VCO) est supérieure à une dizaine de hertz.

Chaque enregistrement de 6 minutes environ (soit environ 300 points de mesures) est ajusté sur la forme de raie théorique.

La forme de raie théorique est déterminée pour une distribution de vitesse donnée (avec les paramètres  $\sigma$  et  $N$  de la distribution inspirée du jet effusif ou les paramètres  $\sigma$  et  $v'$  du modèle de déplétion des atomes lents dans le jet) et pour un champ magnétique donné.

La fréquence nulle correspond à la fréquence du laser corrigée de l'effet Doppler du 2ème ordre, des déplacements Zeeman des niveaux  $1S$ ,  $3S$  et  $3P$  et des déplacements Stark des niveaux  $3S$ . La fréquence nulle correspond donc à la fréquence de la transition  $1S(F=1) \rightarrow 3S(F=1)$  pour un atome de vitesse nulle (la structure hyperfine étant par ailleurs très bien connue). La forme de raie théorique est alors calculée sur 1000 points entre -5 et 5 MHz par rapport à la fréquence nulle.

La fréquence de ces points théoriques ne se superpose pas à celle des points expérimentaux. On effectue alors un "spline" des données théoriques : soit un ajustement par un polynôme cubique qui reproduit très fidèlement le signal de fluorescence théorique. Cette fonction de spline  $S_{B,\sigma}(\nu)$  est convoluée par une fonction lorentzienne, définie par sa largeur  $\Gamma$  et son centre  $\nu_c$ . Cette convolution permet de rendre compte de l'élargissement du signal de fluorescence observé. Deux paramètres additionnels  $A$  et  $C$  définissent respectivement l'amplitude et l'offset du signal, c'est-à-dire le décalage correspondant au signal vu par le photomultiplicateur en dehors de la résonance  $1S - 3S(F=1)$ . Finalement, les données expérimentales sont ajustées grâce aux quatre paramètres  $\nu_c, \Gamma, A$  et  $C$  sur la fonction suivante :

$$F_{B,\sigma}(\nu, \nu_c, \Gamma, A, C) = S_{B,\sigma}(\nu) \otimes f_{Lor}(\nu - \nu_c, \Gamma) \times A + C \quad (5.1)$$

Il s'agit donc de minimiser le scalaire  $S$  suivant :

$$S = \sum_{i=1}^{31} [Y_i - F_{B,\sigma}(X_i, \nu_c, \Gamma, A, C)]^2 \quad (5.2)$$

où  $X_i$  et  $Y_i$  sont respectivement la fréquence du laser UV calculée à partir des battements des lasers sources avec le peigne de fréquences, et  $Y_i$  la fluorescence observée à la fréquence  $X_i$ .

Cette minimisation, effectuée via le module `optimize.leastsquare` du logiciel Python, détermine les paramètres optimaux  $p_0 = (\nu_{c,\text{opt}}, \Gamma_{\text{opt}}, A_{\text{opt}}, C_{\text{opt}})$  et la valeur  $S_0$  du minimum de la fonction  $S$ .

### 5.1.2.1 Incertitude *a posteriori* sur les paramètres

Afin de déterminer l'incertitude *a posteriori* sur les paramètres  $p$ , nous pouvons soit nous reposer sur la routine `optimize.leastsquare` du langage Python ou procéder de manière plus autonome comme je vais le décrire ci-dessous. Nous vérifions que les deux méthodes d'ajustements donnent les mêmes résultats bien en deçà des nombres significatifs d'intérêt. De telles incertitudes sont dites *a posteriori* car elles dépendent de la dispersion des points par rapport à l'ajustement.

- La première méthode est d'utiliser la matrice jacobienne  $J$  (de dimension  $4 \times 4$ , où 4 est le nombre de paramètres) créée lors du processus de minimisation de l'équation (5.2) via le module Python. Cette matrice donne les dérivées secondes partielles, évaluées à l'optimum, de la fonction vectorielle représentative de la fonction  $F_{B,\sigma}(x, \nu_c, \Gamma, A, C)$  (soit la généralisation du développement limité à une fonction vectorielle à plusieurs variables).

Pour retrouver la matrice covariante, l'inverse de la matrice jacobienne doit être multipliée par la variance résiduelle, c'est-à-dire la dispersion des mesures expérimentales  $(\delta Y_i)^2$  qui vaut :

$$(\delta Y_i)^2 = \frac{S_0}{(N - 4)} \quad (5.3)$$

où le nombre  $N$  représente le nombre de mesures constituant un signal expérimental, soit 31. Le chiffre 4 correspond toujours au nombre de paramètres utilisées pour l'ajustement. L'écart-type du paramètre  $p_n$  vaut finalement :

$$\sigma(p_n) = \sqrt{J_{n,n}^{-1} \times \frac{S_0}{(N - 4)}} \quad (5.4)$$

- Nous pouvons aussi procéder par une autre méthode, qui donne les mêmes résultats et qui permet de s'affranchir de l'utilisation explicite de la matrice jacobienne (précédemment créée par une routine du langage Python).

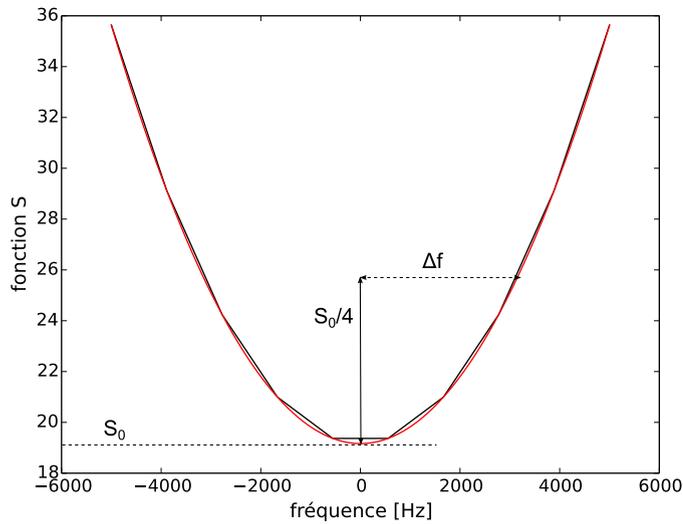


FIGURE 5.1: Évolution de la fonction  $S$  au voisinage de la fréquence optimale. Les données sont déduites des ajustements des signaux expérimentaux sur les profils de raies calculés, pour les 7 valeurs du champ magnétique. Les paramètres d'ajustements sont au nombre de 3 (voir plus loin au paragraphe 5.2.1). L'incertitude de la fréquence se déduit comme la valeur de la parabole à l'ordonnée  $S_0/(7 - 3)$ .

Le principe est aussi d'étudier les variations de  $S$  au voisinage de  $S_0$ . Concrètement, nous ajustons la fonction  $F_{B,\sigma}(x, \nu c, \Gamma, A, C)$  sur les données expérimentales pour des valeurs fixées du paramètre  $p_n$  dont on cherche l'incertitude, ces valeurs fixées se situent au voisinage proche de la valeur optimale du paramètre  $p_n$ . La somme des carrés des résidus  $S$  est évaluée pour chacune de ces valeurs. On ajuste alors facilement  $S$  en fonction de ces valeurs par une parabole :

$$Q(p_n) = a(p_n - b)^2 + c \quad (5.5)$$

L'incertitude sur le paramètre  $p$  vaut alors :

$$\sigma(p_n) = \sqrt{\frac{c}{a \times (N - 4)}} \quad (5.6)$$

Sur la figure 5.1 est représenté un résultat typique d'ajustement.

### 5.1.2.2 Incertitude *a priori* sur les paramètres

Les incertitudes, dites *a priori*, sont déterminées par propagation linéaire des incertitudes initiales lorsque celles-ci ont été préalablement définies. Ces incertitudes, sont facilement calculables en linéarisant les équations au voisinage de l'optimum des paramètres. Nous retenons l'incertitude la plus grande entre les incertitudes *a priori* et *a posteriori* pour l'incertitude finale.

L'équation du développement limité d'une fonction  $f(x, y, p_i)$  à plusieurs variables (prenons seulement deux variables pour illustrer la méthode :  $x$  et  $y$ ) définie par les paramètres  $p_i$ , s'écrit au voisinage de l'optimum ( $x_0$  et  $y_0$ ) :

$$z_i = f(x_0, y_0, p_i) + (x - x_0) \left. \frac{\partial f(x, y, p_i)}{\partial x} \right|_{x_0} + (y - y_0) \left. \frac{\partial f(x, y, p_i)}{\partial y} \right|_{y_0} \quad (5.7)$$

qu'on peut écrire sous la forme suivante :

$$z_i = g(x_0, y_0, p_i) + x \left. \frac{\partial f(x, y, p_i)}{\partial x} \right|_{x_0} + y \left. \frac{\partial f(x, y, p_i)}{\partial y} \right|_{y_0} \quad (5.8)$$

Il s'agit alors de résoudre un système de  $i$  équations, correspondant par exemple aux sept valeurs de champ magnétique qui peut s'écrire sous la forme matricielle suivante <sup>1</sup> :

$$\begin{aligned} AX &= B \\ \text{avec } B &= z_i - [g(x_0, Y_0, p_i)]_{(i \times 1)} \\ A &= \left[ \left. \frac{\partial f(x, y, p_i)}{\partial x} \right|_{x_0}, \left. \frac{\partial f(x, y, p_i)}{\partial y} \right|_{y_0} \right]_{(i \times 2)} \\ \text{et posons } V &= \text{diago}(\sigma^2(z))_{(i \times i)} \end{aligned} \quad (5.9)$$

La matrice  $V$  est la variance des  $i$  mesures, cette matrice est effectivement diagonale si il n'y a pas de corrélations entre les mesures. Chaque équation est alors pondérée par l'incertitude sur la valeur  $z$ . Le système d'équations se réécrit de la façon suivante :

$$V^{-1}AX = V^{-1}B \quad (5.10)$$

On multiplie alors chaque terme de l'équation par la transposée  $A^T$  pour obtenir une matrice carrée qu'on peut inverser afin de trouver la solution  $X$  du système :

$$\begin{aligned} X &= G^{-1}A^T V^{-1}B \\ \text{où } G &= A^T V^{-1}A \end{aligned} \quad (5.11)$$

La nouvelle valeur optimale de la variable  $j$  ( $j=1$  pour  $x$ ,  $j=2$  pour  $y$ ) et son incertitude *a priori* sont déterminées ainsi :

$$\begin{aligned} j_{opt} &= X_j \\ \sigma(j_{opt}) &= \sqrt{G_{j,j}} \end{aligned} \quad (5.12)$$

---

1. On ne confondra pas les matrices  $A$  et  $B$  utiles pour la résolution du système d'équation et uniquement utilisées des équations 5.9 à 5.12, au paramètre d'amplitude  $A$  de la forme de raie et au champ magnétique  $B$ .

## 5.2 Détermination de la distribution de vitesse

Afin de déterminer la distribution de vitesse, la stratégie est d'ajuster les signaux expérimentaux obtenus à différentes valeurs du champ magnétique avec des formes de raie intégrées sur différentes distributions de vitesse. Nous obtenons alors pour un champ magnétique donné, une courbe représentant l'évolution de la fréquence centrale  $1S - 3S(F = 1)$  en fonction des paramètres utilisés pour caractériser la distribution de vitesse. Or la fréquence centrale  $1S - 3S(F = 1)$  est par définition la fréquence de la transition à champ nul et pour un atome de vitesse nulle. L'intersection de ces différentes courbes, qui ne dépend donc ni du champ magnétique ni des paramètres de la distribution de vitesse utilisée, nous donne accès à la fréquence centrale  $1S - 3S(F = 1)$  la plus probable. L'incertitude sur le croisement de ces courbes donne accès à l'incertitude sur la fréquence centrale.

Nous retiendrons la distribution de vitesse qui mène à l'incertitude la plus faible sur la détermination de cette fréquence centrale.

Nous ajustons la forme de raie théorique sur les 31 points composant le signal de fluorescence (obtenu après moyennage de 10 balayages de la séquence de 31 points). Pour chacun de ces signaux, la fréquence centrale  $\nu_i$  est obtenue par l'ajustement et son incertitude est déterminée comme décrit précédemment.

La fréquence de la transition à un champ donné est alors déterminée par une moyenne pondérée des fréquences obtenues par ces  $k$  enregistrements. On corrige de plus la fréquence du déplacement lumineux  $\delta_{UV}$  établie au chapitre précédent.

$$\nu_B = \frac{\sum_{i=1}^k \nu_i / \sigma^2(\nu_i)}{\sum_{i=1}^k 1 / \sigma^2(\nu_i)} - \delta_{UV} \times \mathcal{A}_{UV} \quad (5.13)$$

où  $\mathcal{A}_{UV}$  est l'amplitude du signal de la photodiode UV. L'incertitude sur  $\nu_B$  vaut :

$$\sigma(\nu_B) = \frac{1}{\sqrt{\sum_{i=1}^k 1 / \sigma^2(\nu_i)}} \quad (5.14)$$

Notre confiance au résultat est mesurée à l'aide de la loi du  $\chi^2$  :

$$\chi^2 = \sum_{i=1}^k \left( \frac{\nu_i - \nu_B}{\sigma(\nu_i)} \right)^2 \quad (5.15)$$

Le rapport de Birge  $\chi^2 / (k - 1)$  se rapproche alors de la valeur 1 si les  $\nu_i$  représentent bien des variables aléatoires. Si le rapport de Birge est plus grand que 1, on choisit comme incertitude le résultat de l'équation 5.14 multiplié par la racine du rapport de Birge.

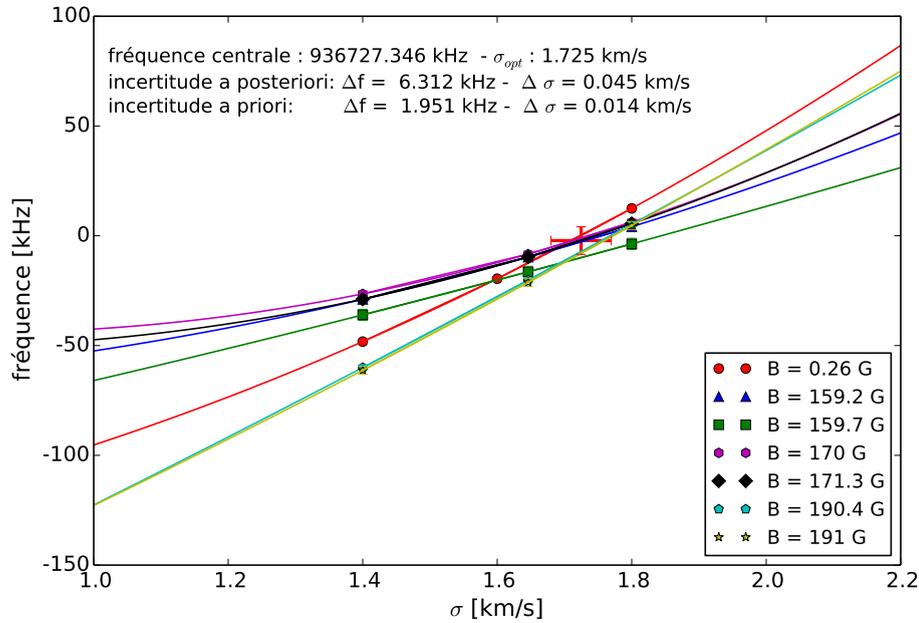


FIGURE 5.2: Pour chacune des 7 valeurs du champ magnétique, est représenté l'ajustement des signaux expérimentaux avec une forme de raie intégrée sur une distribution de vitesse caractéristique d'un jet effusif ( $N=3$ ) avec trois valeurs différentes du paramètre  $\sigma$  : 1,4; 1,6 et 1,8 km/s. L'intersection des courbes nous donne accès à la fréquence centrale  $1S - 3S(F = 1)$  et au paramètre  $\sigma$  de la distribution de vitesse le plus probable.

Le tableau ci-dessous liste le nombre  $k$  de signaux enregistrés pour chaque valeur du champ magnétique :

Champ $B$ (G)	-0,26 G	159,2 G	-159,7 G	170 G	-171,3 G	190,3 G	-191 G
nombre $k$ d'enregistrements	180	92	82	175	122	143	124

### 5.2.1 Le jet effusif

Nous avons tout d'abord analysé les données expérimentales avec une forme de raie intégrée sur la distribution de vitesse caractéristique d'un jet effusif :

$$f(v, \sigma) = \frac{2}{\sqrt{2\pi}\sigma^2} v^3 \exp\left(\frac{-v^2}{2\sigma^2}\right) \quad (5.16)$$

Afin de déterminer le paramètre  $\sigma$ , nous ajustons nos données expérimentales avec trois valeurs différentes de  $\sigma$  : 1,4, 1,6 et 1,8 km/s.

La fréquence a un comportement quasiment linéaire avec le paramètre  $\sigma$ . Nous pouvons donc ajuster les trois fréquences calculées avec les trois distributions  $f(v, \sigma)$  par une

parabole, et ce pour chacun des sept champs magnétiques. Les paramètres de chaque parabole  $p_B$  sont obtenus par une méthode de moindres carrés. Ces sept paraboles se croisent pour la valeur optimale de  $\sigma_{\text{opt}}$  et de la fréquence  $\nu_c$  de la transition  $1S - 3S$ . L'incertitude sur le croisement donne accès à l'incertitude sur les grandeurs  $\sigma_{\text{opt}}$  et  $\nu_c$ . Le point d'intersection des paraboles  $P(p_B, \sigma)$  est obtenu en minimisant le scalaire suivant :

$$S = \sum_B \frac{(\nu - P(p_B, \sigma))^2}{\sigma_B^2} \quad (5.17)$$

où  $\sigma_B$  représente l'incertitude maximale parmi l'ensemble des fréquences  $\nu_i$  à un champ magnétique donné. Les incertitudes sur  $\sigma_{\text{opt}}$  et  $\nu_c$  sont déterminées en évaluant la fonction  $S$  au voisinage des paramètres optimaux comme décrit précédemment.

Le résultat de cet ajustement est représenté sur la figure 5.2. Les fréquences sont corrigées du déplacement lumineux établi au chapitre précédent.  $\nu_c$  correspond alors à la fréquence à deux photons  $1S_{1/2} - 3S_{1/2}(F = 1)$  pour un atome au repos. L'ajustement donne les valeurs suivantes :

$$\begin{aligned} \nu_c &= 2\,922\,742\,936\,727,3(6,4) \text{ kHz} \\ \sigma_{\text{opt}} &= 1,725(45) \text{ km/s} \end{aligned} \quad (5.18)$$

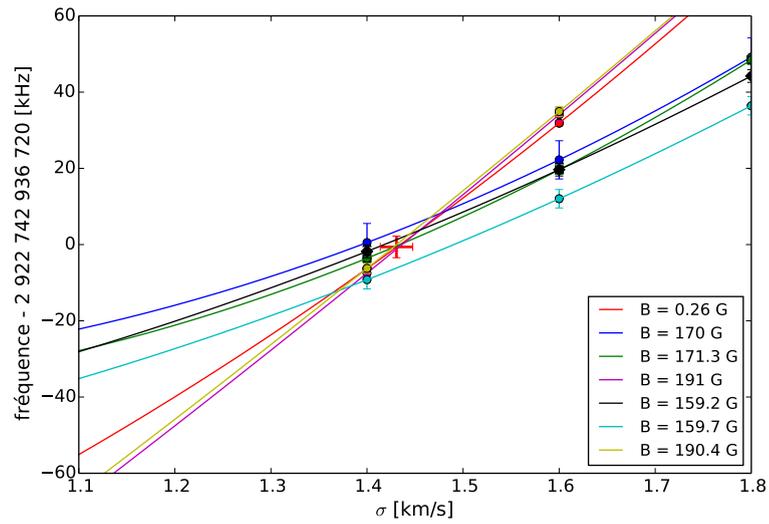
où l'on rappelle que l'incertitude retenue est la valeur la plus grande entre l'incertitude *a priori* et celle *a posteriori*. Le couple de valeurs établi précédemment par l'équipe en 2010 est le suivant [ARNOULT2010] :

$$\begin{aligned} \nu_0^{(2010)} &= 2\,922\,742\,936\,727,5(12,0) \text{ kHz} \\ \sigma_0^{(2010)} &= 1,646(89) \text{ km/s} \end{aligned} \quad (5.19)$$

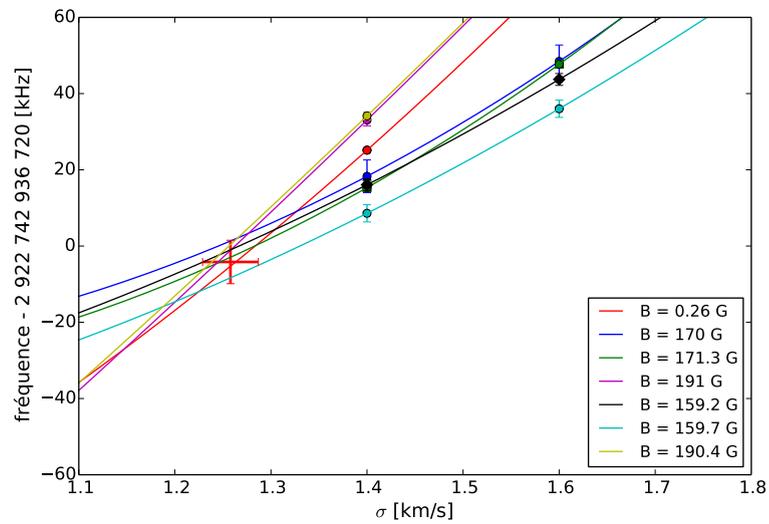
Ces deux couples de valeur sont en très bon accord. Nous ne concluons sur l'amélioration de l'incertitude gagnée qu'à la fin de ce chapitre où toutes les sources d'incertitudes auront alors été étudiées.

### 5.2.2 Variations autour du jet effusif

Nous avons ensuite ajusté les données expérimentales par une forme de raie théorique intégrée sur les distributions de vitesse avec  $N=4$  et  $5$ . Les résultats de ces ajustements sont représentés en figure 5.3 et listés dans le tableau ci-dessous :



(A) Utilisation de distributions de vitesse de paramètre  $N=4$  et de paramètres  $\sigma=1,4$ ;  $1,6$  et  $1,8$  km/s.



(B) Utilisation de distributions de vitesse de paramètre  $N=5$  et de paramètres  $\sigma=1,4$ ;  $1,6$  et  $1,8$  km/s.

FIGURE 5.3: Résultat de l'ajustement des signaux expérimentaux avec une forme de raie intégrée sur une distribution de vitesse de paramètres  $N$  et  $\sigma$ .

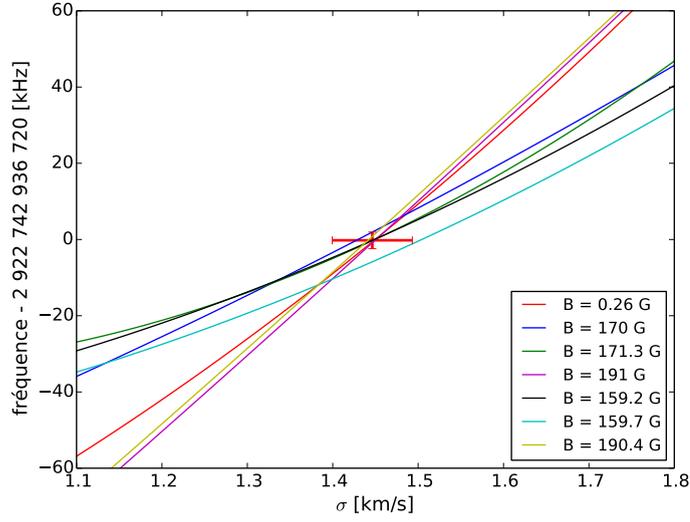


FIGURE 5.4: Coupe selon le paramètre optimal  $N_{\text{opt}}=3,84$  de l'ajustement des signaux sur des formes de raies utilisant différentes distributions de vitesse de paramètres  $N=3; 4; 5$  et  $\sigma=1,4; 1,6$  et  $1,8$  km/s.

$N$	3	4	5
$\nu_c - 2\,922\,742\,000$ [kHz]	<b>936 727,35</b>	<b>936 719,40</b>	<b>936 716,29</b>
$\Delta\nu_c$ a posteriori [kHz]	<b>6,38</b>	<b>2,63</b>	<b>4,62</b>
$\Delta\nu_c$ a priori [kHz]	1,95	2,00	1,96
$\sigma_{\text{opt}}$ [km/s]	<b>1,725</b>	<b>1,431</b>	<b>1,256</b>
$\Delta\sigma_{\text{opt}}$ a posteriori [m/s]	<b>45</b>	<b>16</b>	<b>24</b>
$\Delta\sigma_{\text{opt}}$ a priori [m/s]	14	12	10

On vérifie premièrement que le choix de la distribution de vitesse est crucial pour l'analyse des données : plus de 10 kHz séparent l'ajustement des fréquences pour  $N = 3$  et 5. Il semble de plus qu'il y ait un optimum sur l'incertitude de la fréquence centrale.

Pour déterminer cette optimum, nous procédons à un ajustement 3D des données expérimentales. Les paramètres sont  $\sigma$  (3 valeurs : 1,4; 1,6 et 1,8 km/s) et l'entier  $N$  (3 valeurs : 3; 4 et 5). Pour chaque champ magnétique, les données (au nombre de 9) forment une nappe ajustable par un paraboloïde :

$$\nu = P_B(\sigma, N) = o + a\sigma + bN + c\sigma^2 + dN^2 + e\sigma \times N \quad (5.20)$$

L'intersection optimale de ces 7 nappes est déterminée en minimisant le scalaire  $S$ , sur le même schéma que l'équation 5.17. Pour déterminer l'incertitude a priori, nous linéarisons l'équation du paraboloïde au voisinage du l'optimum ( $\sigma_{\text{opt}}, N_{\text{opt}}$ ).

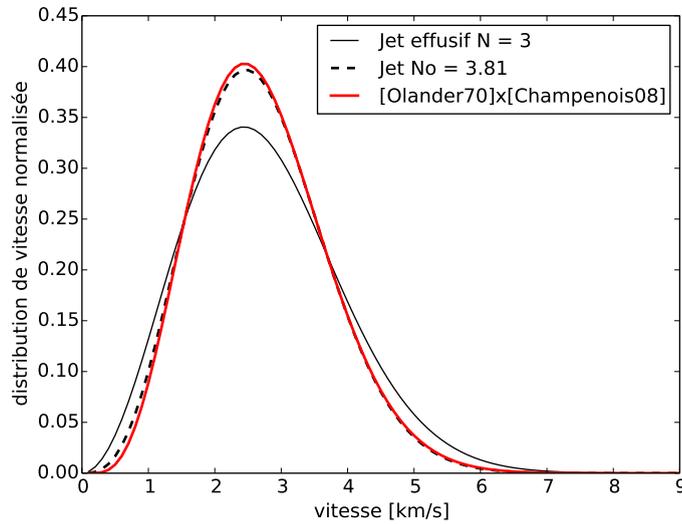


FIGURE 5.5: Comparaison entre les modèles de distributions de vitesse optimisées : le modèle du jet effusif, le modèle où le paramètre  $N$  est laissé libre (sa valeur optimale est  $N_o = 3,81$ ) et le modèle de déplétion des atomes lents décrit en détail au paragraphe 4.2.2.

Les paramètres optimaux sont les suivants, où l'incertitude indiquée est la plus élevée entre l'incertitude *a priori* et l'incertitude *a posteriori*.

$$\nu_c = 2\,922\,742\,936\,719,57(2,95) \text{ kHz} \quad (5.21)$$

$$\sigma_{\text{opt}} = 1,463(52) \text{ km/s} \quad (5.22)$$

$$N_{\text{opt}} = 3,84(21) \quad (5.23)$$

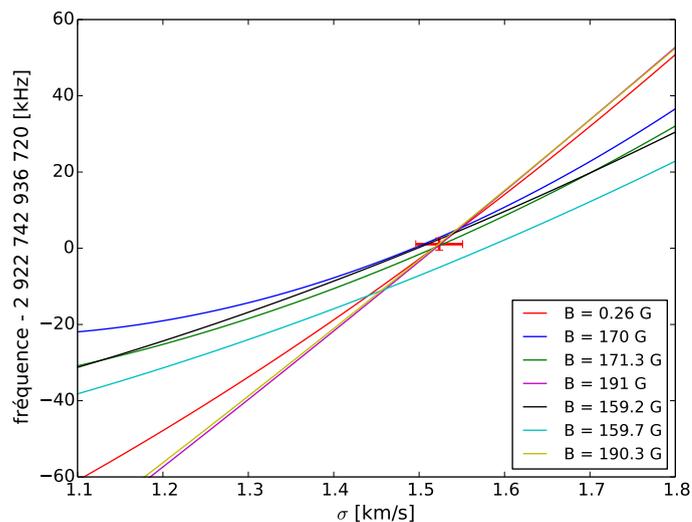
Une coupe des nappes pour la valeur optimale  $N_{\text{opt}}$  est représentée sur la figure 5.4.

### 5.2.3 La distribution finale

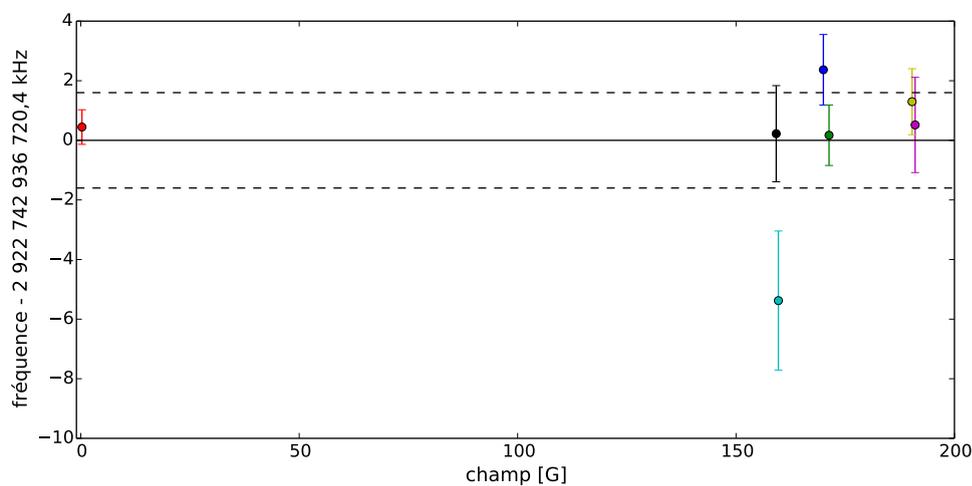
Une distribution paramétrée par  $N_{\text{opt}}$  est purement empirique. La discussion menée au chapitre précédent nous a conduit à utiliser une distribution de vitesse caractérisée par les paramètres  $\sigma$  et  $v'$ , et surnommée modèle de déplétion, dont on rappelle l'équation simplifiée ci-dessous :

$$f(v) = v \times f_M(v, \sigma) P(v/\sigma) \exp\left(-\frac{v'}{v}\right) \quad (5.24)$$

Il s'agit de déterminer l'intersection des sept nappes de fréquences, définies par les paramètres  $\sigma$  et  $v'$ , qui correspondent aux sept valeurs du champ magnétique. Le résultat



(A) Résultat de l'ajustement des signaux expérimentaux avec la nouvelle distribution de vitesse :  $v' = 0,6 ; 1 ; 1,4$  et  $1,8$  km/s et  $\sigma = 1,4 ; 1,5$  et  $1,6$  km/s. Coupe selon le paramètre optimal  $v'_{opt} = 0,82$  km/s.



(B) Répartition des fréquences après l'ajustement des données sur la forme de raie théorique corrigée de l'effet Doppler du second ordre et intégrée sur la distribution de vitesse optimale. Le trait plein représente la fréquence centrale la plus probable et le trait en tiret représente son incertitude.

FIGURE 5.6

de cet ajustement est illustré sur la figure 5.6a et donne les valeurs suivantes :

$$\begin{aligned}
 \nu_c &= 2\,922\,742\,936\,720,4(2,3) \text{ kHz} \\
 \sigma_{\text{opt}} &= 1,520(35) \text{ km/s} \\
 v'_{\text{opt}} &= 0,81(38) \text{ km/s}
 \end{aligned}
 \tag{5.25}$$

L'incertitude sur la détermination des paramètres a encore légèrement diminué. Une coupe de l'ajustement suivant les paramètres optimaux est représenté en figure 5.6a. Comparons maintenant les deux distributions de vitesses. Comme représenté sur la figure 5.5, le modèle de déplétion suit très fidèlement le modèle effusif pour  $N_{\text{opt}}$  optimal.

Les fréquences calculées à l'optimum et associées aux différents champs magnétiques ainsi que la statistique des mesures sont répertoriés dans le tableau ci-dessous (et voir figure 5.6b) :

$B$ (G)	fréquence - 2 922 742 936 000 kHz	incertitude	$\chi^2$	nombre $k$ d'enregistrement	$\chi^2/(n-1)$
-0,26	720,85 kHz	0,58 Hz	209,8	180	1,17
159,2	720,6 kHz	1,6 kHz	99,0	92	1,09
-159,7	715,0 kHz	2,3 kHz	93,3	82	1,15
170	722,7 kHz	1,2 kHz	187	175	1,08
-171,3	720,5 kHz	1,0 kHz	132,8	122	1,1
190,3	721,7 kHz	1,1 kHz	122,1	143	0,87
-191	720,9 kHz	1,6 kHz	157,2	124	1,28

## 5.3 Résultats

### 5.3.1 Ajustement des sources de déplacement de la raie

Le modèle de distribution de vitesse étant maintenant bien déterminé, il est nécessaire de ré-analyser les différentes sources de déplacement de la raie avec des signaux ajustés sur la nouvelle forme de raie théorique.

#### Le déplacement lumineux

La fréquence centrale des signaux atomiques est déterminée par ajustement avec une forme de raie intégrée sur la distribution de vitesse de paramètres  $\sigma_{\text{opt}} = 1,520$  km/s et  $v'_{\text{opt}} = 0,82$  km/s. Le nouveau coefficient de déplacement lumineux vaut 1,68(39) MHz/V. L'ajustement du déplacement lumineux est illustré sur la figure 5.7.

Les données sont donc corrigées de la nouvelle pente du déplacement lumineux et de l'incertitude associée. Cette opération provoque une diminution de la fréquence

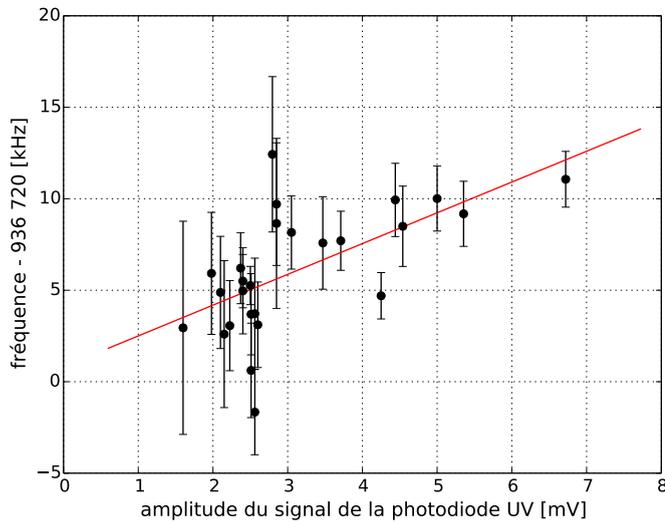


FIGURE 5.7: Déplacement lumineux en ajustant les signaux expérimentaux à l'aide de la distribution de vitesse optimale (modèle de déplétion avec  $v'_{opt} = 0,82$  et  $\sigma_{opt} = 1,520$  km/s). Chaque point représente une journée de mesure. La pente de la droite d'ajustement en rouge vaut  $1,68(39)$  MHz/V(UV).

centrale d'environ 100 Hz. Nous n'effectuerons donc pas de nouvel "aller-retour" entre la détermination du déplacement lumineux et l'optimisation de la distribution de vitesse.

### L'extrapolation à pression nulle

Naïvement, les signaux enregistrés à trois pressions différentes sont ajustés avec la nouvelle forme de raie. L'extrapolation de cet ajustement à pression nulle donne un décalage d'environ 5,9 kHz et une pente de -50 MHz/mbar. Cette pente est bien plus élevée que les données actuelles de déplacement de raies atomiques sur des systèmes similaires. Par exemple, le déplacement de la transition  $2S - 2P$  de l'hydrogène dans un bain d'hélium a été mesurée à -7 MHz/mbar [WEBER1979].

Une raison possible à ce désaccord est l'intervention de l'effet Doppler du second ordre. À haute pression, la vitesse moyenne du jet d'hydrogène augmente, ce qui diminue la fréquence de transition via l'effet Doppler du second ordre, qui s'ajoute à la diminution de la fréquence de la transition via les collisions.

Deux stratégies sont alors possibles : l'extraction d'une dépendance du modèle de distribution de vitesse à la pression du jet atomique ou une détermination précise de la distribution de vitesse aux points différents de pression. Cette dernière solution demanderait d'enregistrer les signaux de résonance pour différents champs magnétiques et différentes pressions puis de procéder à une analyse complète des résultats comme nous venons de le détailler. Cette solution n'a pas été mise en place durant ma thèse.

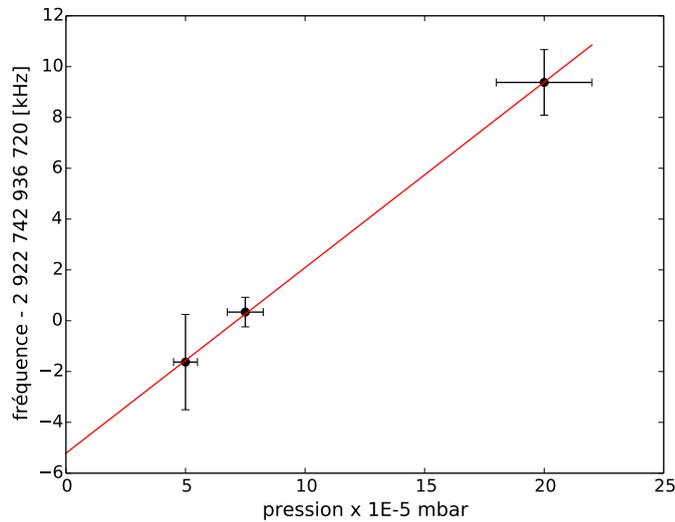


FIGURE 5.8: Fréquence atomique en fonction de la pression, en adaptant la distribution de vitesse pour chaque pression. La pente est de signe opposé à la situation précédente représentée sur la figure 4.8. L'ordonnée à l'origine vaut -5,6 kHz et la pente vaut 73(11) MHz/mbar.

Par contre le paramètre  $v'$  dépend de la pression du milieu. Le terme  $T = \exp(-v'/v)$  peut être assimilé à la transmission du milieu ;  $T$  suit une loi de Beer-Lambert où  $v'$  dépend de la section efficace de collision totale  $\sigma(v_c)$ , de la densité atomique du milieu, de la longueur  $L$  parcourue par ces mêmes atomes entre la buse et la zone d'interaction et enfin d'une vitesse caractéristique  $v_c$  des atomes du jet [CHAMPENOIS2008]. Une évolution de la pression laisse inchangés les paramètres  $\sigma(v_c)$  et  $L$ , alors que la densité est en première approximation proportionnelle à la pression du milieu. Ainsi nous modélisons une nouvelle distribution de vitesse où le paramètre  $v'$  est augmenté du même facteur que nous augmentons la pression dans l'enceinte à vide. Ce raisonnement est cohérent avec celui de la loi de Beer-Lambert : plus la pression dans l'enceinte à vide augmente plus l'atome est susceptible de subir des collisions ce qui diminue la transmission  $T$  du milieu.

En suivant ce raisonnement, l'évolution de la fréquence en fonction de la pression est représentée sur la figure 5.8. Fait remarquable, la pente de cette droite est de signe opposé à nos précédentes estimations.

En estimant une incertitude sur la mesure de pression de 20 %, l'extrapolation à pression nulle correspond à une fréquence de 2 922 742 936,7148(21) kHz soit un déplacement de -5,6 kHz de la fréquence  $\nu_c$  mesurée à  $8 \cdot 10^{-5}$  mbar. La pente de l'ajustement est de 73(11) MHz/mbar.

Afin de déterminer l'incertitude liée à cette correction, nous utilisons les valeurs extrémales de l'incertitude sur la pente de la courbe 5.8 et observons le décalage de la fréquence résultant. Nous avons procédé de même pour déterminer l'incertitude sur le déplacement lumineux.

Un bilan global d'incertitude, bien que préliminaire, est formulé ci-dessous :

Sources d'erreur	incertitude
Déplacement lumineux	0,8 kHz
Déplacement collisionnel	1,5 kHz
Statistique	2,1 kHz
résultat	$\nu_c = 2\,922\,742\,936\,714,8(2,7)$ kHz

L'incertitude finale est de 2,7 kHz soit une incertitude relative de  $9,2 \times 10^{-13}$ . Ce résultat reste concordant avec le résultat précédent de 2010.

Afin de déduire la fréquence centroïdale  $1S - 3S$ , il est nécessaire de corriger  $\nu_c$  de la structure hyperfine. Comme détaillé au premier chapitre, l'écart hyperfin du niveau  $1S$  vaut 1 420 405,752 kHz et celui du niveau  $3S$  vaut 52 609,38(1) kHz. La fréquence à deux photons de la transition  $1S - 3S$  vaut finalement :

$$f_{1S-3S} = 2\,922\,743\,278\,663,9(2,7) \text{ kHz} \quad (5.26)$$

Soulignons que ces analyses sont dans un stade préliminaire. Une nouvelle expérience est en cours de construction pour refroidir les atomes d'hydrogène par thermalisation au contact d'une buse refroidie à l'azote liquide. Cette géométrie permettrait de diminuer la température du jet atomique d'un facteur 4 et donc de diminuer du même facteur le décalage Doppler et de réduire significativement l'élargissement dû aux collisions.

### 5.3.2 La constante de Rydberg et le déplacement de Lamb

Malgré le caractère préliminaire de ces mesures, je vais déterminer les valeurs de la constante de Rydberg, du déplacement de Lamb et du rayon du proton à partir de la fréquence  $f_{1S-3S}$  mesurée pendant ma thèse.

Nous pouvons déduire le déplacement de Lamb et le rayon du proton, en comparant notre valeur à la transition  $1S - 2S$  connue à 10 Hz près. La méthode de calcul est détaillée au 1er chapitre, on rappelle l'équation finale :

$$L_{1S} = -16f_{1S-2S} + 13,5f_{1S-3S} - 2\Delta_2 + 0,5(\Delta_3 + \Delta^{DR}) \quad (5.27)$$

- Les différences théoriques  $\Delta_2$  et  $\Delta_3$  valent respectivement :  
-187 225,70(5) kHz et -235 070,90(7) kHz.

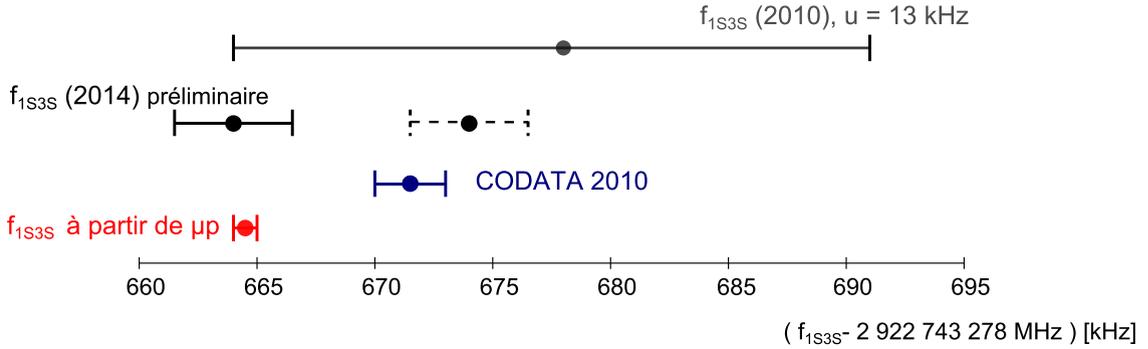


FIGURE 5.9: Fréquence de la transition  $1S - 3S$  calculée avec la valeur de la distribution de charge du proton recommandée par le CODATA 2010 (en bleu) ou déduite de la spectroscopie de l'hydrogène muonique (en rouge). La valeur de 2010 du LKB est indiquée en gris. Les deux résultats de ma thèse sont indiqués en noir : le résultat en trait plein utilise une distribution de vitesse qui dépend de la pression et le résultat en tirets ne prend pas en compte cette dépendance. L'interpolation à pression nulle diffère alors d'environ 10 kHz entre ces deux cas.

- Le terme  $\Delta^{DR}$  est défini exactement et vaut :  $32f_{2S}^{DR} - 27f_{3S}^{DR} - 5f_{1S}^{DR}$
- Nous utilisons la valeur la plus récente pour la fréquence  $1S - 2S$  [PARTHEY2011].

Le déplacement de Lamb du niveau  $1S$  peut être ainsi déterminé avec une incertitude de 37 kHz si nous prenons notre valeur  $f_{1S-3S}$  préliminaire :

$$L_{1S} = 8\,172\,737(37) \text{ kHz} \quad (5.28)$$

Cette incertitude est supérieure à l'incertitude théorique qui est de 22 kHz (due à la mesure de la distribution de charge du proton par diffusion d'électrons). Cependant cette valeur est en contradiction de  $2,4 \sigma$  avec les calculs théoriques.

Comparons maintenant notre mesure de la fréquence  $1S - 3S$  avec cette même fréquence prédite par l'électrodynamique quantique en prenant d'une part la valeur du rayon du proton préconisée par le CODATA 2010 et d'autre part celle déduite de la spectroscopie de l'hydrogène muonique. Cette comparaison est illustrée sur le schéma 5.9. La fréquence  $1S - 3S$  représentée en rouge est calculée en utilisant une valeur de la constante de Rydberg ajustée afin de retrouver, par le calcul, la valeur expérimentale de la fréquence de la transition  $1S - 2S$  [PARTHEY2011], en utilisant la valeur du rayon du proton déduite de la spectroscopie de l'hydrogène muonique [ANTOGNINI2013].

La figure 5.9 souligne bien le désaccord entre notre mesure et la valeur recommandée du CODATA 2010. Au contraire, notre mesure est en très bon accord avec la valeur du rayon du proton déduit de la spectroscopie de l'hydrogène muonique.

La distribution de charge du rayon du proton déduite de notre mesure est :

$$r_p = 0,838(14) \text{ fm} \quad (5.29)$$

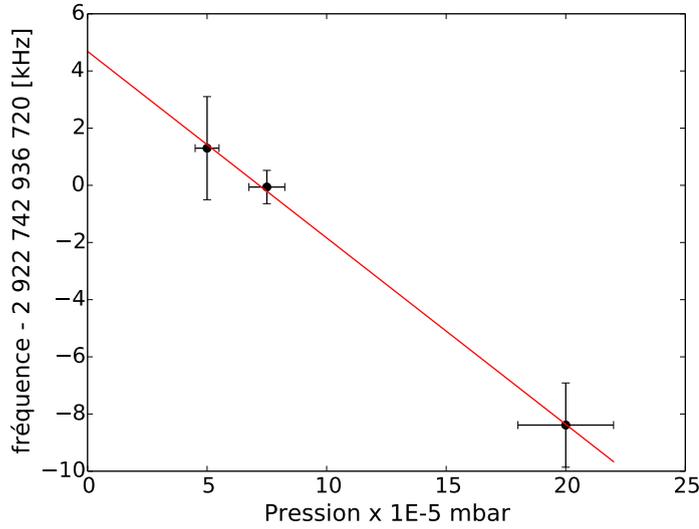


FIGURE 5.10: Fréquence atomique en fonction de la pression, sans adapter la distribution de vitesse pour chaque pression mais en utilisant la distribution de vitesse de paramètres optimaux  $v'_{opt}=0,81$  km/s et  $\sigma_{opt}=1,52$  km/s déterminés à la pression de  $8 \times 10^{-5}$  mbar. L'ordonnée à l'origine vaut 4,7 kHz et la pente vaut -65,2(3) MHz/mbar.

Finalement, la constante de Rydberg déduite de cette mesure vaut :

$$R_{\infty} = 10\,973\,731,568\,13(14) \text{ m}^{-1} \quad (5.30)$$

Cette valeur est en contradiction avec la valeur du CODATA 2010 [MOHR2012] :

$$R_{\infty} = 10\,973\,731,568\,539(55) \text{ m}^{-1} \quad (5.31)$$

### Discussion sur le déplacement collisionnel

Une très grande prudence doit être prise avec ces résultats. La simulation du déplacement collisionnel mérite notamment d'être affinée.

En effet si nous utilisons un modèle de distribution de vitesse qui ne dépend pas de la pression dans l'enceinte à vide, la valeur de la fréquence  $1S - 3S$  déduite est très différente. Sur la courbe 5.10 sont ainsi représentées les fréquences des signaux atomiques aux trois pressions suivantes :  $5 \times 10^{-5}$  mbar,  $8 \times 10^{-5}$  mbar et  $2 \times 10^{-4}$  mbar. Les signaux atomiques ont été ajustés avec une forme de raie intégrée sur les vitesses en utilisant la distribution de vitesse optimale déterminée à notre pression habituelle de  $8 \times 10^{-5}$  mbar, dont les paramètres sont énoncés à l'équation (5.25).

L'interpolation à pression nulle mène à augmenter la fréquence de la transition  $1S - 3S(F=1)$  de 4,7 kHz ce qui correspond à la nouvelle valeur de la fréquence suivante :

$$f_{1S-3S(F=1)} = 2\,922\,742\,936\,725,2(2,7) \text{ kHz} \quad (5.32)$$

Le déplacement de Lamb déduit de cette valeur est en accord avec celle du CODATA 2010 et mène à la valeur du rayon du proton suivant :

$$r_p = 0,890(14) \text{ fm} \quad (5.33)$$

J'ai représenté sur la figure 5.9 et en pointillé cette valeur du rayon du proton qui est en accord avec celle du CODATA 2010.

Il apparaît ainsi indispensable d'évaluer le déplacement collisionnel dans notre expérience, d'autant plus que l'excellente statistique des mesures permettrait de discriminer entre les deux valeurs controversées du rayon du proton.

Une approche théorique du déplacement collisionnel est assez délicate, les espèces chimiques en jeu n'étant pas clairement identifiées. Nos collègues allemands ont cependant estimé analytiquement ce déplacement en considérant des collisions uniques entre les atomes sur le niveau  $3S$  et les atomes dans l'état fondamental  $1S$ . Un tel calcul fut précisément mené par A. Matveev du laboratoire MPQ [MATVEEV2014]. Le calcul suit la logique suivante :

- le potentiel d'interaction entre les niveaux  $3S$  et  $1S$  est déterminé grâce à la théorie des perturbations et en considérant une interaction dipôle-dipôle.
- les collisions sont de faible énergie (pas d'effet de recul) et rapides (plus rapides que le temps entre deux collisions différentes). Un atome  $1S$  qui passe près du  $3S$  change simplement sa phase.
- Les sauts de phase dus aux collisions provoquent un décalage de la fréquence d'oscillation du dipole  $3S$ , qui est donc à déterminer. L'atome  $3S$  est ainsi traité comme un oscillateur avec un bruit de phase causé par les collisions.

Ce calcul donne une bonne approximation du déplacement collisionnel pour la transition  $1S - 2S$  qui a été mesuré expérimentalement. Le décalage en fréquence  $\Delta f$  à la pression  $p$  est donné par la formule suivante :

$$\Delta f = 7,76 \times 10^7 C_6^{2/5} T^{-0,7} p \quad (5.34)$$

où  $C_6$  est le coefficient d'interaction du 1er ordre dans le cadre d'un potentiel coulombien. Il vaut 177 ua pour la transition  $1S - 2S$  et est évalué à 976 ua pour la transition  $1S - 3S$ .

À 300 K, ce modèle prédit un déplacement de la fréquence  $1S - 3S$  d'environ  $-22$  MHz/mbar, et donc un décalage d'environ 1,7 kHz à  $7,5 \times 10^{-5}$  mbar. Ce déplacement rapprocherait nettement notre mesure de la fréquence  $1S - 3S$  de la valeur du CODATA. Il y a cependant dans notre jet beaucoup plus de molécules de dihydrogène que d'atomes dans le niveau  $1S$ . Ceci change grandement la nature des collisions. Les prochaines mesures sur un jet atomique froid permettront donc de confirmer ou d'infirmier ce résultat.

## 5.4 Perspectives

### Refroidissement du jet atomique

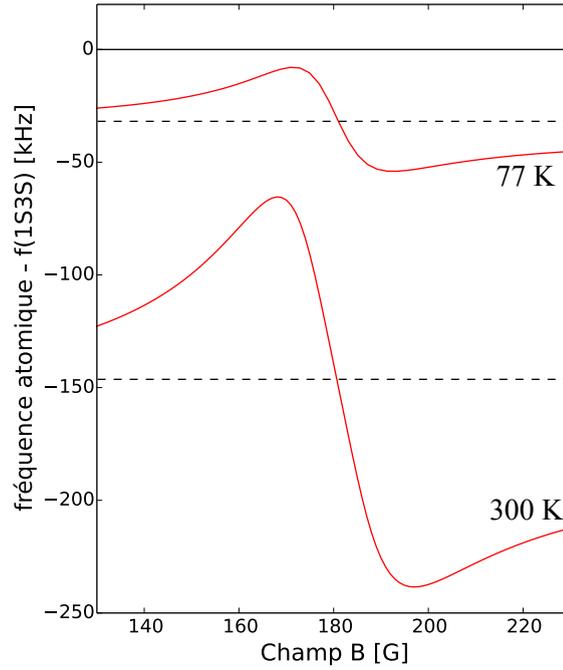


FIGURE 5.11: Évolution de la fréquence  $1S(F = 1, m_F = -1) - 3S(F = 1, m_F = -1)$  au voisinage du croisement de niveau à 181 G, à température ambiante et à la température de l'azote liquide soit 77 K. Les lignes en tirets représentent la fréquence du déplacement Doppler du second ordre aux deux différentes températures.

J'ai représenté sur la figure 5.11, l'évolution de la fréquence de la transition  $1S(F = 1, m_F = -1) - 3S(F = 1, m_F = -1)$  au voisinage du croisement de niveau à 181 G, à température ambiante et à la température de 77 K. On remarque que la forme de dispersion est bien moins marquée à la température de l'azote liquide. La distribution de vitesse utilisée sera donc bien moins critique à basse température.

Afin d'améliorer notre mesure, le refroidissement du jet atomique est en cours de réalisation. Le dispositif expérimental est représenté sur la figure 5.12. Le refroidissement du jet atomique s'effectue par thermalisation avec une buse refroidie à l'azote liquide. Pour éviter la recombinaison des atomes au niveau de la buse, le matériau idéal n'est plus le téflon mais le cuivre ou l'aluminium [WALRAVEN1982].

Nous aurions pu aussi utiliser de l'hélium liquide. Cette stratégie fut adoptée par l'équipe concurrente du MPQ à Garching pour la transition  $1S - 2S$ . Cette équipe a cependant remarqué une condensation des atomes d'hydrogène au niveau de la buse. Il est alors nécessaire de réchauffer régulièrement la buse ce qui oblige à arrêter la prise de données. Dans un premier temps, nous refroidirons donc avec de l'azote liquide.

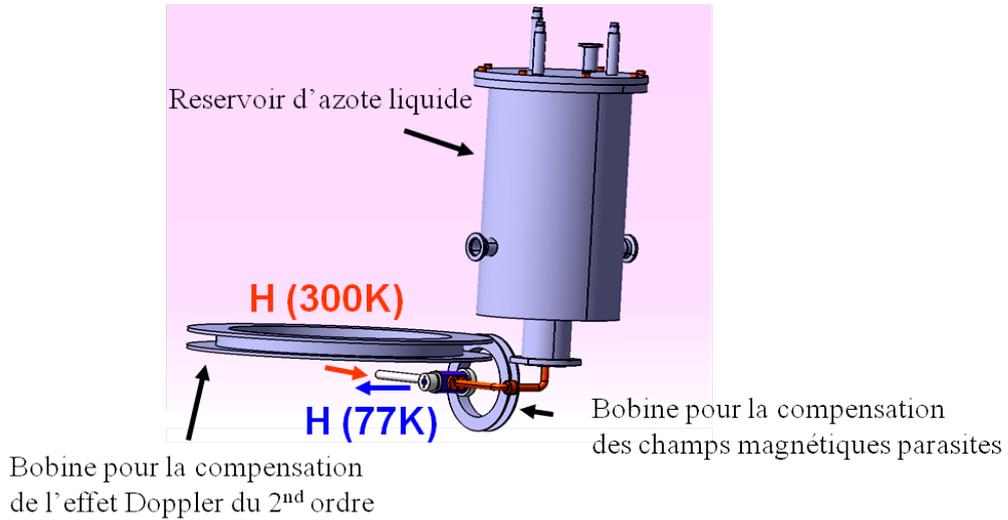


FIGURE 5.12: Dessin industriel du dispositif de refroidissement de la buse avant l'entrée des atomes d'hydrogène dans la cavité UV.

### La transition $1S - 4S$

Le prochain projet de l'équipe est de sonder la transition  $1S - 4S$  de l'hydrogène. Cette résonance n'a encore jamais été observée et présente deux principaux avantages. Premièrement la largeur de la transition est de 700 kHz et est donc plus étroite que la transition  $1S - 3S$  (1 MHz). La détermination de la fréquence centrale est donc plus aisée ce qui permet d'espérer une mesure plus précise.

Deuxièmement, les atomes excités sur le niveau  $4S$ , se désexcitent en partie sur le niveau  $3P$  dont une portion peuple à son tour le niveau métastable  $2S$ . Cette fluorescence en chaîne laisse la possibilité d'exciter une certaine proportion des atomes à partir du niveau métastable  $2S$ . Une excitation à un photon est alors possible pour mesurer la distribution de vitesse par effet Doppler. L'information sur le nombre d'atomes métastables peut aussi être utilisée pour détecter la transition.

Mais revenons à l'excitation à deux photons de la transition  $1S - 4S$ . Cette expérience nécessite une source ultra-violette à 194 nm. Le système laser actuel pourra tout à fait produire une telle source UV. Les miroirs de la cavité résonante du laser titane-saphir devront être changés pour centrer l'émission laser à 724 nm au lieu de 894 nm actuellement. Enfin le laser titane-saphir sera sommé avec le laser Verdi doublé dans la configuration actuelle en utilisant de même un cristal de BBO.

Le déplacement de Lamb pourra être déterminé par comparaison avec la transition  $1S - 2S$ . La combinaison linéaire  $14f_{1S-2S} - 12f_{1S-4S}$  permet d'éliminer les termes en  $\alpha^2/n^2$ . En utilisant les différences théoriques très bien calculées  $\Delta_2 = \Delta(L_{1S} - 8L_{2S})$  et

$\Delta_4 = \Delta(L_{1S} - 64L_{4S})$ , le déplacement de Lamb s'exprime ainsi :

$$L_{1S} = -\frac{240}{21}f_{1S-2S} + \frac{64}{7}f_{1S-4S} - \frac{30}{21}\Delta_2 + \frac{1}{7}\Delta_4 + \frac{16}{21}\Delta^{DR} \quad (5.35)$$

L'incertitude provenant de la fréquence  $f_{1S-2S}$  n'est que d'environ 114 Hz, les autres contributions étant largement négligeables. L'incertitude de la fréquence de la transition  $f_{1S-4S}$  est amplifiée d'un facteur 9 environ alors que ce facteur était de 13,5 pour la transition  $1S - 3S$ .

Ainsi, une mesure de la transition  $1S - 4S$  au kilohertz près, permettrait de déterminer encore plus précisément le déplacement de Lamb du niveau  $1S$ .

# Conclusion

Les travaux de ma thèse se divisent en une partie expérimentale et une partie analyse des résultats. La partie expérimentale se divise en deux étapes :

La première étape fut la réalisation d'une source laser continue et fiable à 205 nm. Le protocole de somme de fréquences mis en place dans ce cadre de cette thèse, permit la production d'un faisceau ultra-violet d'une puissance de 15 mW soit 15 fois plus puissant que les précédentes réalisations. Ce faisceau à 205 nm s'est avéré très fiable avec une puissance reproductible jour après jour et ce durant les nombreux mois d'acquisition de données. Cette étape fut cruciale pour l'obtention de signaux expérimentaux avec de très bon rapport signal à bruit (environ 170), rendant ainsi possible une spectroscopie de haute précision de la transition  $1S - 3S$ .

La deuxième étape de mon projet de thèse fut de mesurer de façon absolue les fréquences des lasers utilisés pour la somme de fréquences. Le défi était de mesurer de façon continue et simultanée des fréquences situées de part et d'autre du spectre délivré par notre peigne de fréquences : dans le vert et dans l'infra-rouge. Les progrès technologiques effectués sur les fibres à cristal photonique ainsi qu'une étroite collaboration avec les ingénieurs de l'entreprise MenloSystems, permirent de mener à bien cette mesure de fréquence.

À ce stade, pour chaque valeur d'amplitude de la fluorescence détectée, nous enregistrons les fréquences absolues du laser titane-saphir et du laser Verdi, moyennées sur la seconde d'acquisition. Nous avons pu alors effectuer une analyse fine des résultats expérimentaux. La donnée critique dans l'ajustement des signaux expérimentaux est la distribution de vitesse utilisée. Celle-ci a été déterminée à la pression de  $8 \times 10^{-5}$  mbar et est caractérisée par les paramètres  $v'_{opt}=0,81$  km/s et  $\sigma_{opt}=1,52$  km/s.

Deux résultats ressortent alors de l'analyse si l'on considère que la distribution de vitesse dépend de la pression du jet via le paramètre  $v'$  ou qu'elle est indépendante de la pression. Dans le premier cas, la fréquence centroïde de la transition  $1S - 3S$  vaut :

$$f_{1S-3S} = 2\,922\,743\,278\,663,9(2,7) \text{ kHz} \quad (5.36)$$

On déduit alors une valeur du rayon de proton :

$$r_p = 0,838(14) \text{ fm} \quad (5.37)$$

Cette valeur est en désaccord de  $2,4 \sigma$  avec la valeur préconisée par le CODATA 2010. Cette valeur est cependant en accord avec la valeur déduite de la spectroscopie de l'hydrogène muonique ( $r_p = 0,84037(39) \text{ fm}$ ).

Si une distribution de vitesse indépendante de la pression est utilisée, la fréquence centroïde de la transition  $1S - 3S$  vaut :

$$f_{1S-3S} = 2\,922\,743\,278\,674,3(2,7) \text{ kHz} \quad (5.38)$$

On déduit le rayon de la distribution de charge du proton suivant :

$$r_p = 0,890(14) \text{ fm} \quad (5.39)$$

Cette valeur est en accord avec celle du CODATA 2010 ( $r_p = 0,8768(69) \text{ fm}$ ).

Il semble cependant cohérent que la distribution des vitesses dans le jet atomique dépende de la pression du milieu dans lequel il évolue. Cette dépendance en pression n'est cependant pas clairement établie : l'ajustement du paramètre  $v'$  entre dans le cadre d'une approche simplifiée. Les travaux de ma thèse pointent ainsi l'importance de définir la distribution de vitesse aux pressions extrémales pour déterminer sans ambiguïté l'interpolation de la fréquence  $1S - 3S$  à pression nulle. La méthode de détermination de la distribution de vitesse, mise en place à la pression de  $8 \times 10^{-5} \text{ mbar}$ , devra ainsi être réitérée à haute et basse pression. Ceci implique l'acquisition des signaux de résonance à différents champs magnétiques afin d'exploiter les déplacements de fréquence causés par l'effet Stark motionnel.

Une autre stratégie est de refroidir le jet atomique par thermalisation avec une buse refroidie à la température de l'azote liquide. Cette modification de l'enceinte à vide est en cours de réalisation et permettra d'effectuer des mesures de fréquence de transition moins sensibles à la distribution de vitesse utilisée.

Finalement, la faible incertitude statistique de  $2,1 \text{ kHz}$  atteinte par notre mesure permettra à terme de discriminer entre la valeur du rayon du proton déduit de la spectroscopie de l'hydrogène muonique et celle déduite des expériences de diffusion et des précédentes mesures de transition dans l'hydrogène.





## Annexe A

# Couplages Stark

L'expression de l'hamiltonien Stark a été donnée au chapitre 4 :

$$H_{Stark} = q\mathbf{E}\cdot\mathbf{r} \quad (\text{A.1})$$

Le calcul de ses éléments de matrice est classique. Ils sont de la forme  $W = qERA$  où  $R$  est la partie radiale qui vaut  $-9\sqrt{2}a_0$  pour les couplages entre niveaux 3S et 3P et  $A$  la partie angulaire qui dépend de la base choisie. Le tableau suivant donne les éléments de matrice  $W$  en MHz dans la base  $|F, m_F\rangle$  pour un champ électrique de 1 V/cm.

niveau	$3S_{1/2} 1, 1\rangle$	$3S_{1/2} 1, 0\rangle$	$3S_{1/2} 0, 0\rangle$	$3S_{1/2} 1, -1\rangle$
$3P_{3/2} 2, 2\rangle$	6,649	0	0	0
$3P_{3/2} 2, 1\rangle$	0	4,701	0	0
$3P_{3/2} 1, 1\rangle$	0	2,714	5,429	0
$3P_{3/2} 2, 0\rangle$	-2,714	0	0	2,714
$3P_{3/2} 1, 0\rangle$	2,714	0	0	2,714
$3P_{3/2} 2, -1\rangle$	0	-4,701	0	0
$3P_{3/2} 1, -1\rangle$	0	2,714	-5,429	0
$3P_{3/2} 2, -2\rangle$	0	0	0	-6,649
$3P_{1/2} 1, 1\rangle$	0	-3,839	3,839	0
$3P_{1/2} 1, 0\rangle$	-3,839	0	0	-3,839
$3P_{1/2} 0, 0\rangle$	3,839	0	0	-3,839
$3P_{1/2} 1, -1\rangle$	0	-3,839	-3,839	0

On s'est limité ici à un champ électrique transverse, dû à l'effet Stark motionnel, de sorte qu'on a pour règle de sélection  $|\Delta m_F| = 1$ .

La matrice de passage  $P_B$ , définie au paragraphe 4.2 du chapitre 4, permet de réécrire l'hamiltonien Stark dans la base  $B$ , base des niveaux modifiés propre à chaque champ magnétique. Appelons  $V_{i,j}$ , les coefficients de l'hamiltonien Stark dans cette base, où  $i$

est l'indice sur les niveaux  $3S$  et  $j$  sur les niveaux  $3P$ . Un calcul simple du déplacement Stark  $\delta_{Stark}$  du niveau  $3S$  indicé  $i$  peut d'exprimer de la façon suivante :

$$\delta_{Stark}^{(i)} = - \sum_j \frac{\text{sign}(\delta) V_{i,j}^2}{(\delta^2 + (\Gamma_P - \Gamma_S)^2)^{1/2}} \quad (\text{A.2})$$

où  $\delta = E_Z(j) - E_Z(i)$  correspond au décalage Zeeman entre les niveaux  $i$  et  $j$  et  $\Gamma_S$  et  $\Gamma_P$  sont les largeurs des niveaux  $S$  et  $P$  qui valent respectivement 1,0049 MHz et 30,192 MHz.

Les déplacements Stark  $\delta_{Stark}$  des niveaux  $3S$  sont donnés ci-dessous en kHz pour une vitesse de 3 km/s et pour des champs magnétiques de 170,7 G et 190,7 G. Ces valeurs de champs sont les moyennes des couples de valeurs mesurées dans l'expérience de part et d'autre de l'anticroisement  $3S_{1/2} - 3P_{1/2}$ . Nous ne donnons pas ici tous les chiffres significatifs utilisés dans le programme de calcul de forme de raie.

niveau	170,7 G	190,7 G
$3S_{1/2} 0, 0\rangle$	-215,78	-152,24
$3S_{1/2} 1, 0\rangle$	+8,04	+9,21
$3S_{1/2} 1, 1\rangle$	+7,33	+8,41
$3S_{1/2} 1, -1\rangle$	+211,30	-267,08

Les niveaux S indiqués ici sont un simple label : ce sont les niveaux vers lesquels tendent les niveaux S quand le champ magnétique tend vers 0. En réalité, les niveaux S de  $m_F = 0$  sont mélangés entre eux par le champ magnétique, et les niveaux S sont mélangés aux niveaux P par l'effet Stark.

**Annexe B**

**Article source UV**



Contents lists available at ScienceDirect

## Optics Communications

journal homepage: [www.elsevier.com/locate/optcom](http://www.elsevier.com/locate/optcom)

## Ultraviolet continuous-wave laser source at 205 nm for hydrogen spectroscopy



Sandrine Galtier\*, François Nez, Lucile Julien, François Biraben

Laboratoire Kastler Brossel, Ecole Normale Supérieure, Université P. et M. Curie, CNRS, UPMC, Case 74, 4 place Jussieu, 75252 Paris Cedex 05, France

## ARTICLE INFO

## Article history:

Received 12 February 2014

Accepted 3 March 2014

Available online 21 March 2014

## Keywords:

Ultraviolet source

Nonlinear optics

Laser spectroscopy

Metrology

## ABSTRACT

This paper reports on the generation of 15 mW of continuous narrow-band laser source at 205 nm. The infra-red light source provided by a Titanium-Sapphire (TiSa) laser is mixed with the fourth harmonic of a Nd:YVO<sub>4</sub> laser by the use of a  $\beta$ -barium borate (BBO) non-linear crystal. This highly reliable and powerful ultraviolet (UV) source is an ideal tool for the 1S–3S hydrogen spectroscopy. Moreover, the wide tunability of the TiSa laser combined with this experimental set up makes the generation of bright deep ultra-violet (D-UV) sources possible. In particular, we plan to produce a 194 nm continuous light beam which is necessary to perform the 1S–4S transition in hydrogen.

© 2014 Elsevier B.V. All rights reserved.

### 1. Introduction

The progress of spectroscopy has always been closely related to the development and availability of narrow tunable frequency sources. Nowadays one of the challenges in high resolution spectroscopy is the realization of such sources in UV and D-UV domain. With such sources it is now possible to look for the time variation of fundamental constants [1,2], to develop ion clocks [2], to test complex molecular calculations [1,3] as well as Quantum ElectroDynamics (QED) calculations of bound states systems and to measure the values of fundamental constants [4,5]. In particular in our group, the 205 nm light is used since 1994 to excite the 1S–3S Doppler-free two-photon transition in atomic hydrogen. Our experiment leads to a determination of the 1S Lamb shift [6] and contributes to establish the proton charge radius value [7]. More recently this transition has been also observed with a ps-laser source at 205 nm [8]. Increasing demand for tools to inspect photolithography processes in semiconductor industry has also stimulated the development of continuous wave (CW) lasers especially around 193.4 nm [9].

The UV light can be generated either with second harmonic generation (SHG) or with sum frequency generation (SFG). Pulsed lasers are widely used to generate bright UV source as they provide high useful power and therefore enhances non-linear process.

However pulsed lasers add systematic frequency shifts which are notoriously hard to eliminate and therefore can limit the

achievable precision on high resolution spectroscopic experiments. Most of the time, in such experiments, a stabilized CW laser seeds the oscillator cavity of the pulsed laser system, see for example [10]. The frequency of the pulsed laser at the output of the cavity is then shifted with respect to the frequency of the CW-laser because of the time variation of the lasing medium refraction index, induced during the pulsed pumping and lasing process [11]. In addition, other shifts, due to phase distortions in non-linear mixing resulting from deviation from optimum phase matching or to a minor extent from Kerr effects in non-linear crystals, can add to the frequency chirp [11,12]. All these effects increase the uncertainty budget on spectroscopic measurements. Moreover SFG appears much more challenging with pulsed lasers as the required temporal and spatial overlap of the two incoming pulses add further experimental difficulties that may compromise performance.

In the CW regime, light at 205 nm can be generated from a TiSa laser at 820 nm thanks to a two stage frequency doubling in Lithium triborate (LBO) and in BBO crystals [13]. Previously in our group, a maximum of 1 mW of 205 nm light had been obtained with this process [6]. Since 205 nm is the shortest wavelength which can be generated by SHG in BBO, this light source was quite challenging to run. To get rid of stray effects in the crystal, the 205 nm produced light was not a continuous wave but quasi-continuous one, which complicated frequency analysis of the spectroscopic work [14].

In the last few years, the emergence of new crystals – potassium fluoro-beryllo-borate (KBBF) and rubidium fluoro-beryllo-borate (RBBF) – has enabled direct continuous SHG at wavelengths below 200 nm. Very recently, a 1.3 mW CW light at 191 nm has been reported [15]. This possibility is very attractive however the realization of such crystals is still under development

\* Corresponding author.

E-mail address: [galtier@kb.upmc.fr](mailto:galtier@kb.upmc.fr) (S. Galtier).

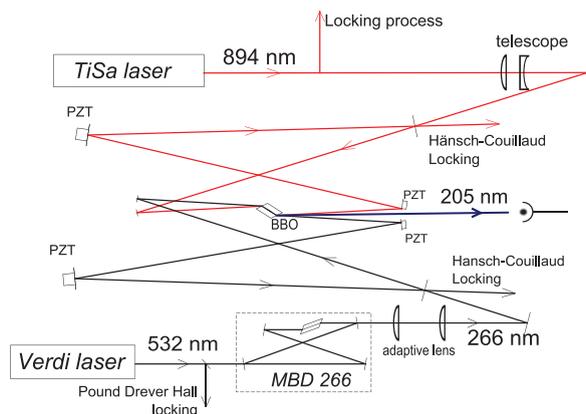


Fig. 1. Overall scheme of the sum frequency apparatus.

and the increase of the achieved output power is partially due to higher purity crystal [16]. Therefore we chose to realize our 205 nm source from SFG in BBO where the non-linear efficiency coefficient remains significantly higher.

In this paper we report the realization of a powerful reliable tunable CW narrow-band light source at 205 nm obtained by SFG in BBO. The 266 nm doubling light of a doubled frequency Nd:YVO<sub>4</sub> laser at 532 nm is mixed with the 894 nm radiation from a home made TiSa laser. Thanks to the tunability of the TiSa laser, our set-up should enable us to reach a wavelength span of approximately 20 nm.

## 2. The sum-frequency set-up

Following the design of [17] we have developed two separate ring cavities whose optical paths overlap in the Brewster-cut BBO crystal. An overview of the apparatus is shown in Fig. 1.

The BBO crystal is a negative uni-axial crystal transparent up to 189 nm. The effective non-linear coefficient is given by

$$d_{\text{eff}}(o+o \rightarrow e) = d_{31} \sin \theta \mp d_{22} \cos \theta \quad (1)$$

where  $d_{31}$  and  $d_{22}$  are the relevant coefficients of the susceptibility tensor of the BBO crystal.

To produce radiation at 205 nm with two successive frequency doubling stages, the BBO crystal must be used at the limit of its phase-matching angle ( $\theta=86.5^\circ$ ). Since  $d_{31}/d_{22} \ll 1$ , the effective non-linear coefficient is very low, about 0.26 pm/V, which results in low conversion efficiency. On the other hand, in the present experiment, as we use a type-I sum frequency process, the phase matching angle for the frequency sum ( $1/266+1/894$ ) is  $\theta=58.5^\circ$ . The resulting  $d_{\text{eff}}$  is 1.7 pm/V which is much higher than for SHG (Fig. 2). First of all, the UV radiation at 266 nm is obtained by doubling a 532 nm green laser, SFG of a Nd:YVO<sub>4</sub> laser (Verdi 6 from Coherent company). The length of the green laser cavity is servo locked to a Fabry Perot cavity (finesse of 313) thanks to a Pound–Drever–Hall scheme. The Verdi light is frequency doubled using an off-the-shelf ring cavity (MBD 266 from Coherent company) in which a  $3 \times 3 \times 4 \text{ mm}^3$  Brewster-cut BBO crystal is placed and heated at approximately  $50^\circ\text{C}$  and temperature stabilized. The MBD 266 cavity is frequency locked to the Verdi 6 using a Hänsch–Couillaud locking scheme [18]. We chose to inject 20% of the incident light at 532 nm in the ring cavity to prevent any damage on the BBO crystal. Consequently we obtain about 260 mW at 266 nm. A cylindrical lens collimates the frequency doubled light in the horizontal plane, to produce a circular beam section approximately two meters away from the MBD-266 head.

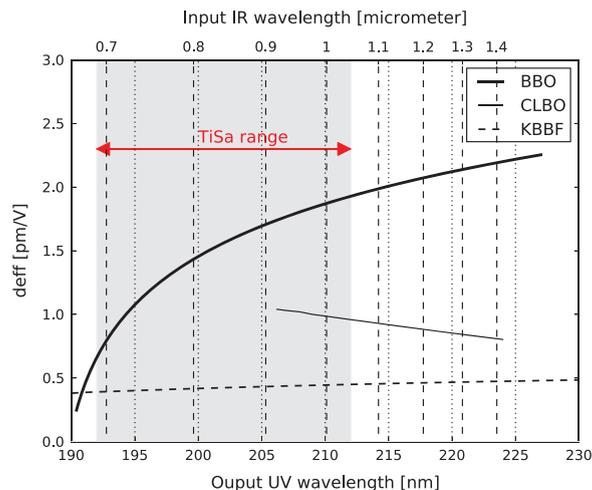


Fig. 2. Sum frequency conversion efficiency parameter for the sum mixing of a TiSa laser with a frequency quadrupled neodymium laser at 266 nm for BBO, CLBO and KBBF crystals. Curves are calculated with the SNLO code [20]. The wavelength range achievable with a TiSa laser is indicated.

Moreover we use two additional convex lenses to mode-match the beam to the sum cavity.

The titanium-sapphire laser is a home-made laser [19], the mirrors of its ring cavity are coated for maximum reflectivity at 894 nm in order to obtain the highest possible gain at this wavelength. We generate 1.5 W at 894 nm pumping with 13.5 W from a Nd:YVO<sub>4</sub> laser (Millennia XV from Spectra Physics company). The length of the ring-cavity is servo locked with a Pound–Drever–Hall process. A telescope is used to mode-match the 894 nm beam to the sum cavity. The long term stability of the TiSa laser and the Verdi laser is guaranteed by the use of a very stable Fabry–Perot reference cavity. This locking system has been described in Ref. [19] for the TiSa laser and is similar for the Verdi laser.

Because of their different wavelengths, the two incoming laser beams have a different refraction angle which makes this interlock “bow-tie” configuration possible (difference of  $6.2^\circ$ ). The two ring cavities have the same build: it consists of two 300 mm radius of curvature mirrors and two flat mirrors. The two cavities are astigmatically compensated and the round trip length is about 1.8 m for both cavities. A  $4 \times 4 \times 5.75 \text{ mm}^3$  BBO crystal is placed at the minimum waist of the cavity, between the two spherical mirrors as illustrated in Fig. 1. The crystal is Brewster cut for the infra-red radiation in order to optimize the 894 nm circulating light and add losses for the 266 nm cavity. Indeed, intense UV light may damage the crystal or at the very least heat it. Since the indices of refraction are temperature dependent, a thermal lens can be created in the crystal which changes the mode matching and decreases the circulating beam intensity. The crystal mounting is then heated up to  $40^\circ\text{C}$  with a Peltier module and its temperature is stabilized. The length of those two cavities is then frequency locked to the respective laser sources by monitoring the polarization reflected by their respective input mirror.

The 266 nm enhancement cavity includes a 6% transmitting input coupler. 66% of the incoming light is injected inside the cavity, due to non-optimized mode-matching and the 20% vertically polarized light used for the Hänsch–Couillaud locking scheme. These cavity losses are estimated at 3.5% and mainly caused by the non-Brewster cut crystal at 266 nm.

Initially, the power enhancement of the empty cavity was approximately 19 and decreased to 13 when the BBO crystal,

acting as a polariser, was positioned inside the cavity. The circulating power inside the cavity was 1.7 W for an incident fundamental power of 135 mW. After months of use, we increased the incident power up to 260 mW, the power enhancement decreased to 12 mainly due to mirror coating deteriorations. Eventually we obtain a circulating power of 2.5 W at 266 nm.

The 894-nm enhancement cavity includes a 2.3% transmitting input coupler. We inject 85.2% of the incoming IR light inside the cavity and we calculated a round-trip loss of only 0.5%. The H<sub>2</sub>O molecules appeared to absorb around 894 nm [21]. The sum frequency apparatus is thus placed under a flow of dry air which boosted the infrared cavity enhancement factor from 60 up to 100, corresponding to about 100 W of circulating power. The circulating power of both radiations is continuously deduced from the leaked power from the first concave mirror, before the BBO crystal.

The 205 nm radiation generated forms a 1.5° angle with the 266 nm light beam. This adds yet another constraint to the geometry of the sum design. Finally, the out-coming light beam experiences an intensity distribution that drifts away from its wave vector, well known as the walk-off angle. Consequently, at the exit of the crystal, the measured waists of the UV light in the horizontal and vertical directions are respectively 26 μm and 154 μm.

### 3. Conversion efficiency

The conversion efficiency  $\alpha_{eff}$  for SFG is defined as  $\alpha_{eff} = P_3/(P_1^{(cav)}P_2^{(cav)})$  where the index 1, 2 and 3 corresponds to the IR, the 266 nm and the 205 nm radiations respectively. Following the notation of Boyd and Kleinman in Ref. [22], the conversion efficiency can be written as

$$\alpha_{eff} = \left( \frac{4Klk_0}{\pi} h_m(B, \xi) \frac{(1-a^2)(1-\gamma^2)}{(1+a\gamma)} \right) / n \quad (2)$$

with

$$K = \omega_3^2 d_{eff}^2 / (2\epsilon_0 c^3 n_1 n_2 n_3)$$

The value of the function  $h_m(B, \xi)$  is proportional to the SFG power for optimum phase-matching angle and depends on the focusing parameter  $\xi$  and the doubled-refraction parameter  $B$ . For the SFG case, the authors introduced a mean wave with wave number  $k_0 = n_0 \omega_0 / c$  where  $\omega_0$  is the mean frequency  $\omega_0 = (\omega_1 + \omega_2) / 2$ , as well as the dimensionless coefficients:  $a = (n_1 - n_2) / (n_1 + n_2)$  and  $\gamma = (\omega_1 - \omega_2) / (\omega_1 + \omega_2)$ . Finally, the denominator  $n$  must be introduced to take into account the elliptical behavior of the incoming beams in the BBO crystal due to its Brewster window [23]. With our experimental parameters we estimate the function  $h_m(B, \xi)$  at 0.02. Therefore we can expect to achieve a conversion efficiency  $\alpha_{eff}$  of approximately  $1 \times 10^{-4} \text{ W}^{-1}$ .

Fig. 3 represents the 205 nm radiation power measured two meters from the BBO crystal as a function of the intra-cavity 266 nm light power for a constant IR intra-cavity power. We measured an efficiency factor  $\alpha_{eff}$  of  $6.12 \times 10^{-5} \text{ W}^{-1}$ . Taking into account the 30% Fresnel losses at the exit face of the Brewster cut crystal and the two UV mirrors losses before the UV detection, we can evaluate an effective efficiency factor of  $9 \times 10^{-5} \text{ W}^{-1}$  which is fully consistent with the theoretical estimation.

As shown in Fig. 4, we also observe a linear regime for the 205 nm power versus the TiSa light beam power which agrees with a weakly depleted pumps approximation [22] and negligible thermal effects. Therefore, we can expect to generate even more UV power by increasing the pumps' power on the two original lasers. No significant power degradation nor thermal effects have been observed over hundreds of hours of operation which makes

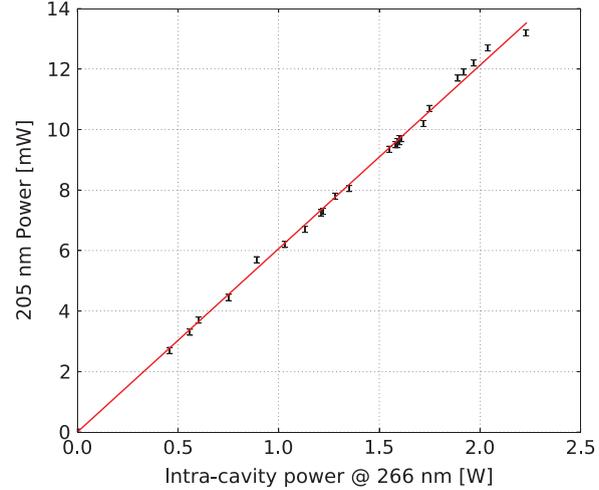


Fig. 3. Power of 205 nm radiation measured by the detector two meters from the BBO crystal as a function of the intra-cavity power of 266 nm (varied by changing the incoming power into the cavity while leaving the other pump fixed). The intra-cavity power of the TiSa laser was approximately 100 W.

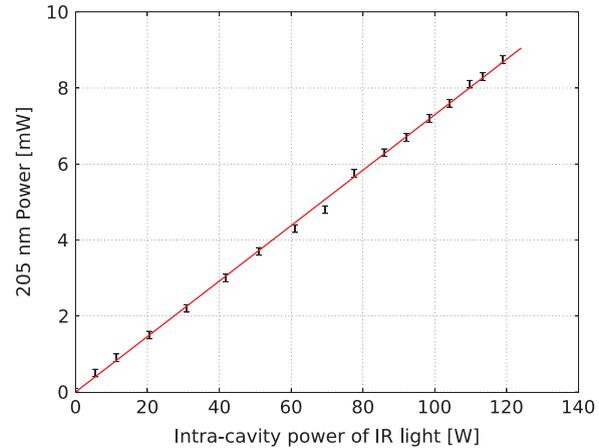


Fig. 4. Evolution of the 205 nm wavelength radiation versus IR power. The intra-cavity power of the 266 nm light beam power is roughly 1.5 W.

this system very reliable: more than 10 mW is reproducible day-to-day.

As the TiSa laser has a linewidth of a few kHz with an integration time of 0.3 ms, and the green laser is stabilized to less than 100 kHz. We can generate a spectrally narrowed UV radiation with a bandwidth in the order of 200 kHz.

### 4. Hydrogen spectroscopy

This stable and narrow bandwidth 205 nm source is the perfect tool to perform the Doppler-free two-photon spectroscopy of the 1S–3S transition in atomic hydrogen. For this purpose, the UV light is mode-matched to a low finesse cavity placed in a vacuum chamber, where an atomic hydrogen beam circulates. The overall apparatus is described in Ref. [4]. We observe the fluorescence from 3S level to 2P level at 656 nm thanks to a photomultiplier. We record the transition by scanning the frequency of the TiSa laser using an acousto-optic modulator as explained in Ref. [4]. In Fig. 5 the resonance signal obtained versus the radio-frequency

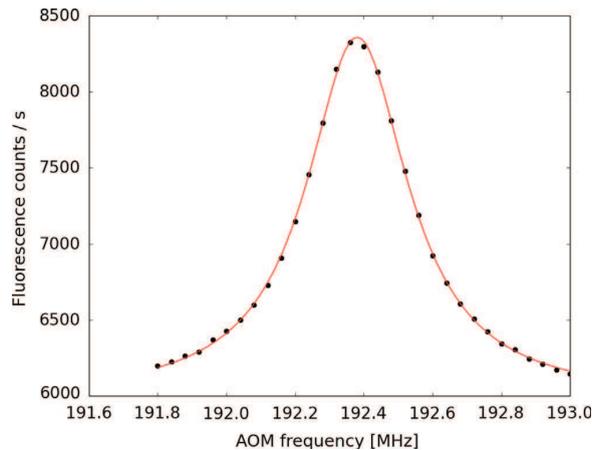


Fig. 5. 1S–3S resonance in hydrogen. Here is represented the fluorescence decay in the 2P level versus the frequency of the acousto-optic modulator (AOM) scanning the TiSa laser. Integration over 3 h and 30 min of recording.

of the acousto-optic modulator is represented. Because of the development of femtosecond frequency combs, measuring simultaneously the absolute frequencies of the two input waves is no longer an issue, therefore SFG can be used in high resolution spectroscopy. Moreover the accuracy of SFG and SHG process with CW-light has been tested to be better than  $10^{-18}$  [24,25].

In a second step, we plan to generate approximately 5 mW of 194 nm radiation with the same set-up. The generation of bright sources at this wavelength has been widely reported [9,17,26]. Besides industrial application in photolithography processes, a stable source at this wavelength can be used to excite the 1S–4S Doppler-free two-photon transition in hydrogen.

## 5. Conclusion

We have reported the generation of 15 mW pure continuous-wave and line-narrowed light at 205 nm which is 10 times more than any previously reported powers. The large gain of a TiSa laser ensures a wide tunability of this UV source. Finally it offers a

sturdy UV source for high precision spectroscopy. We plan to use the same apparatus to probe the 1S–4S transition in hydrogen which has never been observed yet.

## Acknowledgment

The authors thank the Labex First-TF and l'Agence Nationale de la Recherche (ANR) for their financial support to this experiment (PROCADIS Projet no. ANR-2010-BLANC: 041501).

## References

- [1] S. Hannemann, E.J. Salumbides, S. Witte, R.T. Zinkstok, E.-J. van Duijn, K.S.E. Eikema, W. Ubachs, *Phys. Rev. A* 74 (2006) 012505.
- [2] T. Rosenband, et al., *Science* 319 (2008) 1808.
- [3] J. Liu, E.J. Salumbides, U. Hollenstein, J.C.J. Koelemeij, K.S.E. Eikema, W. Ubachs, F. Merkt, *J. Chem. Phys.* 130 (2009) 174306.
- [4] O. Arnoult, F. Nez, L. Julien, F. Biraben, *Eur. Phys. J. D* 60 (2010) 243.
- [5] C.G. Parthey, et al., *Phys. Rev. Lett.* 107 (2011) 203001.
- [6] S. Bourzeix, B. de Beauvoir, F. Nez, F. de Tomasi, L. Julien, F. Biraben, *Opt. Commun.* 133 (1997) 239.
- [7] A. Antognini, et al., *Science* 339 (2013) 417.
- [8] E. Peters, D.C. Yost, A. Matveev, T. Hänsch, T. Udem, *Ann. Phys. (Berlin)* 525 (2013) L29–34.
- [9] J. Sakuma, K. Moriizumi, H. Kusunose, *Opt. Express* 19 (2011) 15020.
- [10] S. Hannemann, E.J. Salumbides, S. Witte, R.T. Zinkstok, E.J. van Duijn, K.S.E. Eikema, W. Ubachs, *Phys. Rev. A* 74 (2006) 062514.
- [11] S. Gangopadhyay, N. Melikechi, E.E. Eyler, *J. Opt. Soc. Am. B* 11 (1994) 231.
- [12] R. DeSalvo, D.J. Hagan, M. Sheik-Bahae, G. Stegeman, E.W. Van Stryland, H. Vanherzeele, *Opt. Lett.* 17 (1992) 28.
- [13] K. Kato, *IEEE J. Quantum Electron.* 22 (1986) 1013.
- [14] G. Hagel, F. Nez, F. Biraben, *Appl. Opt.* 41 (2002) 7702.
- [15] M. Scholz, D. Opalevs, P. Leisching, W. Kaenders, G. Wang, X. Wang, R. Li, C. Chen, *Opt. Express* 20 (2012) 18659.
- [16] M. Scholz, D. Opalevs, P. Leisching, W. Kaenders, G. Wang, X. Wang, R. Li, C. Chen, *Appl. Phys. Lett.* 103 (2013) 051114.
- [17] D.J. Berkeland, F.C. Cruz, J.C. Bergquist, *Appl. Opt.* 36 (1997) 4159.
- [18] T.W. Hänsch, B. Couillaud, *Opt. Commun.* 35 (1980) 441.
- [19] S. Bourzeix, M.D. Plimmer, F. Nez, L. Julien, F. Biraben, *Opt. Commun.* 99 (1993) 89.
- [20] SNLO nonlinear optics code available from A. V. Smith, AS-Photonics, Albuquerque, NM (1997).
- [21] Hitran database, 2012. (<http://hitran.iao.ru/gasmixture/spectr/>).
- [22] G.D. Boyd, D.A. Kleinman, *J. Appl. Phys.* 39 (1968) 3597.
- [23] R.C. Eckardt, H. Masuda, Y.X. Fan, R.L. Byer, *IEEE J. Quantum Electron.* 26 (1990) 922.
- [24] S. Jörn, H. Schnatz, C. Tamm, H.R. Telle, *Phys. Rev. Lett.* 88 (2002) 073601.
- [25] M. Zimmermann, C. Gohle, R. Holzwarth, T. Udem, T.W. Hänsch, *Opt. Lett.* 29 (2004) 310.
- [26] J. Sakuma, Y. Asakawa, T. Sumiyoshi, H. Sekita, *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.* 10 (2004) 1244.



# Bibliographie

- [ACEF1993] O. Acef, J. Zondy, M. Abed, D. Rovera, A. Gérard, A. Clairon, P. Laurent, Y. Millerieux, and P. Juncar. *A CO<sub>2</sub> to visible optical frequency synthesis chain : accurate measurement of the 473 THz HeNe/I<sub>2</sub> laser.* *Optics Communications* **97** (1993) 29 – 34.
- [ANTOIGNINI2013] A. Antognini, F. Nez, and K. Schuhmann *et al.* *Proton structure from the measurement of 2S-2P transition frequencies of muonic hydrogen.* (2013) 417–420.
- [ARNOULT2006] O. Arnoult (2006). *Utilisation d'un peigne de fréquences optiques pour la spectroscopie de l'atome d'hydrogène* . PhD thesis, Université Pierre et Marie Curie.
- [ARNOULT2010] O. Arnoult, F. Nez, L. Julien, and F. Biraben. *Optical frequency measurement of the 1S–3S two-photon transition in hydrogen.* *The European Physical Journal D* **60** (2010) 243–256.
- [BARKER1955] W. A. Barker and F. N. Glover. *Reduction of relativistic two-particle wave equations to approximate forms. III.* *Phys. Rev.* **99** (1955) 317–324.
- [BARR1986] J. R. M. Barr, J. M. Girkin, J. M. Tolchard, and A. I. Ferguson. *Interferometric measurement of the 1S<sub>1/2</sub>-2S<sub>1/2</sub> transition frequency in atomic hydrogen.* *Phys. Rev. Lett.* **56** (1986) 580–583.
- [BERKELAND1997] D. J. Berkeland, F. C. Cruz, and J. C. Bergquist. *Sum-frequency generation of continuous-wave light at 194 nm.* *Applied Optics* **36** (1997) 4159.
- [BERKELAND1995] D. J. Berkeland, E. A. Hinds, and M. G. Boshier. *Precise optical measurement of Lamb shifts in atomic hydrogen.* *Phys. Rev. Lett.* **75** (1995) 2470–2473.
- [BERNAUER2010] J. C. Bernauer, P. Achenbach, and C. Ayerbe Gayoso *et al.* *High-precision determination of the electric and magnetic form factors of the proton.* *Phys. Rev. Lett.* **105** (2010) 242001.
- [BETHE1947] H. A. Bethe. *The electromagnetic shift of energy levels.* *Phys. Rev.* **72** (1947) 339–341.

- [BEYER2013] A. Beyer, J. Alnis, K. Khabarova, A. Matveev, C. G. Parthey, D. C. Yost, R. Pohl, T. Udem, T. W. Hänsch, and N. Kolachevsky. *Precision spectroscopy of the  $2S - 4P$  transition in atomic hydrogen on a cryogenic beam of optically excited  $2S$  atoms*. *Annalen der Physik* **525** (2013) 671–679.
- [BIRABEN1979] F. Biraben, M. Bassini, and B. Cagnac. *Line-shapes in Doppler-free two-photon spectroscopy. The effect of finite transit time*. *J. Phys. France* **40** (1979) .
- [BIRABEN1986] F. Biraben, J. C. Garreau, and L. Julien. *Determination of the Rydberg constant by Doppler-free two-photon spectroscopy of hydrogen Rydberg states*. *Europhys. Lett.* **2** (1986) 925.
- [BIRABEN1989] F. Biraben, J. C. Garreau, L. Julien, and M. Allegrini. *New measurement of the Rydberg constant by two-photon spectroscopy of hydrogen Rydberg states*. *Phys. Rev. Lett.* **62** (1989) 621–624.
- [BIRABEN1991] F. Biraben, L. Julien, J. Plon, and F. Nez. *Compensation of the second-order Doppler effect in two-photon spectroscopy of atomic hydrogen*. *Europhys. Lett.* **15** **15** (1991) .
- [BLACK2001] D. E. Black. *An introduction to Pound-Drever-Hall laser frequency stabilization*. *Am. J. Phys.* **69** (2001) 79.
- [BORDÉ1970] C. Bordé. *C.R. Acad. Sc. Paris* **271B** (1970) 371.
- [BOUCHENDIRA2011] R. Bouchendira, P. Cladé, S. Guellati-Khélifa, F. Nez, and F. Biraben. *New determination of the fine structure constant and test of the quantum electrodynamics*. *Phys. Rev. Lett.* **106** (2011) 080801.
- [BOURZEIX1995] S. Bourzeix (1995). *Laser continu à 205nm, application à la mesure du déplacement de Lamb dans l'hydrogène*. PhD thesis, Université Pierre et Marie Curie.
- [BOURZEIX1996] S. Bourzeix, B. de Beauvoir, F. Nez, M. D. Plimmer, F. de Tomasi, L. Julien, F. Biraben, and D. N. Stacey. *High resolution spectroscopy of the hydrogen atom : determination of the  $1S$  Lamb shift*. *Phys. Rev. Lett.* **76** (1996) 384–387.
- [BOURZEIX1993] S. Bourzeix, M. D. Plimmer, F. Nez, L. Julien, and F. Biraben. *Efficient frequency doubling of a continuous wave titanium : sapphire laser in an external enhancement cavity*. *Opt. Commun.* **99** (1993) 89.
- [BOYD1965] G. D. Boyd, A. Ashkin, J. M. Dziedzic, and D. A. Kleinman. *Second-harmonic generation of light with double refraction*. *Phys. Rev.* **137** (1965) A1305–A1320.

- [BOYD1968] G. D. Boyd and D. A. Kleinman. *Parametric interaction of focused Gaussian light beams*. *J. Appl. Phys.* **39** (1968) 3597–3639.
- [BROMLEY1988] L. Bromley, A. Guy, and D. Hanna. *Synchronously pumped optical parametric oscillation in beta-barium borate*. *Optics Communications* **67** (1988) 316–320.
- [BROSSEL1952] J. Brossel and F. Bitter. *A new "double resonance" method for investigating atomic energy levels. Application to  $\text{Hg}^3P_1$* . *Phys. Rev.* **86** (1952) 308–316.
- [BROWN2013] R. C. Brown, S. Wu, J. V. Porto, C. J. Sansonetti, C. E. Simien, S. M. Brewer, J. N. Tan, and J. D. Gillaspay. *Quantum interference and light polarization effects in unresolvable atomic lines : Application to a precise measurement of the  $^{6,7}\text{Li}$   $D_2$  lines*. *Phys. Rev. A* **87** (2013) 032504.
- [CHAMPENOIS2008] C. Champenois, M. Jacquy, S. Lepoutre, M. Büchner, G. Tréneç, and J. Vigué. *Index of refraction of gases for matter waves : Effect of the motion of the gas particles on the calculation of the index*. *Phys. Rev. A* **77** (2008) 013621.
- [CZARNECKI2005] A. Czarnecki, U. D. Jentschura, and K. Pachucki. *Calculation of the one- and two-loop Lamb shift for arbitrary excited hydrogenic states*. *Phys. Rev. Lett.* **95** (2005) 180404.
- [DEBEAUVOIR1997a] B. de Beauvoir (1997). *Réalisation d'un étalon de fréquence à 778 nm : mesure absolue des fréquences 2S-8S/D des atomes d'hydrogène et de deutérium et détermination de la constante de Rydberg*. PhD thesis, Université Pierre et Marie Curie.
- [DEBEAUVOIR1997b] B. de Beauvoir, F. Nez, L. Julien, B. Cagnac, F. Biraben, D. Touahri, L. Hilico, O. Acef, A. Clairon, and J. J. Zondy. *Absolute frequency measurement of the 2S – 8S/D transitions in hydrogen and deuterium : new determination of the Rydberg constant*. *Phys. Rev. Lett.* **78** (1997) 440–443.
- [DEBEAUVOIR2000] B. de Beauvoir, C. Schwob, O. Acef, L. Jozefowski, L. Hilico, F. Nez, L. Julien, A. Clairon, and F. Biraben. *Metrology of the hydrogen and deuterium atoms : Determination of the Rydberg constant and Lamb shifts*. *The European Physical Journal D - Atomic, Molecular, Optical and Plasma Physics* **12** (2000) 61–93.
- [DRAKE1990] G. W. F. Drake and R. A. Swainson. *Bethe logarithms for hydrogen up to  $n=20$ , and approximations for two-electron atoms*. *Phys. Rev. A* **41** (1990) 1243–1246.
- [DREVER1983] R. Drever, J. Hall, F. Kowalski, J. Hough, G. Ford, A. Munley, and H. Ward. *Laser phase and frequency stabilization using an optical resonator*. *Applied Physics B* **31** (1983) 97–105.

- [EIDES2007a] M. I. Eides, H. Grotch, and V. A. Shelyuto (2007). *Theory of Light Hydrogenic Bound States*. Springer.
- [EIDES2007b] M. I. Eides and V. A. Shelyuto. *Three-loop radiative corrections to Lamb shift and hyperfine splitting*. *Can.J.Phys.* **85** (2007) 509–519.
- [EIKEMA2001] K. S. E. Eikema, J. Walz, and T. W. Hänsch. *Continuous coherent Lyman- $\alpha$  excitation of atomic hydrogen*. *Phys. Rev. Lett.* **86** (2001) 5679–5682.
- [ERICKSON1977] G. W. Erickson. *Energy levels of one electron atoms*. *Journal of Physical and Chemical Reference Data* **6** (1977) 831–870.
- [ERICKSON1965] G. W. Erickson and D. R. Yennie. *Radiative level shifts II : Higher order contributions to the Lamb shift*. *Ann. Phys. (NY)* **35** (1965) 447.
- [GAGNAC1975] B. Gagnac, L. Tchang-Brillet, and J. C. Pebay-Peyroula (1975). *Physique atomique, deuxième édition*. Dunod.
- [GALTIER2014] S. Galtier, F. Nez, L. Julien, and F. Biraben. *Ultraviolet continuous-wave laser source at 205 nm for hydrogen spectroscopy*. *Optics Communications* **324** (2014) 34 – 37.
- [GARREAU1989] J.-C. Garreau (1989). *Mesure de la constante de Rydberg par spectroscopie à deux photons des états de Rydberg de l'atome d'hydrogène*. PhD thesis, Université Pierre et Marie Curie.
- [GIRARD1983] B. Girard (1983). *Etude de la collision réactive  $I2+F-F+I$  par fluorescence induite par laser*. PhD thesis, Université Pierre et Marie Curie.
- [GLASS-MAUJEAN1974] M. Glass-Maujean (1974). *Étude, par la méthode des anticroisements, des niveaux  $n=3$  et  $4$  de l'atome d'hydrogène excité, formé par dissociation de la molécule  $H_2$* . Thèse d'Etat, Université Pierre et Marie Curie.
- [GOPPERT-MAYER1931] M. Goppert-Mayer. *Über Elementarakte mit zwei Quantensprüngen*. *Ann. Phys.* **401** (1931) 273.
- [GRYNBERG1976] G. Grynberg (1976). *Spectroscopie d'absorption à deux photons sans élargissement Doppler. Application à l'étude du sodium et du néon*. Thèse d'Etat, Université Pierre et Marie Curie.
- [HAAS2006] M. Haas, U. D. Jentschura, C. H. Keitel, N. Kolachevsky, M. Herrmann, P. Fendel, M. Fischer, T. Udem, R. Holzwarth, T. W. Hänsch, M. O. Scully, and G. S. Agarwal. *Two-photon excitation dynamics in bound two-body coulomb systems including ac Stark shift and ionization*. *Phys. Rev. A* **73** (2006) 052501.

- [HAGEL1995] G. Hagel (1995). *Spectroscopie de l'atome d'hydrogène vers une mesure absolue de la fréquence de la transition  $1S - 3S$* . PhD thesis, Université Pierre et Marie Curie.
- [HAGLEY1994] E. W. Hagley and F. M. Pipkin. *Separated oscillatory field measurement of hydrogen  $2S_{1/2} - 2P_{3/2}$  fine structure interval*. *Phys. Rev. Lett.* **72** (1994) 1172–1175.
- [HANLE1924] W. Hanle. *Zeit. Physik.* **30** (1924) 93.
- [HANNEKE2008] D. Hanneke, S. Fogwell, and G. Gabrielse. *New measurement of the electron magnetic moment and the fine structure constant*. *Phys. Rev. Lett.* **100** (2008) 120801.
- [HÄNSCH1972] T. Hänsch, I. Shanin, and A. Schwalow. *Optical resolution of the Lamb shift in atomic hydrogen by laser saturation spectroscopy*. *Nature* **235** (1972) 63.
- [HÄNSCH1975] T. W. Hänsch, S. A. Lee, R. Wallenstein, and C. Wieman. *Doppler-free two-photon spectroscopy of hydrogen  $1S-2S$* . *Phys. Rev. Lett.* **34** (1975) 307–309.
- [HÄNSCH1974] T. W. Hänsch, M. H. Nayfeh, S. A. Lee, S. M. Curry, and I. S. Shahin. *Precision measurement of the Rydberg constant by laser saturation spectroscopy of the Balmer  $\alpha$  line in hydrogen and deuterium*. *Phys. Rev. Lett.* **32** (1974) 1336–1340.
- [HELLWIG1970] H. Hellwig, R. F. C. Vessot, M. W. Levine, P. W. Zitzewitz, D. Allan, and D. Glaze. *Measurement of the unperturbed hydrogen hyperfine transition frequency*. *Instrumentation and Measurement, IEEE Transactions on* **19** (1970) 200–209.
- [HILDUM1986] E. A. Hildum, U. Boesl, D. H. McIntyre, R. G. Beausoleil, and T. W. Hänsch. *Measurement of the  $1S - 2S$  frequency in atomic hydrogen*. *Phys. Rev. Lett.* **56** (1986) 576–579.
- [HÄNSCH1980] T. W. Hänsch and B. Couillaud. *Laser frequency stabilization by polarization spectroscopy of a reflecting reference cavity*. *Opt. Commun.* **35** (1980) 441.
- [HORBATSCH2010] M. Horbatsch and E. A. Hessels. *Shifts from a distant neighboring resonance*. *Phys. Rev. A* **82** (2010) 052519.
- [HUBER1999] A. Huber, B. Gross, M. Weitz, and T. W. Hänsch. *High-resolution spectroscopy of the  $1S - 2S$  transition in atomic hydrogen*. *Phys. Rev. A* **59** (1999) 1844–1851.
- [JENTSCHURA2001] U. D. Jentschura, P. J. Mohr, and G. Soff. *Electron self-energy for the  $K$  and  $L$  shells at low nuclear charge*. *Phys. Rev. A* **63** (2001) 042512.

- [JULIEN1974] L. Julien (1974). *Étude, par la méthode des anticroisements, de la structure des niveaux  $n=3$  de l'hydrogène atomique produit par excitation dissociative d'hydrogène moléculaire*. Thèse de 3ème cycle, Université Pierre et Marie Curie.
- [KARSHENBOIM2002] S. G. Karshenboim and V. G. Ivanov. *Hyperfine structure in hydrogen and helium ion*. *Physics Letters B* **524** (2002) 259 – 264.
- [KENNARD1938] E. H. Kennard (1938). *Kinetic Theory of Gases*. McGraw-Hill, New York.
- [KOGELNIK1972] H. Kogelnik, E. Ippen, A. Dienes, and C. Shank. *Astigmatically compensated cavities for CW dye lasers*. *Quantum Electronics, IEEE Journal of* **8** (1972) 373–379.
- [KOGELNIK1966] H. Kogelnik and T. Li. *Laser Beams and Resonators*. *Applied Optics* **5** (1966) 1550–1567.
- [KOLACHEVSKY2009] N. Kolachevsky, A. Matveev, J. Alnis, C. G. Parthey, S. G. Karshenboim, and T. W. Hänsch. *Measurement of the 2S hyperfine interval in atomic hydrogen*. *Phys. Rev. Lett.* **102** (2009) 213002.
- [KUSCH1948] P. Kusch and H. M. Foley. *The magnetic moment of the electron*. *Phys. Rev.* **74** (1948) 250–263.
- [LAMB1947] W. E. Lamb and R. C. Retherford. *Phys. Rev.* **72** (1947) 241.
- [LORENZ12012] I. T. Lorenz1, H. W. Hammer, and U.-G. Meissner. *The size of the proton : Closing in on the radius puzzle*. *Eur. Phys. J. A* **48** (2012) 151.
- [LUNDEEN1981] S. R. Lundeen and F. M. Pipkin. *Measurement of the Lamb shift in hydrogen,  $n=2$* . *Phys. Rev. Lett.* **46** (1981) 232–235.
- [LUNDEEN1986] S. R. Lundeen and F. M. Pipkin. *Separated oscillatory field measurement of the Lamb shift in H,  $n = 2$* . *Metrologia* **22** (1986) .
- [MARSMAN2014] A. Marsman, E. A. Hessels, and M. Horbatsch. *Shifts due to quantum-mechanical interference from distant neighboring resonances for saturated fluorescence spectroscopy of the  $2^3S$  to  $2^3P$  intervals of helium*. *Phys. Rev. A* **89** (2014) 043403.
- [MATVEEV2014] A. Matveev (2014). Communication privée.
- [MOHR2012] P. J. Mohr, B. N. Taylor, and D. B. Newell. *CODATA recommended values of the fundamental physical constants : 2010*. *Rev. Mod. Phys.* **84** (2012) 1527–1605.
- [NEWTON1979] G. Newton, D. A. Andrews, and P. J. Unsworth. *A precision determination of the Lamb shift in hydrogen*. *Phil. Trans. R. Soc. Lond. A* **290** (1979) 373–404.

- [NEZ1993a] F. Nez (1993). *Chaîne de fréquence optique pour mesurer les transitions  $2S - 8S/8D$  dans l'atome d'hydrogène; mesure de la constante de Rydberg en unité de fréquence*. PhD thesis, Université Pierre et Marie Curie.
- [NEZ1992] F. Nez, M. D. Plimmer, S. Bourzeix, L. Julien, F. Biraben, R. Felder, O. Acef, J. J. Zondy, P. Laurent, A. Clairon, M. Abed, Y. Millerioux, and P. Juncar. *Precise frequency measurement of the  $2S - 8S/8D$  transitions in atomic hydrogen : New determination of the Rydberg constant*. *Phys. Rev. Lett.* **69** (1992) 2326–2329.
- [NEZ1993b] F. Nez, M. D. Plimmer, S. Bourzeix, L. Julien, F. Biraben, R. Felder, Y. Millerioux, and P. de Natale. *First pure frequency measurement of an optical transition in atomic hydrogen : better determination of the Rydberg constant*. *EPL (Europhysics Letters)* **24** (1993) 635.
- [OLANDER1970] D. R. Olander, R. H. Jones, and W. J. Siekhaus. *Molecular beam sources fabricated from multichannel arrays. IV. Speed distribution in the centerline beam*. *Journal of Applied Physics* **41** (1970) 4388–4391.
- [PAL'CHIKOV1985] V. G. Pal'chikov, Y. L. Sokolov, and V. P. Yakovlev. *Measurement of the Lamb shift in H,  $n = 2$* . *Metrologia* **21** (1985) 99.
- [PARTHEY2011] C. G. Parthey, A. Matveev, J. Alnis, B. Bernhardt, A. Beyer, R. Holzwarth, A. Maistrou, R. Pohl, K. Predehl, T. Udem, T. Wilken, N. Kolachevsky, M. Abgrall, D. Rovera, C. Salomon, P. Laurent, and T. W. Hänsch. *Improved measurement of the hydrogen  $1S-2S$  transition frequency*. *Phys. Rev. Lett.* **107** (2011) 203001.
- [PETERS2013] E. Peters, D. C. Yost, A. Matveev, T. Hänsch, and T. Udem. *Frequency-comb spectroscopy of the hydrogen  $1S-3S$  and  $1S-3D$  transitions*. *Ann. Phys. (Berlin)* **525** (2013) L29–L34.
- [POHL2010] R. Pohl, A. Antognini, and F. Nez *et al.* *The size of the proton*. *Nature* **466** (2010) .
- [RABI1939] I. I. Rabi, S. Millman, P. Kusch, and J. R. Zacharias. *The Molecular Beam Resonance Method for Measuring Nuclear Magnetic Moments. The Magnetic Moments of  ${}^3\text{Li}^6$ ,  ${}^3\text{Li}^7$  and  ${}^9\text{F}^{19}$* . *Phys. Rev.* **55** (1939) 526–535.
- [ROTHERY2000] N. E. Rothery and E. A. Hessels. *Measurement of the  $2S$  atomic hydrogen hyperfine interval*. *Phys. Rev. A* **61** (2000) 044501.
- [ROZHDESTVENSKI1912] D. Rozhdestvenski. *Anomale Dispersion im Natriumdampf*. *Ann. Phys.* **39** (1912) 307.

- [SAKUMA2004] J. Sakuma, Y. Asakawa, T. Sumiyoshi, and H. Sekita. *High-power CW deep-UV coherent light sources around 200 nm based on external resonant sum-frequency mixing*. *IEEE J. of Selected Topics in Q.E.* **10** (2004) 1244–1251.
- [SALPETER1951] E. E. Salpeter and H. A. Bethe. *A relativistic equation for bound-state problems*. *Phys. Rev.* **84** (1951) 1232–1242.
- [SAPIRSTEIN1990] J. R. Sapirstein and D. R. Yennie (1990). *Theory of hydrogenic bound states*. World Scientific.
- [SCHOLZ2012] M. Scholz, D. Opalevs, P. Leisching, W. Kaenders, G. Wang, X. Wang, R. Li, and C. Chen. *1.3 mW tunable and narrow-band continuous-wave light source at 191 nm*. *Opt. Express* **20** (2012) 18659–18664.
- [SCHWINGER1948] J. Schwinger. *On quantum-electrodynamics and the magnetic moment of the electron*. *Phys. Rev.* **73** (1948) 416–417.
- [SCHWOB1999] C. Schwob, L. Jozefowski, B. de Beauvoir, L. Hilico, F. Nez, L. Julien, F. Biraben, O. Acaf, J.-J. Zondy, and A. Clairon. *Optical frequency measurement of the  $2S - 12D$  transitions in hydrogen and deuterium : Rydberg constant and Lamb shift determinations*. *Phys. Rev. Lett.* **82** (1999) 4960–4963.
- [SICK2008] I. Sick (2008). *Precise radii of light nuclei from electron scattering*. edited by S. G. Karshenboim (Springer, Lect. Notes Phys. 745, Berlin, Heidelberg).
- [SICK2011] I. Sick. *Troubles with the proton rms-radius*. *Few-Body Systems* **50** (2011) 367–369.
- [SICK2012] I. Sick. *Problems with proton radii*. *Progress in Particle and Nuclear Physics* **67** (2012) 473 – 478.
- [SIEGMAN1989] A. E. Siegman (1989). *Lasers*. University Science Books.
- [SNLO] SNLO. *nonlinear optics code available from A. V. Smith*. AS-Photonics, Albuquerque, NM.
- [SOKOLOV1982] Y. L. Sokolov and V. Yakovlev. *Measurement of the Lamb shift in the hydrogen atom ( $n=2$ )*. *Zh. Eksp. Teor. Fiz.* **83** (1982) 15–32.
- [TAYLOR1969] B. N. Taylor, W. H. Parker, and D. N. Langenberg. *Determination of  $e/h$ , using macroscopic quantum phase coherence in superconductors : implications for quantum electrodynamics and the fundamental physical constants*. *Rev. Mod. Phys.* **41** (1969) 375–496.
- [TRIEBWASSER1953] S. Triebwasser, E. S. Dayhoff, and W. E. Lamb. *Fine structure of the hydrogen atom. V*. *Phys. Rev.* **89** (1953) 98–106.

- [UEHLING1935] E. A. Uehling. *Polarization effects in the positron theory*. *Phys. Rev.* **48** (1935) 55–63.
- [VIGUÉ2014] J. Vigué (2014). Communication privée.
- [WALRAVEN1982] J. T. M. Walraven and I. F. Silvera. *Helium temperature beam source of atomic hydrogen*. *Review of Scientific Instruments* **53** (1982) 1167–1181.
- [WEBER1979] E. Weber and J. Goldsmith. *Anomalous shifts of hydrogen Balmer- $\alpha$  fine structure lines in helium*. *Physics Letters A* **70** (1979) 95 – 98.
- [WEITZ1995] M. Weitz, A. Huber, F. Schmidt-Kaler, D. Leibfried, W. Vassen, C. Zimmermann, K. Pachucki, T. W. Hänsch, L. Julien, and F. Biraben. *Precision measurement of the 1S ground-state Lamb shift in atomic hydrogen and deuterium by frequency comparison*. *Phys. Rev. A* **52** (1995) 2664–2681.
- [WICHMANN1956] E. H. Wichmann and N. M. Kroll. *Vacuum polarization in a strong coulomb field*. *Phys. Rev.* **101** (1956) 843–859.
- [YEROKHIN2002] V. A. Yerokhin, P. Indelicato, and V. M. Shabaev. *Self-energy correction to the bound-electron  $g$  factor in H-like ions*. *Phys. Rev. Lett.* **89** (2002) 143001.
- [YI2008] L. Yi, X. Qi, W. Chen, J. Chen, X. Zhou, and X. Chen. *Enhancing the signal-to-noise ratio of optical frequency beating using open-loop photonic crystal fiber*. *Optics Communications* **281** (2008) 4081–4087.
- [YOST2014a] D. Yost (2014). Communication privée.
- [YOST2014b] D. C. Yost, A. Matveev, E. Peters, A. Beyer, T. W. Hänsch, and T. Udem. *Quantum interference in two-photon frequency-comb spectroscopy*. *Phys. Rev. A* **90** (2014) 012512.