

ORSAY

N°D'ORDRE :

**UNIVERSITE DE PARIS-SUD
U.F.R. SCIENTIFIQUE D' ORSAY**

THESE

présentée

Pour obtenir

**Le GRADE de DOCTEUR EN SCIENCES
DE L'UNIVERSITE PARIS XI ORSAY**

PAR

Igor MOURACHKO

**SUJET : Contribution Expérimentale et Théorique à l'Etude
des Effets à N Corps
dans un Gaz de Rydberg Gelé de Césium**

Soutenue le 17 février 1999 devant la Commission d'examen

M. Vladimir AKOULINE

M. Claude FABRE

Mme. Nicole FEAUTRIER Rapporteur

M. Pierre PILLET

M. Jacques ROBERT Rapporteur

Je tiens à exprimer toute ma reconnaissance à Mme. Catherine Bréchnignac et à M. Christian Colliex pour m'avoir accueilli dans le laboratoire Aimé Cotton et de m'avoir fait bénéficier d'excellentes conditions de travail.

J'ai eu la chance de travailler sous la direction de M. Pierre Pillet, à qui j'exprime toute ma gratitude et reconnaissance pour sa grande compétence ainsi que pour sa patience.

J'adresse ma profonde gratitude à M. Vladimir Akouline, avec qui j'ai eu la chance de travailler sur l'aspect théorique de cette thèse.

Je suis particulièrement reconnaissant à Mme. Nicole Feautrier et M. Jacques Robert pour avoir accepté d'être rapporteurs de cette thèse. De même je tiens vivement à remercier M. Claude Fabre pour son acceptation de faire partie du Jury.

Je remercie également les membres du laboratoire avec qui j'ai travaillé, plus particulièrement Anthony Bleton, Patrick Nosbaum et Cyril Drag.

Many-Body Phenomena in a Frozen Rydberg Gas

Abstract

Many-body effects in a gas of cold Rydberg Cs atoms are investigated using a magneto-optical trap. Resonant energy transfer resulting from dipole-dipole interaction are studied experimentally in the conditions when one can consider the ensemble of atoms as a frozen Rydberg gas. Observed lineshapes of the energy transfer resonances are found to be dependent on the atomic density and hence different from lorentzian ones suggested by the model of binary collisions in a dilute gas at the room temperature. Moreover the linewidths are much larger than ones anticipated from the binary dipole-dipole interaction for the given mean interatomic distance. This mesoscopic system of cold Rydberg atoms rather resembles an amorphous solid with interacting centers randomly distributed over the sample, where many-body effects are equally important.

The developed phenomenological "reaction-diffusion" model of the energy transfer takes into account two main processes. The first process is a strong two-body effect at a density fluctuation comprising by a pair of atoms at short distance, when one atom transfers a part of its energy to another. It results in production of "elementary excitations" that is a couple of atomic states different from the initial ones. The second process corresponds to a "weak" many-body interaction leading to a diffusion-like migration of these "excitations" over the media of frozen atoms. Peculiarities of the energy transfer observed in frozen Rydberg gas are explained in the framework of this model: Seldom big fluctuations of the interatomic distances are responsible for the large linewidth, whereas a "weak" many-body effect of recurrences in course of the quantum states diffusion over the sample results in the unusual lineshape of resonances.

Table des matières

1	Introduction	17
2	Piège magnéto-optique et piège magnéto-optique sombre de césium	24
2.1	Introduction	24
2.2	Principe de fonctionnement du piège magnéto-optique	26
2.2.1	Mélasse optique Doppler	27
2.2.2	Principe du piège magnéto-optique	29
2.2.3	Température dans les mélasses optiques. Mécanismes de refroidissement sub-Doppler	32
2.2.4	Température de piège magnéto-optique	37
2.2.5	Piège magnéto-optique à trois dimensions	38
2.3	Dispositif expérimental de piège magnéto-optique	39
2.3.1	Enceinte à vide	39
2.3.2	Les champs magnétiques	40
2.3.3	La source de césium	41
2.3.4	Les faisceaux lasers	42
2.4	Caractéristiques principales du piège magnéto-optique	44
2.4.1	Temps de chargement du piège.	44
2.4.2	Nombre d'atomes piégés	47
2.4.3	Forme et taille du piège	49
2.4.4	Densité d'atomes piégés	51

2.4.5	Estimation de la température	52
2.4.6	Résumé	53
2.5	Piège magnéto-optique sombre	54
2.5.1	Principe du piège sombre et densité atomique dans le piège sombre	55
2.5.2	Mécanisme de transfert de population dans le piège sombre . . .	57
2.5.3	Nombre d'atomes dans le piège sombre	61
2.5.4	Description du dispositif expérimental	64
2.5.5	Méthode expérimentale	68
2.5.6	Résultats expérimentaux	73
2.6	Conclusion	79
3	Etude expérimentale des propriétés d'un gaz de Rydberg gelé de cé-	
	sium: Mise en évidence d'effets à plusieurs corps	81
3.1	Introduction	81
3.2	Propriétés des atomes de Rydberg	84
3.3	Principe de l'expérience	89
3.4	Des collisions résonnantes au gaz de Rydberg gelé	92
3.5	Le diagramme Stark d'énergie et l'excitation dans des états de Rydberg .	96
3.5.1	Excitation dans des états de Rydberg	97
3.5.2	Croisements évités	101
3.6	Dispositif expérimental	102
3.6.1	Les lasers d'excitation	103
3.6.2	Les champs électriques	107
3.6.3	Détection et traitement du signal	110
3.6.4	Procédure expérimentale	111
3.7	Résultats expérimentaux	113
3.7.1	Taux de transfert de population	113
3.7.2	Dépendance temporelle des profils de raies de résonance	116

3.7.3	Structure des raies de résonance en fonction de la densité d'atomes de Rydberg	120
3.7.4	Evolution de la largeur des raies de résonance en fonction de la densité	124
3.7.5	L'amplitude et l'aire des raies de résonance	127
3.8	Discussion des résultats	127
3.9	Conclusion	130
4	Diffusion d'excitation dans un ensemble d'atomes de Rydberg froids	131
4.1	Introduction	131
4.2	Position du problème et remarques préliminaires	134
4.2.1	Les processus élémentaires dans un ensemble d'atomes excités dans un état de Rydberg	135
4.2.2	Ensemble d'atomes de Rydberg froids. Les résultats des simulations numériques	137
4.2.3	Problème d'interaction d'un niveau avec une bande inhomogène .	138
4.3	Mécanisme de création d'excitations dans un ensemble d'atomes immobiles	141
4.4	Equation de Schrödinger du système niveau-bande	146
4.4.1	Fonction de Green	149
4.5	Diffusion d'excitation dans un gaz de Rydberg gelé	153
4.5.1	Dimension de la diffusion	155
4.5.2	Amplitude de probabilité de présence sur un centre actif dans le cas d'une diffusion d'excitation	155
4.5.3	Coefficient de diffusion	158
4.5.4	Densité d'états dans une bande	160
4.6	Approximation aux temps grands	166
4.7	Expressions asymptotiques pour la fonction de Green	168
4.8	Résultats et comparaison avec l'expérience	173
4.9	Conclusion	178

5	Conclusion et perspectives	179
A	Calcul des fréquences de Rabi	185
B	Démonstration de l'expression (4.71)	189
C	Démonstration de l'expression (4.108)	195
D	Article " <i>Many-Body Effects in a Frozen Rydberg Gas</i> "	199
E	Article " <i>Level-band problem and many-body effects in cold Rydberg atoms</i> "	204

Liste des figures

2-1	Schéma de principe de mélasse optique à une dimension pour une transition $J = 0 \rightarrow J' = 1$	28
2-2	Schéma de principe de piège magnéto-optique à une dimension pour une transition $J = 0 \rightarrow J' = 1$	30
2-3	a) Les déplacements lumineux en énergies et les populations stationnaires (représentées par les cercles) pour l'état fondamental $J_g = 1/2$ dans la configuration $\text{lin} \perp \text{lin}$. b) L'effet Sisyphé dans la configuration $\text{lin} \perp \text{lin}$ (voir texte). (Figures extraites de [30]).	35
2-4	Schéma du piège magnéto-optique à trois dimensions. Les bobines de compensation du champ résiduel ne sont pas montrées ici.	39
2-5	Diagramme d'énergie des sous-niveaux hyperfins de la transition atomique D_2 du césium et les transitions utilisées pour le refroidissement et le repompage.	42
2-6	Schéma du dispositif expérimental du piège magnéto-optique dans le plan horizontal $(x - y)$. Le faisceau laser dépompeur (ligne pointillée) est utilisé dans le piège magnéto-optique sombre.	44
2-7	Intensité de fluorescence du piège magnéto-optique en fonction du temps après l'allumage des faisceaux laser de piégeage obtenu dans les conditions de pression de vapeur de césium de $\sim 10^{-8}$ Torr.	46
2-8	Le profil de fluorescence du piège magnéto-optique obtenu à l'aide d'une caméra CCD pour les paramètres expérimentaux: $I_{tot} \simeq 18 \text{ mW/cm}^2$, $\delta = 9 \text{ MHz}$, $\partial B/\partial z \simeq 15 \text{ G/cm}$. La ligne continue est l'ajustement par une fonction gaussienne. La taille à mi-hauteur est de $\sim 0.75 \text{ mm}$	50

2-9	La densité atomique n en fonction du nombre d'atomes piégés N pour les différentes valeurs de population fractionnelle de l'état hyperfin "brillant" du niveau fondamental. Une grosse ligne montre une limite de densité qui peut être obtenue avec une valeur de p optimale (figure extraite de [19]).	56
2-10	Mécanisme de pompage optique entre les sous-niveaux hyperfins. a) Dépompage "naturel". b) Dépompage forcé à l'aide de laser depompeur. Les chiffres devant les flèches indiquent les intensités de ces transitions.	58
2-11	Schéma de collision entre un atome piégé (1) et un atome rapide de vapeur (2) (voir texte).	64
2-12	Schéma de dispositif du piège magnéto-optique sombre dans le plan horizontal (xy). Les longueurs des parcours des faisceaux laser repompeur: $ ABCD = ABC'D = 2f_1 = 70$ mm.	65
2-13	Schéma du dispositif du laser sonde (voir texte).	67
2-14	a) Schéma d'ensemble du dispositif expérimental. b) Séquence temporelle de l'expérience.	69
2-15	Les raies d'absorption du piège à partir du sous-niveau hyperfin du niveau fondamental $F = 4$ dans le piège "brillant" (a) et $F = 3$ dans le piège sombre dépompé avec une population fractionnelle de l'état brillant $p \simeq 0.15$ (b). Les chiffres devant les raies dénotent les transitions entre les niveaux hyperfins correspondants.	72
2-16	a) Le nombre relatif d'atomes dans le piège brillant (\circ) en fonction de l'intensité relative de repompeur I_{rep}/I_{tot} . La ligne pointillée correspond à l'équation (2.85) pour la population fractionnelle de l'état brillant p dans le piège "brillant". b) Le nombre relatif d'atomes (\circ) et la population fractionnelle de l'état brillant p (\bullet) en fonction de l'intensité relative de repompeur I_{rep}/I_{tot} dans le piège sombre "naturel" utilisant un masque de 2 mm de diamètre. La ligne continue sur les deux figures a) et b) correspond à l'équation (2.86) avec $\delta_D = 3\Gamma$. L'intensité totale des faisceaux laser de piégeage $I_{tot} \simeq 18$ mW/cm ²	75

2-17	Les raies d'absorption du piège à partir du sous-niveau hyperfin du niveau fondamental $F = 3$ a) et $F = 4$ b) dans le piège sombre utilisant un masque de 2 mm (raies en ligne continue) et 1.5 mm (raies en ligne pointillée). c) Les raies d'absorption du piège à partir du sous-niveau hyperfin $F = 4$ dans le piège brillant.	76
2-18	Les raies d'absorption du piège à partir du sous-niveau hyperfin du niveau fondamental $F = 4$ dans le piège sombre dé pompé (raies en ligne continue) et dans le piège brillant (raies en ligne pointillée) (a) et $F = 3$ dans le piège sombre dé pompé avec une population fractionnelle $p \sim 0.2$ et un rapport $N_{ps}/N_{piège} \sim 2$ (b).	77
2-19	Nombre d'atomes dans le piège sombre exprimé en fonction de la fraction d'atomes dans un état brillant p . La ligne continue correspond à l'équation (2.71) avec le paramètre $\sigma_e/\sigma_f = 5.5$	79
3-1	Diagramme des niveaux d'énergie de l'atome de césium entre des multiplicités $n = 19$ et $n = 20$ en présence du champ électrique (les états d ne sont pas présentés ici). Les flèches représentent le transfert résonant de population dû à l'interaction dipôle-dipôle avec les éléments de matrice dipolaire μ_1 et μ_2 respectivement. La position de la résonance est donnée par l'égalité: $E_{24s} - E_{23p_{3/2}} = E_{23p_{3/2}} - E_{23s}$. Les deux états $ m_j = 1/2$ et $ m_j = 3/2$ de niveau $23p_{3/2}$ ne sont pas discernables sur la figure.	91
3-2	Représentation schématique de transfert résonant d'énergie suivant un schéma: $np_{3/2} + np_{3/2} = ns_{1/2} + (n + 1) s_{1/2}$. Les paires de flèches représentent les transferts de population correspondant aux différents niveaux initiaux.	97
3-3	Deux schémas d'excitation en état de Rydberg np . a) L'excitation à deux photons à partir du niveau fondamental $6s_{1/2}$. b) L'excitation à deux étages à partir du niveau excité $6p_{3/2}$ en présence du champ électrique. L'excitation $6s_{1/2} \rightarrow 6p_{3/2}$ dans le piège magnéto-optique est fournie par le laser de refroidissement.	98
3-4	Spectre d'excitation optique des états ns , nd et np d'atome de césium à partir du niveau excité $6p_{3/2}$ en présence du champ électrique.	99
3-5	Diagramme d'énergie des niveaux d'atome de césium au voisinage du niveau $24s$	101

3-6	Schéma du dispositif expérimental. Le piège magnéto-optique est créé à l'aide de trois paires de faisceaux laser en présence du gradient du champ magnétique. La préparation de l'état de Rydberg initial $np_{3/2}$ s'effectue par l'excitation optique à l'aide du laser à colorant pulsé. Les grilles sont utilisées pour appliquer le champ Stark et le champ électrique pulsé d'ionisation sélective de l'état final $(n + 1) s_{1/2}$. Le signal d'ions est amplifié à l'aide des galettes micro-canaux.	103
3-7	Schéma d'ensemble de l'expérience (voir texte).	104
3-8	Schéma du dispositif du laser à colorant. Le faisceau laser d'oscillateur est amplifié à l'aide de deux amplificateurs et fournit la puissance de 1.5 mJ par impulsion d'une durée de 8 ns.	105
3-9	Schéma de dispositif de la cavité d'oscillateur de laser à colorant. Le balayage en longueur d'onde s'effectue à l'aide d'un réseau optique tournant.	106
3-10	Temps de montée d'impulsion d'ionisation exprimé en fonction de l'amplitude d'impulsion.	109
3-11	Séquence temporelle de l'expérience (voir texte).	111
3-12	Figure montrant la différence des seuils d'ionisation (voir texte).	112
3-13	Signal d'ions de l'état de Rydberg $23p_{3/2}$ en fonction de la puissance du laser d'excitation $6p_{3/2} \rightarrow 23p_{3/2}$. L'impulsion laser de durée de 8 ns est focalisée sur le piège avec les dimensions verticale et horizontale de $150 \times 300 \mu\text{m}$ respectivement. La ligne continue est l'ajustement linéaire.	114
3-14	Signal d'ions provenant des atomes dans l'état $23p_{3/2}$ hors de résonance (ligne pointillée) et de l'état $24s$ dans le cas de résonance (ligne continue). Le taux de transfert vers l'état $24s$ est de $\sim 20\%$	115
3-15	Les raies de résonances obtenues pour le niveau initial $23p_{3/2}$ (voir texte).	116

- 3-16 a) Dépendance temporelle des raies de résonance pour la densité d'atomes estimée dans l'état initial $23p_{3/2} |m_j| = 1/2$ de $8 \times 10^8 \text{ cm}^{-3}$. b) Les mêmes spectres pour les temps 0.5 et 5.1 μs montrent l'élargissement des raies sans changement des profils. Les largeurs correspondantes sont: 250 MHz (pour $t_{\text{exp}} = 0.5 \mu\text{s}$) et 81 MHz (pour $t_{\text{exp}} = 5.1 \mu\text{s}$). Les lignes continues superposées aux spectres expérimentaux sont les ajustements par les fonctions lorentziennes. 117
- 3-17 a) Largeur de résonance $23p_{3/2} |m_j| = 1/2$ (\circ), $23p_{3/2} |m_j| = 1/2 + 23p_{3/2} |m_j| = 3/2$ (\bullet) et $23p_{3/2} |m_j| = 3/2$ (\triangle) en fonction du temps d'évolution libre. b) Toutes les données pour le niveau initial $23p_{3/2}$. Les lignes sont les ajustements suivant l'équation (3.32) avec les paramètres $\Delta\nu_\infty = 60.58 \text{ MHz}$ et $C = 77.3 \text{ MHz}\cdot\mu\text{s}$. La densité d'atomes de Rydberg est de $8 \times 10^8 \text{ cm}^{-3}$ 118
- 3-18 Figure montrant une dépendance temporelle du maximum de transfert de population en résonance. Les points expérimentaux représentent toutes les données pour le niveau initial $23p_{3/2}$ pour une densité de $8 \times 10^8 \text{ cm}^{-3}$ (voir texte). 119
- 3-19 Les résonances de transfert d'énergie obtenues pour les faibles densités d'atomes dans l'état initial et le temps d'évolution de 2 μs . a) La résonance $23p_{3/2} + 23p_{3/2} \rightarrow 23s + 24s$ pour une densité de $4 \times 10^8 \text{ cm}^{-3}$. La largeur de raie à mi-hauteur est de 30 MHz. b) La résonance $26p_{3/2} + 26p_{3/2} \rightarrow 26s + 27s$ pour une densité de $3.9 \times 10^8 \text{ cm}^{-3}$. La largeur de raie à mi-hauteur est de 27 MHz. La ligne continue est l'ajustement par fonction lorentzienne. 121
- 3-20 Le transfert résonnant d'énergie pour le niveau initial $23p_{3/2} |m_j| = 1/2$ en fonction du désaccord avec la résonance pour un temps d'évolution libre de 2 μs . Les densités estimées d'atomes dans l'état initial et les largeurs des résonances à mi-hauteur sont: a) $4 \times 10^8 \text{ cm}^{-3}$ et 30 MHz, b) $7 \times 10^8 \text{ cm}^{-3}$ et 70 MHz, c) $4 \times 10^9 \text{ cm}^{-3}$ et 120 MHz et d) 10^{10} cm^{-3} et 180 MHz. 122

- 3-21 Le transfert résonant d'énergie pour le niveau initial $23p_{3/2} |m_j| = 1/2$ avec le temps d'évolution libre de $2 \mu s$. a) Le même spectre présenté sur la figure 3-20 (c) correspondant à l'excitation avec une polarisation orthogonale au champ électrique. b) La résonance obtenue pour une densité de $7.2 \times 10^9 \text{ cm}^{-3}$ et une polarisation avec une angle de 45° par rapport au cas a). La largeur correspondante est de 160 MHz. 124
- 3-22 Largeur à mi-hauteur des raies de résonances pour le niveau initial $23p_{3/2} |m_j| = 1/2$ (\bullet), $26p_{3/2} |m_j| = 1/2$ (\circ), $23p_{3/2} |m_j| = 1/2 + 23p_{3/2} |m_j| = 3/2$ (\triangle), et $23p_{3/2} |m_j| = 1/2$ avec une polarisation de laser d'excitation orthogonale (\square) en fonction de la densité d'atomes dans l'état initial pour le temps d'évolution de $2 \mu s$ 125
- 3-23 a) Dépendance du maximum absolu de transfert de population pour l'état initial $23p_{3/2} |m_j| = 1/2$ et temps d'évolution libre de $2 \mu s$ en fonction de la densité initiale. Figure b) montre une croissance du maximum pour les faibles densités. c) Aire des raies de résonance en fonction de la densité d'atomes dans l'état initial $23p_{3/2} |m_j| = 1/2$ pour le temps d'évolution libre de $2 \mu s$. La ligne continue est l'ajustement linéaire. 126
- 4-1 Un état quantique $|0\rangle$ couplé avec une bande inhomogène d'états. Un groupe d'états avec une petite densité d'états g_1 a un fort couplage V_1 avec l'état initial. D'autre part, un grand nombre de niveaux sont couplés avec un état initial par faible couplage V_4 , mais la densité de ce groupe est grande. 140
- 4-2 Représentation schématique d'un mécanisme d'échange d'excitation dans un ensemble d'atomes immobiles. Les excitations $|ns\rangle$, $|n's\rangle$ créées par un centre actif (une paire d'atomes "très proches" $A - B$) sont évacuées par processus d'échange résonnant d'énergie avec les atomes de l'environnement de ce centre actif. Lorsque deux excitations $|ns\rangle$, $|n's\rangle$ quittent le centre actif, la création d'un nouveau couple d'excitations se produit. 142

4-3	Schéma des niveaux d'énergie du système. L'état initial $ np, np\rangle$ est couplé par interaction dipôle-dipôle, dont l'élément de matrice d'interaction est V_{12} avec l'état $ ns, n's\rangle$ correspondant à une situation où un atome de la paire d'atomes $A - B$ se trouve dans un état $ ns\rangle$ et l'autre dans un état $ n's\rangle = (n + 1)s\rangle$. Les transitions dans une bande d'états $\{ k\rangle\}$ dues à l'échange d'énergie par interaction dipôle-dipôle avec les éléments de matrice d'interaction V_{2k} représentent l'évacuation des excitations du centre actif.	147
4-4	Partie réelle a) et partie imaginaire b) de la fonction de Green (4.102). La densité d'états dans une bande en échelle double logarithmique c).	165
4-5	Comparaison des densités d'états obtenues à partir des fonctions asymptotiques (4.122), (4.126) (lignes continues) et des fonctions (4.102) (lignes pointillées) en échelle double logarithmique.	172
4-6	Les profils des résonances exprimés en fonction du logarithme de la densité d'échelle D_E/V_{12} et du logarithme de la densité atomique n_{Ryd} (voir texte) pour les dimensions de diffusion $d = 1$ et $d = 2$	174
4-7	Les profils des résonances exprimés en fonction du logarithme de la densité d'échelle D_E/V_{12} et du logarithme de la densité atomique n_{Ryd} (voir texte) pour les dimensions de diffusion $d = 3$ et $d = 4$	175
4-8	Comparaison des raies de résonance normalisées pour les densités d'échelles D_E/V_{12} : a) 2, b) 1.1 et c) 0.087 correspondant à des densités d'atomes de Rydberg n_{Ryd} pour la taille d'une paire $R_{AB} = 1.1 \mu m$: a) $1.8 \times 10^{10} \text{ cm}^{-3}$, b) $9.8 \times 10^9 \text{ cm}^{-3}$, c) $7.6 \times 10^8 \text{ cm}^{-3}$	176
A-1	Le schéma des transitions entre les niveaux hyperfins $F = 4 \rightarrow F' = 5$ et $F = 3 \rightarrow F' = 2$ de raie D ₂ de césium. Les chiffres dénotent les coefficients de Clebsch-Gordan au carré.	188
B-1	Fonction $g(d, \tau)$ pour les différentes dimensions d	191
B-2	Fonction $f(d, \tau)$ pour les différentes dimensions d	193

Liste des tableaux

3.1	Les défauts quantiques pour les états de faible moment angulaire des atomes de Rydberg de césium ¹	86
3.2	Paramètres pour le calcul des durées de vie radiatives des atomes de Rydberg de césium ¹	87
3.3	Les durées de vie des états de différents moments angulaires des atomes de Rydberg de césium.	88
3.4	Propriétés des atomes de Rydberg.	89
3.5	Position en champ électrique des croisement évités et positions des résonances pour le transfert d'énergie.	102
3.6	Valeurs calculées des pentes des niveaux.	108
3.7	Valeurs expérimentales et calculées des positions en champ Stark des résonances.	120
3.8	Valeurs expérimentales obtenues pour le gaz de Rydberg gelé.	130
A.1	Les intensités des transitions entre les niveaux hyperfins.	187

Chapitre 1

Introduction

Les développements dans le domaine de la manipulation, du refroidissement ou de piégeage d'atomes neutres par laser ont conduit à la possibilité de disposer de "nouveaux outils" expérimentaux ouvrant de multiples champs de recherche. Le problème des collisions et des interactions entre atomes froids conduit en premier lieu à des effets parasites qui par exemple limitent la densité d'atomes métastables d'hélium dans un piège magnéto-optique à cause de l'ionisation Penning [1]. Dans les horloges atomiques de césium ultra précises utilisant des fontaines d'atomes froids, les collisions inélastiques sont responsables du déplacement de fréquence qu'il est utile de pouvoir déterminer et contrôler [2]. Les collisions entre atomes froids sont aussi fondamentales pour la rethermalisation des atomes dans les pièges magnétiques permettant grâce au processus de refroidissement évaporatif d'atteindre la condensation de Bose-Einstein [3]. Les collisions et les interactions inter-atomiques se retrouvent ainsi au centre des préoccupations des études sur les atomes froids. La connaissance des paramètres d'interaction, comme la longueur de diffusion, va par exemple permettre de modéliser le comportement des condensats et de prédire la possibilité de les réaliser avec un atome donné. Le signe de la longueur de diffusion est en particulier le paramètre clé pour la formation et la stabilité d'un condensat, un signe négatif limitant beaucoup le nombre d'atomes qui se retrouvent dans le condensat [4], [5].

Une application spectaculaire des collisions entre atomes froids est le développement d'une nouvelle technique de spectroscopie moléculaire par photoassociation d'atomes froids [6]. Lors d'un processus de photoassociation deux atomes froids vont absorber de manière résonnante un photon pour créer une molécule excitée dans un état ro-vibrationnel donné. Cette méthode a été appliquée à tous les alcalins, elle permet de faire la spectroscopie au voisinage des limites de dissociation $s + p$ (correspondant au premier niveau excité p de l'alcalin). Elle permet de déterminer précisément le comportement asymptotique des potentiels à longue distance. L'analyse de l'intensité des raies peut aussi donner accès à la fonction d'onde des deux atomes froids en collision et permet d'en déduire des paramètres de collision tels que la longueur de diffusion. Récemment dans le cas du césium [7], il a aussi été montré qu'il était possible d'obtenir des molécules froides dans l'état fondamental après émission spontanée des molécules photoassociées. Un tel processus ouvre la voie au domaine des molécules froides pour lesquelles les techniques de refroidissement par laser des atomes sont très difficilement transposables.

Les interactions atome-atome dans un gaz atomique à très basse température ont un comportement très spécifique. A cause de leur faible vitesse ($v < 1 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$), les atomes peuvent rester en interaction pendant des temps "très longs". La durée de vie d'une collision peut en effet atteindre quelques dizaines ou centaines de nanosecondes et donc dépasser la durée de vie de l'état excité. De très nombreuses questions peuvent être soulevées. En particulier dans quelles conditions des effets à plusieurs corps peuvent-ils se manifester? Toute grandeur physique des gaz peut être présentée sous la forme d'une série suivant les puissances de la densité où les termes non linéaires s'obtiennent en tenant compte des interactions à deux corps, à trois corps, etc... On considère en général que les effets à plusieurs corps (trois et plus) dans un gaz sont négligeables et que les processus d'échange d'énergie entre les atomes sont régis essentiellement par des interactions binaires.

Le transfert résonnant d'énergie dû aux collisions entre les atomes de Rydberg comme

donné par exemple par la réaction:



dans un jet effusif à température de l'ordre de 400 – 500 K est un exemple très riche pour l'étude des collisions du fait que l'on peut jouer avec les conditions de résonance (où l'accord à résonance est obtenu à l'aide d'un faible champ électrique) [8]. En plus les atomes de Rydberg, à cause de leur grande taille et par conséquent des grands moments dipolaires associés sont des objets idéaux pour l'étude des collisions entre les atomes régies par une interaction de type dipôle-dipôle¹. L'étude des collisions résonnantes entre les atomes de Rydberg a montré des valeurs pour les paramètres d'impact considérables $\sim 1 \mu\text{m}$ et des temps de collision très longs $\sim 5 \text{ ns}$, tout à fait exceptionnels pour des collisions thermiques. Ces valeurs sont dues aux très grands moments dipolaires, μ , des atomes de Rydberg qui correspondent aux transitions: $np \rightarrow ns$ et $np \rightarrow (n+1)s$ et qui varient comme n^2 (n : nombre quantique principal). Ces collisions résonnantes ont été interprétées théoriquement [10]: elles sont le résultat d'une interaction purement dipôle-dipôle entre les deux atomes. Ce processus dépend de la vitesse relative de la collision, dont le paramètre d'impact et le temps de collision croissent lorsque cette vitesse diminue. La dépendance suivant la vitesse relative de collision a été étudiée pour des faibles vitesses en utilisant un jet atomique avec sélection de vitesse mécanique [11]. Ces résultats peuvent-ils être généralisés pour les vitesses extrêmement faibles, comme celles obtenues pour des assemblées d'atomes refroidis par laser?

Le développement des techniques de refroidissement d'atomes et en particulier le développement des pièges magnéto-optiques permettent l'obtention d'échantillon d'atomes froids avec une densité de l'ordre de $\sim 10^{11} \text{ cm}^{-3}$. En excitant de tels atomes dans un état de Rydberg on obtient une assemblée d'atomes de Rydberg froids à une température par exemple de l'ordre de 100 – 200 μK . Si on considère maintenant le processus précé-

¹Les termes multipolaires de l'interaction entre les atomes de Rydberg peuvent être négligés [9].

dent de collision résonnante entre atomes de Rydberg, le temps de collision entre deux atomes doit devenir tout à fait considérable. En effet la vitesse relative de collision est de l'ordre de $10 \text{ cm}\cdot\text{s}^{-1}$, on trouve des paramètres d'impact de l'ordre $40 \mu\text{m}$ et des temps de collision de près de $500 \mu\text{s}$. Ces quantités excèdent respectivement la distance moyenne entre atomes proches voisins ($\overline{R} \sim 20 - 5 \mu\text{m}$ pour les densités d'atomes de Rydberg de $10^8 - 10^{10} \text{ cm}^{-3}$) et également l'inverse de l'interaction moyenne entre proches voisins $(\mu^2/\overline{R}^3)^{-1} \sim 0.4 \mu\text{s}$ pour une densité de 10^{10} cm^{-3} . Il est clair qu'on atteint dans ces conditions un régime où les effets à plus de deux corps devraient clairement se manifester. La durée de vie d'atomes de Rydberg pourtant importante ($\sim 10 \mu\text{s}$ pour $n = 20$) est cependant beaucoup plus faible que le temps caractéristique de collision. La question qui se pose alors est: les effets à plus de deux corps auront-ils le temps de se manifester?

La durée de vie des atomes de Rydberg impose de réaliser les expériences en un temps typique t_{exp} de l'ordre de quelques microsecondes. Le fait que les atomes dans le piège ont des vitesses très faibles ($v \sim 10 \text{ cm}\cdot\text{s}^{-1}$) permet de considérer ces atomes comme pratiquement immobiles pendant le temps d'évolution libre du système t_{exp} , car le déplacement vt_{exp} des atomes est de l'ordre de grandeur de la taille des atomes de Rydberg ($\sim 100 \text{ nm}$ pour $n = 20$). Pour les densités d'atomes de Rydberg, déjà considérées $10^8 - 10^{10} \text{ cm}^{-3}$, les déplacements des atomes sont de plus d'un ordre de grandeur plus petit que la distance moyenne entre les atomes proches voisins ($20 - 5 \mu\text{m}$). En même temps la longueur d'onde de de Broglie associée aux atomes froids est de l'ordre de quelques dizaines de nanomètres. Il est manifeste que le mouvement des atomes peut d'une part être considéré comme classique et d'autre part être négligé durant le temps d'évolution libre du système. De ces considérations vient l'appellation pour ce gaz atomique: *gaz de Rydberg gelé*. On s'attend pour un tel système à des propriétés qui s'apparenteront alors davantage à celles d'un solide, et plus précisément d'un solide amorphe à cause de la répartition stochastique des atomes. Ce système original ne présente plus de phénomènes de collision. Néanmoins les atomes de Rydberg peuvent toujours interagir fortement par interaction dipôle-dipôle. Quel va être le comportement d'une telle assemblée d'atomes?

Des effets à N-corps sont-ils finalement susceptibles de se manifester?

Le but de ce mémoire consiste en l'étude expérimentale et théorique des propriétés d'un gaz de Rydberg gelé. En excitant à l'aide d'une impulsion laser les atomes d'un piège magnéto-optique à vapeur de césium dans un état de Rydberg, on réalise un échantillon d'atomes de Rydberg froids. Le processus élémentaire étudié est un processus d'échange résonnant d'énergie interne entre deux atomes de Rydberg par interaction dipôle-dipôle:

$$Cs_A [np_{3/2}] + Cs_B [np_{3/2}] \rightarrow Cs_A [ns_{1/2}] + Cs_B [(n+1)s_{1/2}]. \quad (1.2)$$

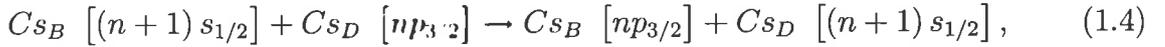
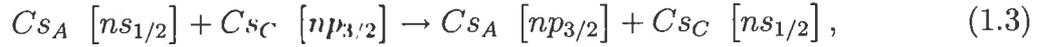
Ce type de processus est totalement similaire à celui présenté plus tôt pour le sodium (1.1). La résonance exacte s'obtient toujours à l'aide d'un petit champ Stark déplaçant les niveaux d'énergie de l'atome.

Ce mémoire comporte trois chapitres. Le premier concerne la description du montage expérimental d'un piège magnéto-optique de césium et l'étude expérimentale de son fonctionnement en piège magnéto-optique sombre (ou dark-SPOT). Au centre du piège les atomes dans le niveau sombre (en général c'est un niveau hyperfin du niveau fondamental de plus basse énergie) n'interagissent plus avec le champ du laser de refroidissement. Les effets liés à la diffusion multiple sont alors minimisés. Les limites de densité et de température peuvent, en principe, dans ce type de piège "peu dissipatif" être repoussées. Dans le cas du césium cependant nous verrons que l'avantage du piège sombre en terme de nombre d'atomes et densité n'est pas considérable.

Le deuxième chapitre de ce mémoire présente l'étude expérimentale des propriétés d'un gaz de Rydberg gelé de césium. Nous présentons en particulier une étude de la dynamique de l'échange d'énergie dans un tel gaz en fonction de la densité des atomes de Rydberg et en fonction du temps d'évolution libre du système (c'est le temps de l'expérience). La dépendance de la dynamique de l'échange d'énergie en fonction du désaccord avec la résonance (c'est à dire l'évolution des profils des raies des résonances), la dépendance des largeurs de ces résonances en fonction de la densité d'atomes de Rydberg ainsi que sa valeur mettent en évidence un comportement qui ne peut être simplement ana-

lysé en terme d'interaction binaire entre atomes proches voisins. Ce résultat est typique du comportement du gaz de Rydberg gelé et peut être considéré comme la signature des effets à plus de deux atomes. Une interprétation qui ne prendrait en compte que l'interaction binaire entre les atomes les plus proches voisins ne rend pas compte quantitativement des largeurs, en prédisant des valeurs deux ordres de grandeurs inférieures. De plus les changements de la forme des raies de résonances en fonction de la densité est particulièrement inattendue. Un tel système doit donc plutôt être compris comme un ensemble d'atomes où chaque atome interagit avec l'ensemble des atomes.

Le troisième chapitre est consacré à l'interprétation théorique des résultats expérimentaux. Pour comprendre les propriétés physiques observées nous avons développé un modèle où le rôle des atomes proches voisins reste primordial mais où l'évacuation des produits de réaction (1.2) par échange d'énergie entre atomes, c'est à dire les processus:



va modifier très sensiblement l'allure des spectres obtenus. Dans un modèle proposé on modélise le processus d'évacuation des produits de réaction par la diffusion. Dans ce modèle, la largeur des raies est expliquée en ne considérant qu'un petit nombre des paires d'atomes très proches et interagissant très fortement, typiquement se sont les paires d'atomes de distance inter-atomique de l'ordre de $1 \mu\text{m}$. Après la réaction des atomes de cette paire, les excitations $ns_{1/2}$ et $(n+1)s_{1/2}$ vont diffuser dans le milieu, permettant à cette paire de se réactiver et de fournir un deuxième couple d'excitation $ns_{1/2}$ et $(n+1)s_{1/2}$. Ce processus peut se renouveler plusieurs fois. Il présente une certaine analogie avec un processus de réaction chimique autocatalitique. En résumé les fluctuations rares des paires d'atomes très proches (le nombre de ces paires est de l'ordre d'un pour-cent) sont à l'origine de la largeur des raies observées tandis que la diffusion peut expliquer d'une part l'efficacité de la réaction (c'est à dire l'amplitude des raies) et d'autre part la

dépendance des profils des résonances avec la densité atomique dans un gaz de Rydberg gelé.

Chapitre 2

Piège magnéto-optique et piège magnéto-optique sombre de césium

2.1 Introduction

Ce chapitre est dévolu à la description de la source d'atomes froids utilisée. Elle est constituée d'un dispositif de piège magnéto-optique à vapeur de césium [12] que nous allons décrire. Le piège magnéto-optique est une technique maintenant très bien maîtrisée, permettant d'obtenir un échantillon dense d'atomes froids: la densité typique est de l'ordre de 10^{11} cm^{-3} pour une température de quelques centaines à dizaines de microKelvin. Un tel piège est utilisé comme une source d'atomes froids dans plusieurs applications en particulier pour des études de collisions ultra-froides [13]. Pour les expériences de collisions, la densité atomique et la température sont les caractéristiques essentielles à déterminer.

La densité atomique dans le piège est déterminée par deux processus. D'une part les collisions limitent le nombre d'atomes piégés: des collisions de différents types peuvent conduire à l'éjection des atomes hors du piège. Pour les pièges en cellule, dans le cas de pression de vapeur modérée ($10^{-9} - 10^{-8}$ Torr), les pertes d'atomes sont produites essentiellement par les collisions des atomes piégés avec les atomes "chauds" de la vapeur de l'atome considéré [12], [14]. D'autre part pour un nombre d'atomes donné, le mécanisme

principal limitant la densité des atomes dans le piège (en particulier pour des pièges contenant un grand nombre d'atomes) est lié à la force répulsive entre atomes, due à la réabsorption du rayonnement ou diffusion multiple [15], [16]. La diffusion multiple limite à la fois la possibilité d'augmenter la densité atomique et de réduire la température de l'échantillon d'atomes froids car l'excès de température dans les pièges par rapport à mélasse optique est aussi dû à la diffusion multiple dans le nuage comportant un grand nombre d'atomes [17], [18]. Ces effets limitant le nombre d'atomes piégés, la densité atomique et la température sont liés au fait que les atomes dans le piège sont couplés en permanence avec le rayonnement des faisceaux de piégeage¹. Pour les atomes alcalins l'utilisation de piège sombre dans lequel la plupart des atomes se trouvent dans le sous-niveau hyperfin (en général un niveau de plus basse énergie), qui n'est pas couplé avec le rayonnement du laser de piégeage, permet de réduire à la fois les pertes d'atomes piégés et la diffusion multiple dans le nuage atomique. La réduction de la diffusion multiple donne en principe la possibilité d'augmenter la densité atomique dans le piège [19] et en même temps de réduire la température.

La mise en place du montage expérimental du piège a été achevée au début de cette thèse et la caractérisation du piège magnéto-optique a été effectuée à ce moment. Le fonctionnement du piège magnéto-optique en régime du piège sombre ou creux ou "dark SPOT" a ensuite été particulièrement étudié. Bien qu'il ne fut pas utile pour les expériences avec les atomes de Rydberg froids, il est néanmoins décrit en détail à la fin de ce chapitre.

Ce chapitre comporte quatre paragraphes. Le premier paragraphe (2.2) rappelle le principe de fonctionnement du piège magnéto-optique. Le second paragraphe (2.3) concerne le montage expérimental, le troisième (2.4) les caractéristiques du piège magnéto-optique. Finalement le dernier paragraphe(2.5) décrit le fonctionnement du piège sombre. La partie du montage expérimental qui concerne les atomes de Rydberg proprement dit (excitation,

¹Dans le cas des collision entre les atomes piégés et les atomes de vapeur de cet atome donné la section efficace de collision est plus importante pour un atome excité que dans un état fondamental.

détection, acquisition, etc...) est décrite dans le chapitre suivant.

2.2 Principe de fonctionnement du piège magnéto-optique

Bien que le piège magnéto-optique que nous utilisons dans nos expériences est un système à trois dimensions on peut comprendre simplement les mécanismes physiques de son fonctionnement sur un exemple à une dimension. Pour cette raison et pour la simplicité de l'exposé nous nous plaçons dans la suite dans une situation à une dimension. De même nous nous limitons ici à la description classique, qui fait apparaître la notion de la force associée à l'action de l'onde électromagnétique sur l'atome.

Pour donner une idée sommaire du principe de refroidissement des atomes par le laser, décrivons tout d'abord la force de pression de radiation exercée sur un atome par un faisceau laser. Considérons pour cela un atome à deux niveaux, dont la fréquence de transition atomique est ω_0 , en interaction avec le rayonnement d'un faisceau laser de fréquence ω peu différente de ω_0 et de vecteur d'onde $|\mathbf{k}| = \omega/c$. En absorbant un photon de l'onde électromagnétique, l'atome initialement dans son état fondamental, subit une transition de l'état fondamental vers l'état excité et acquiert une impulsion $\hbar\mathbf{k}$. Dans des conditions de faible intensité de faisceau laser qui sont celles du refroidissement, la désexcitation se produit essentiellement par émission spontanée. Après émission spontanée d'un photon de vecteur d'onde \mathbf{k}_{sp} ($|\mathbf{k}_{sp}| = \omega/c$) l'atome restitue l'énergie initiale acquise $\hbar\omega$ et perd en impulsion une quantité $\hbar\mathbf{k}_{sp}$. Au cours d'un cycle absorption-émission spontanée l'atome acquiert donc en impulsion la quantité $\hbar(\mathbf{k} - \mathbf{k}_{sp})$. Si l'on considère maintenant un grand nombre de cycles absorption-émission spontanée, la nature aléatoire de l'émission spontanée (pour une direction donnée nous avons la même probabilité que le photon soit émis dans un sens ou dans l'autre) conduit à une valeur moyenne pour le changement d'impulsion dû à l'émission spontanée égale à zéro. Le changement d'impulsion $\Delta\mathbf{P}$ de l'atome au cours des plusieurs cycles absorption-émission spontanée

est dû essentiellement à l'impulsion acquise par atome en absorbant N_{ph} photons. On a $\Delta\mathbf{P} = N_{ph}\hbar\mathbf{k}$. Par conséquent la force de pression de radiation exercée sur un atome par le faisceau laser est donnée par:

$$\mathbf{F} = \frac{dN_{ph}}{dt}\hbar\mathbf{k}, \quad (2.1)$$

où dN_{ph}/dt est le nombre de cycles absorption-émission spontanée par unité du temps. Pour un atome à deux niveaux cette force s'exprime en termes de paramètre de saturation s de manière suivante [20]:

$$\mathbf{F} = \hbar\mathbf{k}\frac{\Gamma}{2}\frac{s}{s+1}, \quad (2.2)$$

où $\Gamma^{-1} = \tau_{sp}$ est la durée de vie radiative de niveau excité. Dans le cas de forte saturation $s \gg 1$ la force de pression de radiation atteint sa valeur maximale:

$$\mathbf{F}_{\max} = \hbar\mathbf{k}\frac{\Gamma}{2}. \quad (2.3)$$

On notera que cette force est considérable de l'ordre de 10^4 à 10^5 fois la force qu'exerce l'attraction terrestre au sol.

2.2.1 Mélasse optique Doppler

Voyons maintenant les mécanismes de refroidissement d'atomes par laser, ou mélasses optiques. Le premier mécanisme physique proposé en 1975 par T. Hänsch et A. Schawlow [21] et D. Wineland et H. Dehmelt [22] pour le refroidissement d'atomes par laser se comprend aisément en considérant l'effet Doppler. Pour simplifier, la suite de l'exposé concernant le piège magnéto-optique, nous considérons tout de suite ici un atome à deux niveaux dont les moments cinétiques sont respectivement $J = 0$ et $J' = 1$. Cet atome est placé dans le champ électromagnétique de deux faisceaux laser, qui se propagent en sens inverse suivant l'axe Oz et avec les polarisations respectives σ^+ et σ^- (l'axe de quantification du champ étant l'axe Oz). La fréquence des faisceaux laser ω est maintenant

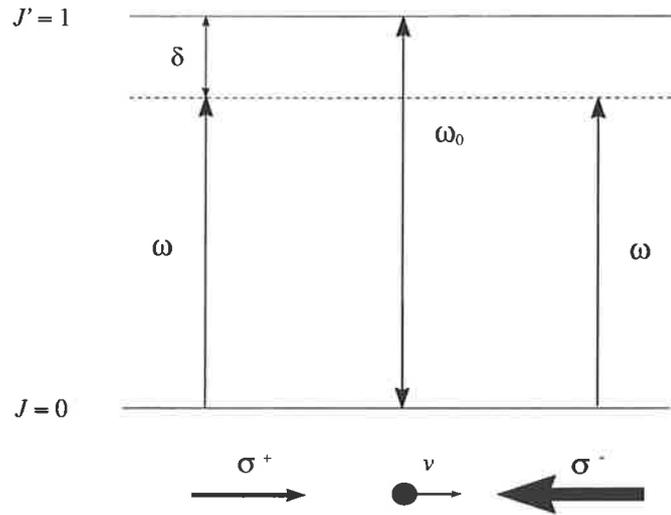


Figure 2-1: Schéma de principe de mélasse optique à une dimension pour une transition $J = 0 \rightarrow J' = 1$.

désaccordée de la fréquence de la résonance atomique et décalée vers le rouge par rapport à cette transition d'une valeur fixe $\delta = \omega - \omega_0 < 0$ (figure 2-1). Nous considérons que la largeur spectrale du faisceau laser est plus petite que les largeurs caractéristiques de ce système (en particulière la largeur naturelle de l'état excité). Du fait de l'effet Doppler un atome en mouvement, dont la vitesse est v , absorbe préférentiellement un photon de l'onde laser se propageant en sens opposé à son mouvement plutôt que de l'onde co-propageant. Il en résulte une force opposée en direction au mouvement de l'atome, qui est une force dissipative, qui réduit l'énergie cinétique d'atome. En se plaçant en régime de champ faible (cas $I/I_0 \ll 1$, où I_0 est l'intensité de saturation), on montre que la force qui s'exerce sur l'atome est la somme des forces de pression de radiation exercées par chaque de faisceau laser $F_+ + F_-$. En remplaçant la valeur dN_{ph}/dt dans l'équation (2.1) par une expression calculée [20] on obtient l'expression suivante pour la force exercée sur un atome:

$$F_{\pm} = \pm \hbar k \frac{\Gamma}{2} \frac{I/I_0}{1 + [2(\delta \mp kv)/\Gamma]^2}, \quad (2.4)$$

où les signes \pm correspondent respectivement à la force associée à l'onde se propageant dans une direction positive ou négative par rapport au mouvement de l'atome. Ici I est l'intensité de chaque faisceau laser et Γ est la taux d'émission spontanée. Nous obtenons dans le cas où $kv \ll \Gamma$ et $kv \ll |\delta|$ l'expression suivante pour la force totale:

$$F = 4\hbar k^2 v \frac{I}{I_0} \frac{2\delta/\Gamma}{[1 + (2\delta/\Gamma)^2]^2}. \quad (2.5)$$

On voit que pour le $\delta < 0$ cette force est une force de friction qui peut se mettre sous la forme $F = -\alpha v$ où le coefficient de friction α selon (2.5) est donné par:

$$\alpha = -4\hbar k^2 \frac{I}{I_0} \frac{2\delta/\Gamma}{[1 + (2\delta/\Gamma)^2]^2}. \quad (2.6)$$

Le coefficient de friction est proportionnel à l'intensité laser et la friction maximale peut être obtenue pour le décalage de $|\delta| = \Gamma/2\sqrt{3}$. Le mouvement des atomes dans ce cas ressemble au mouvement d'une particule dans un milieu visqueux, d'où l'appellation pour un tel système de "mélasse optique".

2.2.2 Principe du piège magnéto-optique

Avant d'aborder les mécanismes de refroidissement sub-Doppler, nous allons donner le principe du piège magnéto-optique. Pour former un piège magnéto-optique on applique au système précédent, donnant lieu à une mélasse optique, un gradient de champ magnétique. Le champ magnétique varie linéairement suivant l'axe z et il est égal à zéro au point $z = 0$:

$$\mathbf{B} = \frac{\partial B}{\partial z} \mathbf{z}. \quad (2.7)$$

Sous l'effet du champ magnétique la dégénérescence du niveau supérieur ($J' = 1$) est levée par rapport aux sous-niveaux Zeeman $m_J = 0, \pm 1$, qui se déplacent en énergie d'une quantité égale à:

$$\Delta E = \mu_B m_J g \frac{\partial B}{\partial z} z, \quad (2.8)$$

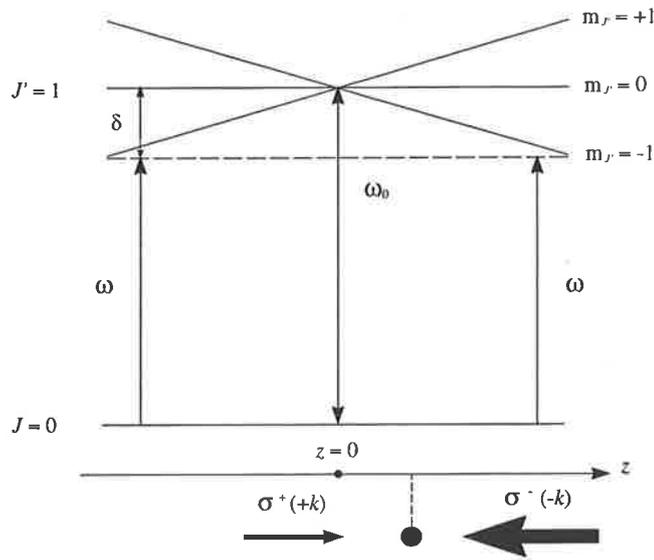


Figure 2-2: Schéma de principe de piège magnéto-optique à une dimension pour une transition $J = 0 \rightarrow J' = 1$.

où μ_B est le magnéton de Bohr et g est le facteur de Landé du niveau excité (figure 2-2). Supposons tout d'abord que l'atome a une vitesse nulle ($v = 0$). On voit sur la figure 2-2 que lorsque l'atome se trouve dans une position avec $z > 0$, il est davantage en résonance pour la transition $m_J = 0 \rightarrow m'_J = -1$ que pour la transition $m_J = 0 \rightarrow m'_J = +1$. Donc un atome dans cette position spatiale absorbe avec une probabilité plus grande un photon de l'onde laser de la polarisation σ^- . Il acquiert une impulsion dirigée vers le centre du piège ($z = 0$). Le déséquilibre des forces de pression de radiation exercées par chacune des ondes produit une force dirigée vers le centre de piège. Considérons maintenant un atome avec une vitesse \mathbf{v} situé à une position \mathbf{z} arbitraire. Cet atome se trouve en résonance avec l'une des ondes σ^+ ou σ^- si la condition suivante de résonance est remplie:

$$\omega - \omega_0 = \mathbf{k} \left(\mathbf{v} + \frac{\beta \mathbf{z}}{|\mathbf{k}|} \right), \quad (2.9)$$

où β est donné par (voir Eq. (2.8)):

$$\beta = \frac{\mu_B g}{\hbar} \frac{\partial B}{\partial z}. \quad (2.10)$$

La force exercée sur l'atome est maintenant $F' = F'_+ + F'_-$ (cas $I/I_0 \ll 1$) avec:

$$F'_\pm = \pm \hbar k \frac{\Gamma}{2} \frac{I/I_0}{1 + [(2\delta \mp kv \mp \beta z)/\Gamma]^2}. \quad (2.11)$$

En développant l'expression de cette force au voisinage de $v = 0$ et $z = 0$ on obtient dans le cas où $kv \ll |\delta|$ et $\beta z \ll |\delta|$:

$$F' = -\alpha v - \kappa z. \quad (2.12)$$

Avec l'expression de la force calculée ci-dessus, on montre que les atomes subissent une force de rappel, qui comprime le nuage atomique. La force totale appliquée sur un atome est maintenant composée de deux forces: une force de friction (refroidissement dû à la mélasse optique) et une force de rappel (la compression). Le coefficient de friction α est le même que pour la mélasse optique (Eq. (2.6)) et le coefficient de rappel κ (ou la constante de raideur) est donné par:

$$\kappa = -4\mu_B k g \frac{\partial B}{\partial z} \frac{I}{I_0} \frac{2\delta/\Gamma}{[1 + (2\delta/\Gamma)^2]^2}. \quad (2.13)$$

L'équation de mouvement d'un atome de masse M dans le piège (2.12) correspond à l'équation d'oscillateur amorti:

$$F = M \ddot{z} = -\alpha \dot{z} - \kappa z, \quad (2.14)$$

avec une fréquence des oscillations libres en absence de friction donnée par:

$$\frac{\kappa}{M} = \omega_0^2. \quad (2.15)$$

Suivant les valeurs des coefficients de friction α et de rappel κ on peut distinguer des différents régimes d'amortissement. Pour $\alpha/2M > \omega_0$ le mouvement consiste en une décroissance exponentielle de z sans oscillation vers la position d'équilibre (centre du piège). Nous avons dans ce cas un régime sur-amorti. Lorsque $\alpha/2M < \omega_0$ (régime sous-amorti) un atome subit plusieurs oscillations amorties autour de la position d'équilibre avant d'être confiné au centre du piège. Le cas particulier de mouvement apériodique sans oscillation a lieu lorsque $\alpha/2M = \omega_0$. Les conditions de fonctionnement des pièges correspondent le plus souvent au régime sur-amorti.

2.2.3 Température dans les mélasses optiques. Mécanismes de refroidissement sub-Doppler

La température limite pour une mélasse optique est donnée par la vitesse moyenne quadratique des atomes qui s'établit lors de l'équilibre des processus de refroidissement et de réchauffement. La force de friction que nous avons calculée (Eq. (2.5)) induit une réduction de l'énergie cinétique d'un atome de taux de:

$$\left(\frac{dE}{dt}\right)_{ref} = Fv = -\alpha v^2, \quad (2.16)$$

où α est donné par l'équation (2.6). Les effets de réchauffement des atomes sont liés à la nature aléatoire du processus d'émission spontanée mais aussi à la valeur finie de l'énergie de recul $E_R = (\hbar k)^2 / 2M$ (où M est une masse de l'atome). Lorsque la vitesse des atomes tend vers zéro en moyenne, un mécanisme de réchauffement va se produire. Ce mécanisme a deux origines. D'une part lors de l'émission spontanée l'atome effectue un mouvement aléatoire dans l'espace des impulsions avec un pas égal à $\hbar k$. D'autre part les atomes peuvent absorber avec la même probabilité un photon d'onde se propageant en sens positif ou négatif. De ce fait chaque absorption change l'impulsion de l'atome de manière aléatoire avec un pas $\hbar k$. Ces deux processus peuvent être présentés en terme de diffusion dans l'espace des impulsions dont le coefficient de diffusion pour l'impulsion

peut être représenté sous la forme $D_p = D_{spont} + D_{laser}$, où D_{spont} dénote la contribution dans la diffusion due à l'émission spontanée et D_{laser} celle due aux fluctuations dans l'absorption. Le coefficient de diffusion d'impulsion totale D_p est proportionnel au carré d'impulsion photonique et le nombre de cycles absorption-émission spontanée [23]:

$$\frac{d}{dt} (p^2) = 2\hbar^2 k^2 \frac{dN_{ph}}{dt} = 2D_p. \quad (2.17)$$

Le taux de réchauffement dû à ces mécanismes dans le cas de faible intensité laser ($I/I_0 \ll 1$) et pour des conditions $kv \ll |\delta|$ et $kv \ll |\Gamma|$ est [23]:

$$\left(\frac{dE}{dt}\right)_{rech} = \frac{D_p}{M} = \frac{\hbar^2 k^2}{M} \Gamma \frac{I/I_0}{1 + (2\delta/\Gamma)^2}. \quad (2.18)$$

A l'équilibre en considérant que les effets de refroidissement et réchauffement se compensent ($(dE/dt)_{rech} + (dE/dt)_{ref} = 0$), en utilisant la relation $k_B T/2 = Mv^2/2$ et l'équation (2.6), on obtient une température pour une mélasse optique à une dimension:

$$k_B T = \frac{D_p}{\alpha} = \frac{\hbar\Gamma}{4} \frac{1 + (2\delta/\Gamma)^2}{2|\delta|/\Gamma}. \quad (2.19)$$

Pour une valeur de désaccord de $\delta = -\Gamma/2$ une température minimale obtenue est [24], [23]:

$$k_B T_D = \frac{1}{2} \hbar\Gamma. \quad (2.20)$$

La température T_D est appelée la température limite Doppler. La température Doppler pour le césium est $T_D \simeq 125 \mu\text{K}$. On remarque que la valeur de désaccord correspondant à la température minimale est différente de celle correspondant au maximum pour le coefficient de friction (2.6).

Dans le cas d'atomes réels possédant des structures multi-niveaux importantes (plusieurs sous-niveaux Zeeman) et pour des vitesses très faibles, correspondantes à des températures Doppler, un autre mécanisme de refroidissement, dit sub-Doppler, peut se produire. Il conduit à des forces de frictions plus importantes et par conséquent à des

températures encore plus faibles. Des températures plus basses que T_D approchant des températures T_R , correspondant à quelques fois l'énergie de recul:

$$k_B T_R \sim 10 \frac{\hbar^2 k^2}{2M}, \quad (2.21)$$

ont été obtenues expérimentalement [25], [26], [27]. L'explication de ces températures très basses a été proposée dans [27], [28], [29]. Ces nouvelles théories prennent en compte la structure multi-niveaux des niveaux de l'atome et le fait que la polarisation de l'onde électromagnétique change en fonction de la position spatiale. En fonction de la polarisation des faisceaux laser de refroidissement deux mécanismes de refroidissement sub-Doppler différents ont ainsi été discutés: le refroidissement Sisyphes dû au mouvement non-adiabatique de l'atome à plusieurs niveaux dans un gradient de polarisation du champ électromagnétique créé dans la configuration $\pi_x - \pi_y$ de polarisation de faisceaux laser se propageant suivant l'axe z , et le refroidissement créé dans la configuration $\sigma^+ - \sigma^-$, où à cause du mouvement atomique avec une vitesse très faible, il apparaît une orientation atomique dans le niveau fondamental. La prise en compte de ces mécanismes qui se produisent à faible vitesse, permet de comprendre la force de friction plus importante conduisant à des températures plus basses que la température Doppler, mais correspondant à une plage de capture plus petite. Nous n'allons exposer ici que l'image physique de ces effets sur un exemple de refroidissement Sisyphes. Les détails de ces deux mécanismes peuvent être trouvés dans la référence [30].

Le mécanisme de refroidissement Sisyphes est lié au fait que l'atome interagit avec une onde électromagnétique présentant un gradient de polarisation. En particulier un tel gradient est toujours présent dans des configurations de mélasse à trois dimensions. Le gradient de polarisation et le fait que les coefficients de Clebsch-Gordan sont différents pour les transitions entre les niveaux couplés par des rayonnements de polarisation différente, induisent des modulations des déplacements lumineux des sous-niveaux Zeeman du fondamental. Plus précisément pour le cas de la transition $J_g = 1/2 \rightarrow J_e = 3/2$ étudiée dans la référence [30] les énergies des sous-niveaux $\pm m_{J_g} = \pm 1/2$ déplacés par

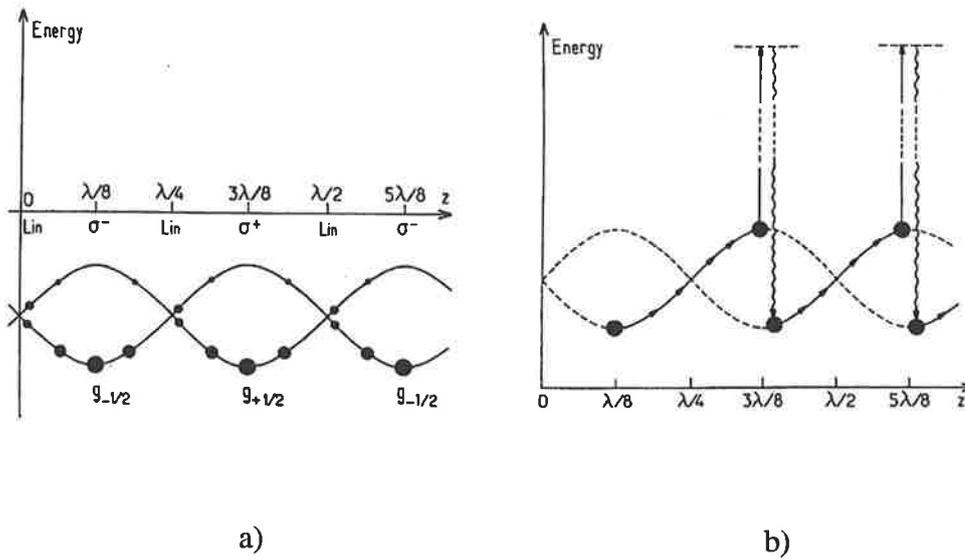


Figure 2-3: a) Les déplacements lumineux en énergies et les populations stationnaires (représentées par les cercles) pour l'état fondamental $J_g = 1/2$ dans la configuration lin \perp lin. b) L'effet Sisyphus dans la configuration lin \perp lin (voir texte). (Figures extraites de [30]).

la lumière oscillent suivant l'axe de propagation des faisceaux laser. Les déplacements lumineux sont les mêmes pour les sous-niveaux $\pm m_{J_g}$ aux points où la polarisation totale est linéaire ($0, \lambda/4, \lambda/2, \dots$). Aux points ($\lambda/8, 3\lambda/8, \dots$) où la polarisation est circulaire σ^+ ou σ^- (on suppose que les amplitudes des ondes sont égales) les déplacements sont plus grands pour $+m_{J_g}$ ou $-m_{J_g}$ respectivement (figure 2-3 (a)). En se déplaçant dans le milieu l'atome voit un changement de polarisation et par conséquent un changement de déplacement lumineux. Par exemple, un atome initialement dans l'état $-m_{J_g}$ au point $\lambda/8$ en se déplaçant vers les z positifs acquiert de l'énergie potentielle et respectivement perd de l'énergie cinétique. L'atome monte une colline de potentiel (figure 2-3 (b)). A cause du pompage optique l'atome peut effectuer une transition via l'état excité vers l'état $+m_{J_g}$. Les probabilités d'absorption d'un photon sont nulles aux minimums de potentiel et maximales aux maximums de potentiel lumineux. Il en résulte une dissipation de l'énergie dans un processus Raman spontané anti-Stokes. Pour pouvoir être refroidi par ce processus la vitesse de l'atome doit être inférieure à une valeur correspondant à

une relation suivante:

$$kv \sim \frac{1}{\tau_p}, \quad (2.22)$$

où τ_p est le temps caractéristique de pompage optique entre les sous-niveaux Zeeman du niveau fondamental. Cette relation détermine la plage de capture en vitesse pour le refroidissement sub-Doppler qui est proportionnelle dans ce cas à l'intensité laser mais reste plus petite que dans le cas du refroidissement Doppler:

$$kv \sim \Gamma. \quad (2.23)$$

La condition (2.22) est aussi valable pour l'autre mécanisme de refroidissement sub-Doppler, créé dans la configuration des polarisations $\sigma^+ - \sigma^-$.

Comme nous l'avons précisé plus haut les deux mécanismes sub-Doppler sont importants seulement pour des vitesses très faibles. Les atomes sont d'abord refroidis par le mécanisme Doppler et ensuite par les mécanismes sub-Doppler, qui conduisent à des températures très basses. Sans entrer dans le détail des calculs, nous donnons les expressions analytiques obtenues dans [30] pour les coefficients de friction dans les deux mécanismes de refroidissement sub-Doppler:

$$\alpha = \frac{3\delta}{\Gamma} \hbar k^2 \quad (2.24)$$

pour la configuration $\pi_x - \pi_y$ et

$$\alpha = \frac{60}{175 + (2\delta/\Gamma)^2} \hbar k^2 \quad (2.25)$$

pour la configuration $\sigma^+ - \sigma^-$. Dans le cas du refroidissement sub-Doppler, les coefficients de friction sont, contrairement à celui obtenue dans le mécanisme Doppler, indépendants de l'intensité laser (comparer avec Eq. (2.6)) tandis que la plage de capture est proportionnelle à l'intensité du rayonnement. On remarque la différence entre les deux mécanismes sub-Doppler: dans le cas de la configuration $\sigma^+ - \sigma^-$ le coefficient de friction atteint sa va-

leur maximale pour le désaccord $\delta = -\sqrt{5/4}\Gamma$, tandis que dans le cas de refroidissement Sisyphe (configuration $\pi_x - \pi_y$) le coefficient de friction est proportionnel au désaccord en contraste avec le refroidissement Doppler. En utilisant l'expression analytique pour le coefficient de diffusion D_p obtenue dans la référence [30] et les coefficients de friction donnés par les équations (2.24) et (2.25) on trouve une température de mélasse à une dimension [30]:

$$k_B T = \frac{D_p}{\alpha} = \frac{\hbar\Gamma I/I_0}{(2|\delta|/\Gamma)} \left[\frac{29}{300} + \frac{254}{75} \frac{1}{1 + (2\delta/\Gamma)^2} \right] \quad (2.26)$$

pour la configuration $\sigma^+ - \sigma^-$ et

$$k_B T = \frac{D_p}{\alpha} = \frac{\hbar\Gamma I/I_0}{8(2|\delta|/\Gamma)} \quad (2.27)$$

pour la configuration $\pi_x - \pi_y$ dans le cas de grand désaccord $\delta \gg \Gamma$. Pour les deux mécanismes, la température est proportionnelle à l'intensité du champ laser et pour les grands désaccords $\delta \gg \Gamma$ inverse proportionnelle à δ .

Dans le cas de transitions plus complexes, ce qui est le cas des atomes réels, les coefficients de friction sont plus importants et peuvent conduire à des températures plus basses. Ceci a été montré dans la référence [31] où a été étudiée par le calcul numérique la transition $J = 2- > J' = 3$ dans un cas à une dimension.

2.2.4 Température de piège magnéto-optique

La température dans un piège magnéto-optique peut aussi être plus faible que la limite Doppler. La fraction d'atomes proche du centre du piège, où le champ magnétique est nul, se trouve dans des conditions similaires à celles de la mélasse optique. Les atomes dans le piège peuvent alors être refroidis à des températures sub-Doppler. Des températures inférieures à la limite Doppler sont en effet obtenues dans des pièges magnéto-optiques de césium [32], [33] et rubidium [34] (de l'ordre d'une dizaine de microKelvin).

Cependant le fait que la densité atomique est plus importante dans un piège que dans une mélasse optique est en général responsable d'une température plus élevée dans

un piège que dans une mélasse. Dans le nuage dense des atomes piégés il existe un autre mécanisme - la diffusion multiple qui limite la température du piège magnéto-optique. Cet effet est lié à la réabsorption par un atome d'un photon émis spontanément par un autre. Cette réabsorption d'un photon "spontané" suivie à nouveau d'émission spontanée augmente la diffusion dans l'espace des impulsions. Dans ces conditions les atomes piégés ont des températures plus élevées que dans les mélasses formées avec les mêmes paramètres (polarisation des faisceaux, intensité laser, désaccord de la résonance). Expérimentalement, l'excès de la température par rapport à celle de la mélasse optique dû à l'effet de réabsorption varie avec la densité atomique constante comme la racine cubique du nombre d'atomes piégés [18], [17]:

$$T - T_{mél} \propto N^{1/3}. \quad (2.28)$$

Les autres sources possibles de réchauffement dues au gradient du champ magnétique ou aux collisions entre les atomes froids ont été examinées dans la référence [17]. On conclut que l'effet essentiel responsable de l'excès de la température dans le piège magnéto-optique est la diffusion multiple.

2.2.5 Piège magnéto-optique à trois dimensions

La généralisation à trois dimensions est relativement simple dans le cas de faible intensité laser pour le refroidissement Doppler [23]. L'effet total des six paires des faisceaux laser peut être obtenu par addition des forces exercées par chaque faisceau. Dans le cas des mécanismes sub-Doppler le passage à trois dimensions pour le piège ou la mélasse optique est beaucoup plus compliqué (voir par exemple la référence [35]) et il n'entre pas du tout dans le plan de cet exposé. On peut noter cependant que le remplissage du piège s'effectue essentiellement à travers le mécanisme Doppler, tandis que la température de piège (en absence de la diffusion multiple) peut être inférieure à la limite Doppler.

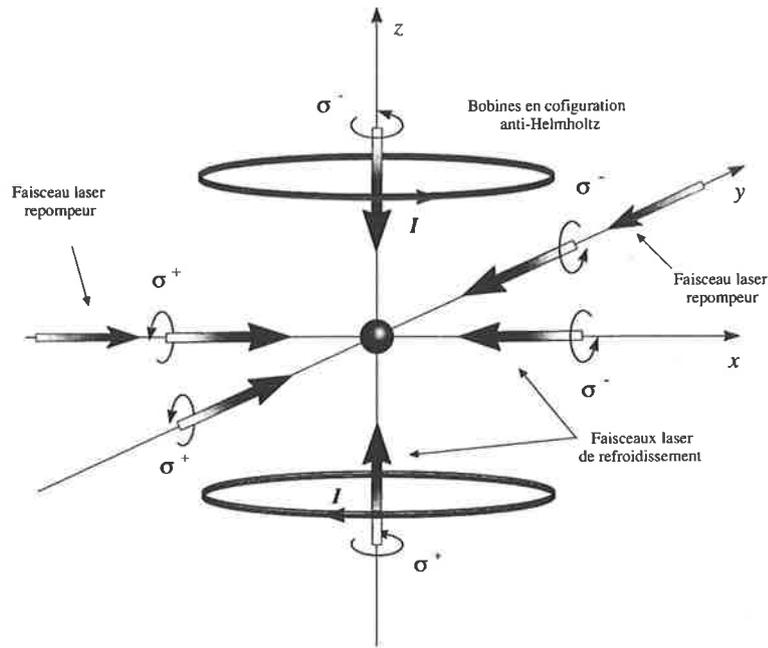


Figure 2-4: Schéma du piège magnéto-optique à trois dimensions. Les bobines de compensation du champ résiduel ne sont pas montrées ici.

2.3 Dispositif expérimental de piège magnéto-optique

Dans ce paragraphe nous allons décrire les éléments essentiels du montage expérimental du piège magnéto-optique. Le schéma du piège magnéto-optique à trois dimensions est présenté sur la figure 2-4. Les éléments du dispositif concernant les expériences avec des atomes de Rydberg (les grilles etc...) situés à l'intérieur de l'enceinte à vide sont présentés sur la figure 3-6 du chapitre suivant.

2.3.1 Enceinte à vide

Les conditions d'ultravide sont nécessaires pour un fonctionnement correct du piège magnéto-optique. Elles imposent l'utilisation des matériaux spécifiques, qui dégazent très peu dans des conditions de pression très faible. La partie métallique de l'enceinte est réalisée en acier inoxydable non magnétique. Pour atteindre le vide de l'ordre de 10^{-8} – 10^{-9}

mbar le pompage final s'effectue à l'aide de deux pompes ioniques après obtention d'un vide préliminaire à 10^{-6} mbar. Ces pompes ont été blindées pour réduire le champ magnétique qu'elles produisent. L'enceinte possède huit hublots dont six hublots pour les lasers de piégeage et le laser repompeur qui sont traités antireflet à 852 nm. Les deux autres hublots permettent le passage des faisceaux laser sonde et d'excitation Rydberg. L'observation de la fluorescence du piège est réalisée à travers l'un des hublot.

2.3.2 Les champs magnétiques

Pour réaliser le piège magnéto-optique, il est nécessaire d'utiliser deux dispositifs distincts de champ magnétique. Premièrement, pour compenser le champ magnétique terrestre et tout champ magnétique résiduel produit par les pompes ioniques (~ 1 Gauss dans la zone du piège) on utilise trois paires des bobines Helmholtz, une pour chaque dimension de l'espace. Ceci permet d'obtenir au centre du piège une zone homogène d'espace de champ magnétique nul. Deuxièmement, pour le fonctionnement du piège on a besoin d'appliquer un gradient de champ magnétique. Ce gradient de champ magnétique est créé à l'aide de deux bobines de rayon $R = 6$ cm séparées d'une distance de $2A = 12$ cm en position anti-Helmholtz (figure 2-4). Le champ magnétique produit dans cette configuration est quadripolaire avec les composantes axiale B_z et radiale B_ρ données par [36]:

$$B_z = b_1 z + b_3 \left(z^3 - \frac{3z\rho^2}{2} \right) + \dots, \quad (2.29)$$

$$B_\rho = -b_1 \frac{\rho}{2} + b_3 \left(-\frac{3\rho z^2}{2} + \frac{3\rho^3}{8} \right) + \dots, \quad (2.30)$$

où les coefficients sont:

$$b_1 = 3\mu NI \frac{AR^2}{(A^2 + R^2)^{5/2}}, \quad (2.31)$$

$$b_3 = b_1 \frac{5(4A^2 - 3R^2)}{6(A^2 + R^2)^2}. \quad (2.32)$$

Les bobines utilisées dans notre dispositif ont un nombre de spires $N = 103$. Pour un courant de 4 Ampères on obtient un gradient suivant l'axe z au centre du piège d'environ 12 Gauss/cm. Le gradient de champ magnétique est la moitié suivant les directions transverses. Le réchauffement des bobines, dû au courant assez important provoque un réchauffement de partie centrale de l'enceinte et le dégazage des parois. Pour éviter cet inconvénient un refroidissement par eau des bobines a été utilisé.

2.3.3 La source de césium

La source de césium est constituée d'un queusot rempli à l'origine de 1 gramme de césium. Ce queusot est séparé du reste de l'enceinte par une vanne ultravide. L'ouverture plus ou moins grande de la vanne permet de varier la quantité de vapeur de césium dans l'enceinte. La pression de vapeur de césium p à l'équilibre thermodynamique pour une température T est donnée par [37]:

$$\log_{10} p = -\frac{4042}{T} - 1.4 \log_{10} T + 11.176, \quad (2.33)$$

où T est en Kelvin et p est en Torr. Cette expression est valable pour le césium à l'état liquide et pour les températures de 299 K à 650 K. A température de 300 K la pression de vapeur de césium est de l'ordre de $1.7 \cdot 10^{-6}$ Torr. La valeur de pression, obtenue à l'aide de (2.33) caractérise la vapeur de césium dans la cellule à la température ambiante. Cette pression correspond à des densités d'atomes données par l'expression suivante:

$$n_{vap} = 133.322 \cdot 10^{-6} \frac{p}{k_B T}, \quad (2.34)$$

où n_{vap} est en cm^{-3} et p en Torr, k_B - est la constante de Boltzmann. Ces formules sont évidemment valables pour une cellule scellée mais pas dans le régime dynamique de l'expérience, où les pompes sont en fonctionnement permanent. Pour estimer la pression de vapeur de césium au centre de l'enceinte on compare les absorptions d'un faisceau laser dans une cellule scellée et au centre de l'enceinte. A l'aide de cette méthode on

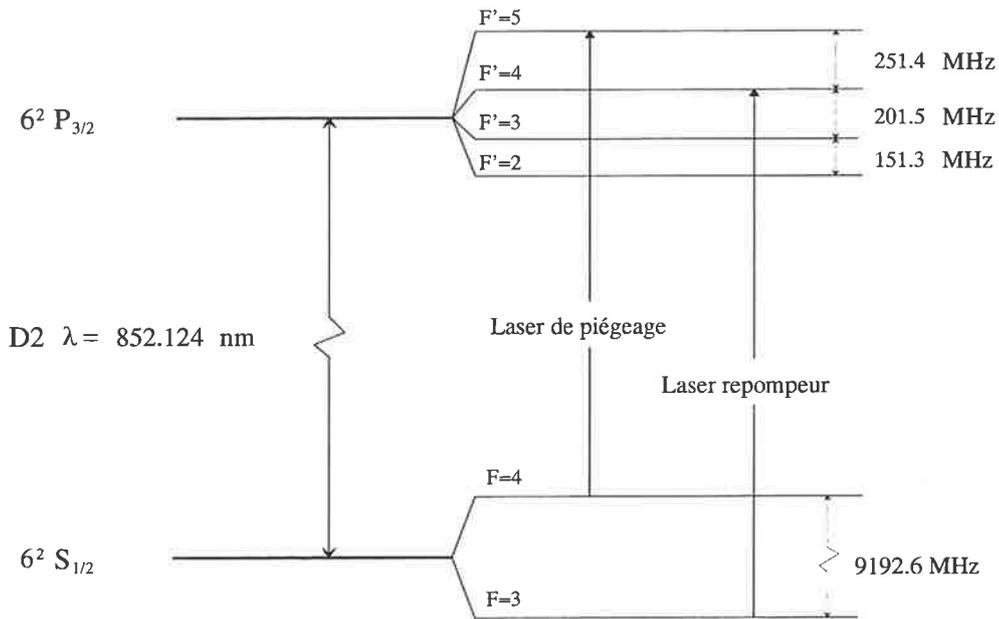


Figure 2-5: Diagramme d'énergie des sous-niveaux hyperfins de la transition atomique D₂ du césium et les transitions utilisées pour le refroidissement et le repompage.

obtient une pression de vapeur de césium typique dans nos expériences de $10^{-9} - 10^{-8}$ Torr correspondant à une densité atomique de vapeur n_{vap} d'environ $\sim 10^8$ atomes/cm³.

2.3.4 Les faisceaux lasers

Le piège magnéto-optique utilise pour son fonctionnement six faisceaux laser de refroidissement et de piégeage mais également des faisceaux de laser de repompage. Le piégeage et le repompage s'effectuent sur la transition atomique D₂ du césium avec une longueur d'onde de $\lambda \simeq 852$ nm (figure 2-5). Le système laser de piégeage est constitué d'une diode laser maître STC LT50A-034 de puissance 50 mW en fonctionnement en cavité étendue de type Littrow, asservie sur un signal d'absorption saturée correspondant au croisement des transitions $6S_{1/2} (F = 4) \rightarrow 6P_{3/2} (F' = 4)$ et $6S_{1/2} (F = 4) \rightarrow 6P_{3/2} (F' = 5)$. Le faisceau laser maître possède une largeur spectrale de l'ordre de 100 kHz et une puissance

d'environ 6 mW. Cette diode maître injecte une diode laser dite esclave SDL5412 de puissance 150 mW. Les faisceaux laser de refroidissement et de piégeage sont obtenus à partir d'un dispositif laser initial, désaccordé vers le rouge de $\delta \sim 9$ MHz (la largeur naturelle de niveau excité est de $\Gamma/2\pi \simeq 5.22$ MHz [38]) par rapport à la transition entre niveaux hyperfin $6S_{1/2}$ ($F = 4$) \rightarrow $6P_{3/2}$ ($F' = 5$) (figure 2-5). La fréquence du faisceau laser de piégeage est modifiée à l'aide d'un modulateur acousto-optique, situé après la diode laser esclave. Le faisceau laser de piégeage est ensuite séparé en 5 faisceaux (figure 2-6). Le refroidissement d'atomes s'effectue à l'aide de six faisceaux, qui pour quatre d'entre eux se propagent dans les sens opposés selon deux directions orthogonales dans le plan horizontal. Le cinquième faisceau se propage suivant la direction verticale du piège et est retro-réfléchi. Les polarisations σ^+ ou σ^- des faisceaux sont choisies convenablement (figure 2-4). Chacun de ces faisceaux a une puissance d'environ 1.5 mW et un diamètre de 8 mm (intensité de ~ 3 mW/cm²). Pendant le refroidissement les atomes subissent plusieurs cycles d'absorption et d'émission sur la transition $F = 4 \rightarrow F' = 5$. En réalité cette transition n'est pas complètement "fermée" à cause de la présence d'autres niveaux hyperfins ($F' = 3$ et $F' = 4$) qui peuvent être excités (figure 2-5). Une certaine proportion d'atomes retombent par pompage optique non résonant via le niveau excité $F' = 4$ sur le sous-niveau hyperfin du niveau fondamental $6S_{1/2}$ ($F = 3$). Pour compenser ces "fuites" d'atomes il est nécessaire d'utiliser un laser de repompage, qui est accordé sur la transition $F = 3 \rightarrow F' = 4$ (figure 2-5). Le laser de repompage permet de ramener par pompage optique les atomes sur le sous-niveau $F = 4$. Pour cela on utilise une diode laser SDL5712-DBR (largeur spectrale ~ 3 MHz) en fonctionnement libre, asservie sur le signal d'absorption de césium. En mode de fonctionnement normal du piège pour un repompage efficace il est suffisant d'utiliser un seul faisceau, mais le dispositif "de piège sombre" impose l'utilisation de deux faisceaux perpendiculaires pour le repompeur. Ces faisceaux sont superposés aux faisceaux de refroidissement par des cubes mélangeurs. L'intensité de chacun de ces faisceaux est de l'ordre de 4 mW/cm² en fonctionnement normal du piège (piège "brillant").

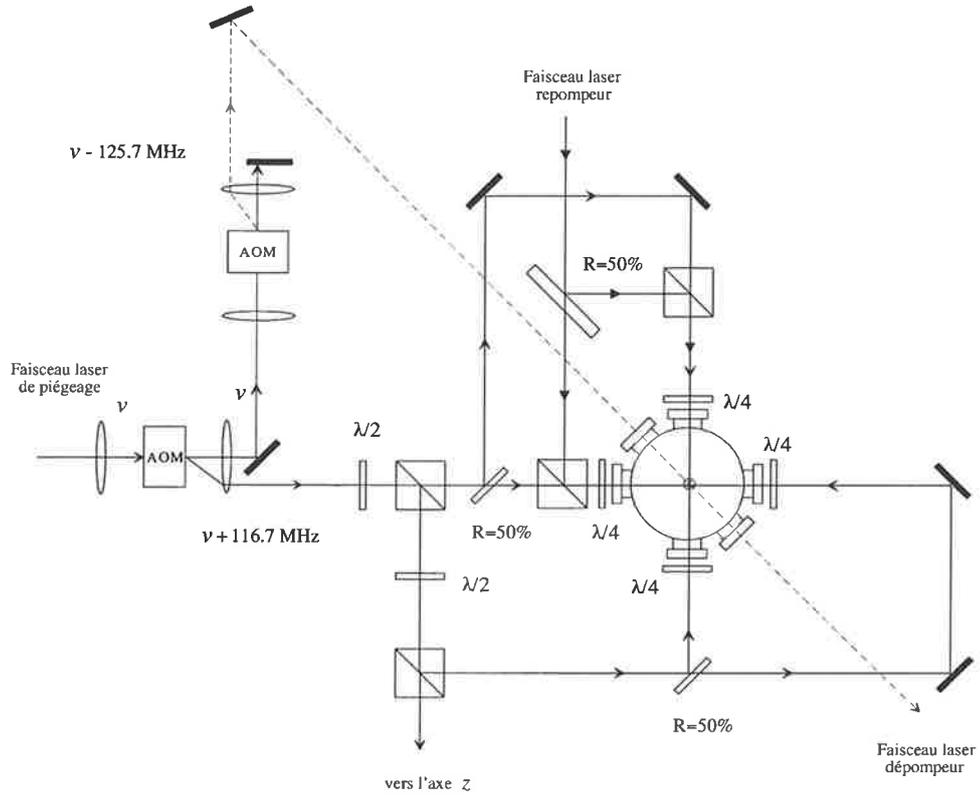


Figure 2-6: Schéma du dispositif expérimental du piège magnéto-optique dans le plan horizontal ($x - y$). Le faisceau laser dépompeur (ligne pointillée) est utilisé dans le piège magnéto-optique sombre.

2.4 Caractéristiques principales du piège magnéto-optique

2.4.1 Temps de chargement du piège.

Le nombre d'atomes piégés stationnaire s'établit lors de l'équilibre entre un taux de capture des atomes dans le piège R et le taux de pertes des atomes. L'équation bilan, qui décrit l'évolution du nombre d'atomes dans le piège est [39]:

$$\frac{dN}{dt} = R - N \left(\frac{1}{\tau_r} + \frac{1}{\tau_{Cs}} \right) - \beta \int n^2(\mathbf{r}, t) d^3r, \quad (2.35)$$

où τ_{Cs} est le temps de vie lié aux collisions des atomes piégés avec les atomes de césium à la température ambiante, τ_r est le taux de pertes dues aux collisions avec les autres gaz résiduels. Le dernier terme représente les pertes dues aux collisions entre les atomes piégés en présence du rayonnement, où $n(\mathbf{r}, t)$ est le profil de la densité atomique dans le piège et β est le taux de pertes. Le taux de capture R et le taux de pertes τ_{Cs}^{-1} dépendent de la pression de vapeur de césium dans l'enceinte. Pour une pression modérée qui est celle dans nos expériences ($10^{-9} - 10^{-8}$ Torr), τ_{Cs}^{-1} est plus grand, que le dernier terme de l'équation (2.35), ainsi que le taux de pertes τ_r^{-1} dû à la présence de gaz résiduels autres que le césium. Le taux de capture R qui est le nombre d'atomes de césium de masse M piégés par unité du temps pour une vitesse de capture v_c donnée est [12], [40], [14]:

$$R \approx n_{vap} d^2 \frac{v_c^4}{\bar{v}^3}, \quad (2.36)$$

où n_{vap} est la densité atomique de vapeur de césium, d est le diamètre de la section du volume de piégeage et $\bar{v} = \sqrt{8k_B T_{lab}/\pi M}$ est la vitesse moyenne des atomes de vapeur de césium (T_{lab} est ici la température ambiante ~ 300 K). Pour la vitesse de capture nous pouvons utiliser l'expression donnée dans la référence [14]: la valeur typique de vitesse de capture est la vitesse d'un atome qui peut être arrêté sur une distance égale au rayon du volume de piégeage r par une force de pression de radiation égale à la moitié de la force maximale (Eq. (2.3)):

$$v_c = \sqrt{r \frac{\hbar k \Gamma}{2M}}. \quad (2.37)$$

On obtient pour le césium et $r = 4$ mm correspondant à notre dispositif expérimental $v_c \simeq 15$ m/s. Le taux des pertes $1/\tau_{Cs}$ associées aux collisions des atomes piégés avec des atomes de vapeur de césium de température T_{lab} pour une vitesse relative moyenne de collision de \bar{v} est:

$$\tau_{Cs}^{-1} = n_{vap} \sigma \bar{v}, \quad (2.38)$$

où σ est la section efficace de collision conduisant à l'éjection d'atomes piégés hors du piège. Dans ces conditions le terme essentiellement responsable des pertes d'atomes est

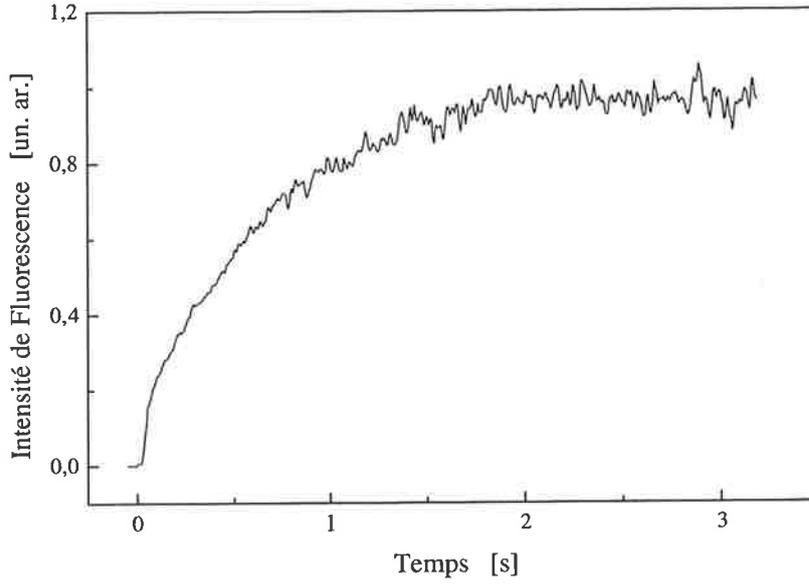


Figure 2-7: Intensité de fluorescence du piège magnéto-optique en fonction du temps après l'allumage des faisceaux laser de piégeage obtenu dans les conditions de pression de vapeur de césium de $\sim 10^{-8}$ Torr.

τ_{Cs}^{-1} et le nombre d'atomes piégés au cours du temps $N(t)$ suit la loi:

$$N(t) = N_{st} (1 - e^{-t/\tau_{Cs}}). \quad (2.39)$$

Il tend vers la valeur stationnaire $N_{st} = R\tau_{Cs}$, indépendante de la pression [12], [14]:

$$N_{st} \approx \frac{d^2}{\sigma} \left(\frac{v_c}{\bar{v}} \right)^4. \quad (2.40)$$

Ce régime, lorsque la valeur stationnaire N_{st} est indépendante de la pression, se réalise pour les pressions de vapeur de l'atome donné modérées $p \gtrsim 10^{-9}$ Torr, tandis que pour les pressions très faibles $p \simeq 10^{-13} - 10^{-10}$ Torr N_{st} dépend de la pression de vapeur (voir par exemple la référence [39] pour le cas de rubidium) car le taux des pertes dues par exemple aux collisions entre les atomes piégés en présence de rayonnement sont dans ce cas plus important. Selon l'équation (2.39) le remplissage du piège dans les conditions

de pression modérée suit la loi exponentielle, dont le temps caractéristique est déterminé par τ_{Cs} . Ce paramètre est le temps de chargement du piège et il peut être déterminé par la mesure de fluorescence des atomes du piège en fonction du temps écoulé après l'allumage des faisceaux laser de refroidissement. Les valeurs de temps de chargement, obtenues pour le piège de césium varient entre 0.06 s pour la pression d'environ 10^{-7} Torr et 4 s pour la pression d'environ $1.5 \cdot 10^{-9}$ Torr [12] ce qui correspond à une section efficace de collision σ de $2 \cdot 10^{-13}$ cm². Le temps de chargement du piège obtenu dans nos expériences est de 0.7 s pour une pression de $\sim 10^{-8}$ Torr (figure 2-7).

2.4.2 Nombre d'atomes piégés

Comme nous l'avons vu plus haut, le fonctionnement du piège magnéto-optique impose l'éclairage permanent des atomes par les faisceaux laser de refroidissement. La fluorescence des atomes dans le piège, induite par ce rayonnement, peut être utilisée pour une estimation du nombre d'atomes piégés, car le flux de photons émis est proportionnel à ce nombre d'atomes. Pour cela nous avons utilisé une photodiode PHOTOPS UDT-555D étalonnée, permettant de détecter les puissances de quelques nW à 1 mW avec une précision de l'ordre de 1% [41]. Cette photodiode de surface de 1 cm² a été installée devant un hublot, situé de 125 mm de piège. L'angle solide dO , qui correspond à cette configuration est de $6.4 \cdot 10^{-3}$ rad. La mesure de puissance de rayonnement, émis par l'ensemble d'atomes du piège, consiste à mesurer d'une part la fluorescence en fonctionnement normal du piège et d'autre part la fluorescence, récoltée dans les mêmes conditions, mais sans le gradient de champ magnétique. La différence de ces deux valeurs correspond à la puissance rayonnée par les atomes dans le piège. Pour déterminer le nombre d'atomes dans le piège nous utilisons un modèle à deux niveaux. La puissance, émise par N atomes dans l'angle solide dO est donnée par l'expression suivante:

$$P = N \frac{dO}{4\pi} h \frac{c}{\lambda} \frac{dN_{ph}}{dt}. \quad (2.41)$$

Le nombre des photons émis par unité du temps par un atome dN_{ph}/dt dans le cadre de ce modèle est [20]:

$$\frac{dN_{ph}}{dt} = \frac{\Gamma}{2} \frac{s_{tot}}{1 + s_{tot}}, \quad (2.42)$$

où Γ est le taux d'émission spontané et s_{tot} est le paramètre de saturation associé à six faisceaux laser de piégeage:

$$s_{tot} = 6\Omega_0^2 \frac{\Gamma^2/4}{\delta^2 + \Gamma^2/4}, \quad (2.43)$$

où la fréquence de Rabi Ω_0 correspondant à la transition de $F = 4, m_F = \pm 4$ vers $F' = 5, m'_F = \pm 5$ est associée à un seul faisceau est donnée par:

$$\Omega_0 = \Gamma \sqrt{\frac{I}{2I_0}}. \quad (2.44)$$

Ici I est l'intensité de chaque des faisceaux laser de piégeage et I_0 est l'intensité de saturation ($I_0 = 1.1 \text{ mW/cm}^2$ pour le césium). En utilisant l'expression (2.43) pour le paramètre de saturation nous obtenons l'expression suivante pour la puissance émise par N atomes à deux niveaux:

$$P = N \frac{dO}{4\pi} h \frac{c}{\lambda} \frac{\Gamma}{2} \frac{3\Omega_0^2}{\delta^2 + \Gamma^2/4 + 3\Omega_0^2}. \quad (2.45)$$

Dans le cas réel, l'atome possède plusieurs sous-niveaux Zeeman pour les niveaux excité et fondamental et la polarisation du champ laser varie en fonction de la position spatiale. La fréquence de Rabi est donc une fonction compliquée des coordonnées spatiales et de l'état atomique. Une expression approchée peut être obtenue en remplaçant la fréquence de Rabi Ω_0 associée à une transition de $F = 4, m_F = \pm 4$ vers $F' = 5, m'_F = \pm 5$ par la fréquence de Rabi moyenne tenant compte des différents transitions entre les sous-niveaux Zeeman [42]:

$$\Omega^2 \simeq \overline{C^2} \Omega_0^2, \quad (2.46)$$

où $\overline{C^2}$ est le coefficient de Clebsch-Gordan au carré moyen. En supposant, que dans le

piège tous les sous-niveaux Zeeman de l'atome sont peuplés également et que le champ laser a toutes les polarisations possibles, nous arrivons à une valeur $\overline{C^2} \simeq 0.4$, qui est la valeur moyenne pour toutes les transitions et toutes les polarisations. Cependant dans la référence [42] a été obtenue pour le piège de césium avec les paramètres expérimentaux typiques (fréquence de Rabi variant entre 1 Γ et 2.2 Γ) la valeur de $\overline{C^2} \simeq 0.73$. Dans cette situation il est raisonnable de rester dans le cadre de modèle à deux niveaux (c'est à dire considérer $\Omega = \Omega_0$), car on obtient dans ce cas une limite inférieure pour le nombre d'atomes. Le nombre d'atomes, qui correspond à une puissance de fluorescence des atomes dans le piège détectée dans nos expériences ($\sim 85 - 90$ nW) selon (2.45) est de 7×10^7 atomes. Cette valeur est obtenue dans des conditions de puissance totale des faisceaux laser de piégeage de 18 mW/cm² et le désaccord de 9 MHz.

2.4.3 Forme et taille du piège

A l'aide d'un dispositif de visualisation du piège constitué d'une caméra CCD, une carte d'acquisition et d'un moniteur. on peut contrôler le fonctionnement du piège. Ce dispositif permet de numériser les images du piège, d'obtenir le profil de fluorescence du piège et, donc, de mesurer la taille du piège et sa forme géométrique. Pour un nombre d'atomes piégés petit les effets d'interactions entre les atomes piégés sont négligeables et on peut considérer que le piège est constitué de N atomes indépendants. Dans un tel régime, dit le régime avec une densité atomique limitée par la température, la distribution spatiale des atomes est déterminée par la force de compression $\mathbf{F} = -\kappa\mathbf{r}$ et le mouvement thermique des atomes dans le potentiel de piégeage, donné par la température de piège T . En considérant le potentiel de piégeage comme un puits harmonique selon le théorème d'équipartition de l'énergie nous obtenons la relation suivante:

$$\frac{1}{2}k_B T_i = \frac{1}{2}\kappa_i \langle r_i^2 \rangle, \quad (2.47)$$

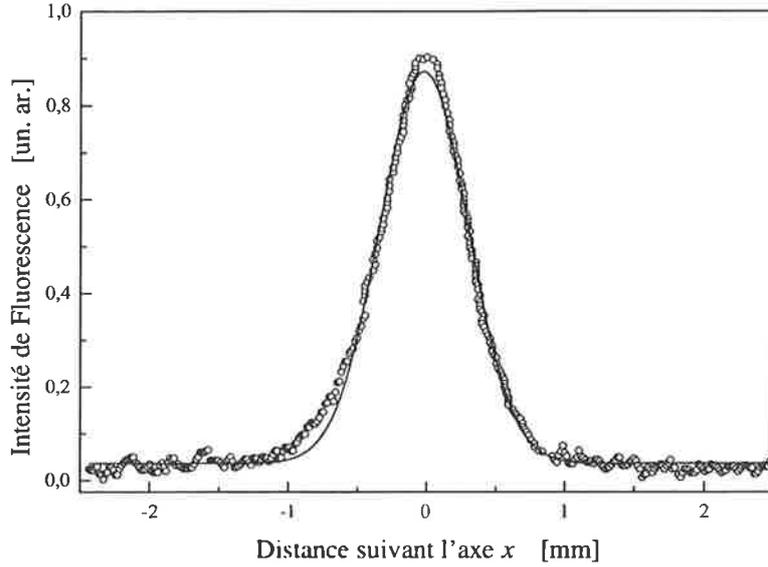


Figure 2-8: Le profil de fluorescence du piège magnéto-optique obtenu à l'aide d'une caméra CCD pour les paramètres expérimentaux: $I_{tot} \simeq 18 \text{ mW/cm}^2$, $\delta = 9 \text{ MHz}$, $\partial B/\partial z \simeq 15 \text{ G/cm}$. La ligne continue est l'ajustement par une fonction gaussienne. La taille à mi-hauteur est de $\sim 0.75 \text{ mm}$.

où κ_i ($i = x, y, z$) est la constante de raideur, qui est proportionnelle au gradient de champ magnétique $\partial B/\partial r_i$ (voir Eq. (2.13)). Dans nos expériences $\partial B/\partial r_z = 2\partial B/\partial r_x = 2\partial B/\partial r_y$, et par conséquent $\kappa_z = 2\kappa_x = 2\kappa_y$. Nous considérons, que la répartition des vitesses dans le piège est isotrope ce qui implique l'isotropie de température: $T_x = T_y = T_z = T$. En appliquant cette condition pour l'équation (2.47), nous obtenons pour les rayons quadratiques moyens la relation suivante: $\langle r_x^2 \rangle = \langle r_y^2 \rangle = \sqrt{2} \langle r_z^2 \rangle$. Donc le piège magnéto-optique a une forme ellipsoïdale avec un profil gaussien. La figure 2-8 présente le profil de fluorescence de piège, vu sous un angle d'environ $15^\circ - 20^\circ$ avec l'axe vertical (z). On voit, que le profil du piège n'est pas strictement gaussien. Nous avons supposé plus haut que le nombre d'atomes dans le piège est petit ce qui correspond au régime où la densité atomique est limitée par la température. Cependant lorsque le nombre d'atomes piégés excède une valeur critique, qui peut être définie approximativement comme $N_{MS} = 4\pi n_{\max} (T k_B / \kappa)^{3/2}$ [43] les effets d'interaction entre les atomes

piégés ne sont plus négligeables (il s'agit de la force répulsive entre atomes, due à la réabsorption du rayonnement). Plus précisément c'est le régime de piégeage de radiation ou le régime de la diffusion multiple. Suivant les conditions expérimentales (température du piège et constante de raideur) la valeur critique N_{MS} peut être variée, par exemple entre 3×10^5 [43] et 10^7 [44]. Dans le cas d'un grand nombre d'atomes piégés $N/N_{MS} \gg 1$ la distribution d'atomes tend vers la distribution uniforme [45]. Dans le cas intermédiaire $N/N_{MS} \gtrsim 1$ les effets de la température et de la diffusion multiple sont tous deux importants ce qui conduit à la distribution de densité avec un profil intermédiaire entre une distribution gaussienne et une distribution uniforme (distribution "créneau") [43], [44].

2.4.4 Densité d'atomes piégés

Le nombre d'atomes piégés est lié à la densité atomique par la relation suivante:

$$N = \int n(r) dV. \quad (2.48)$$

Dans le cas de la distribution gaussienne avec $\sigma_i^2 = \langle r_i^2 \rangle$ le profil de la densité est:

$$n(x, y, z) = n_{\max} \exp\left(-\frac{x^2}{2\sigma_x^2} - \frac{y^2}{2\sigma_y^2} - \frac{z^2}{2\sigma_z^2}\right), \quad (2.49)$$

où la densité atomique au centre de la distribution gaussienne, correspondant à un nombre d'atomes piégés N donné est:

$$n_{\max} = \frac{N}{(\sqrt{2\pi})^3 \sigma_x \sigma_y \sigma_z}. \quad (2.50)$$

Pour le nombre d'atomes mesuré $N = 7 \times 10^7$ et $\sigma_x = \sigma_y = \sqrt{2}\sigma_z \simeq 320 \mu\text{m}$ nous obtenons la densité atomique dans le piège $n_{\max} \sim 10^{11}$ atomes/cm³. Ce résultat est la densité typique (il s'agit de la densité atomique au centre de la distribution) mesurée dans les pièges magnéto-optiques en cellule (voir par exemple les références [46], [42], [44]).

2.4.5 Estimation de la température

Nous n'avons pas dans nos expériences, effectué de mesure de température. Cependant notre montage expérimental est très similaire aux montages de piège magnéto-optique à vapeur de césium réalisés par d'autres groupes pour des conditions expérimentales semblables. En utilisant leurs résultats, nous pouvons donner une estimation de la température de notre piège à partir des paramètres de notre dispositif expérimental. Pour cela nous avons utilisé les lois empiriques obtenues pour les pièges de césium dans les références [18] et [44]. Comme nous avons déjà mentionné l'excès de température dans un piège magnéto-optique par rapport à la température d'une mélasse optique est dû aux densités plus élevées que dans une mélasse optique (voir § 2.2.4). Les deux méthodes sont basées sur le fait que cet excès de la température varie comme $N^{1/3}$ en fonction du nombre d'atomes piégés pour une densité atomique constante [18], [44]. La première méthode nécessite d'estimer la température de mélasse optique correspondant aux conditions expérimentales données de fonctionnement du piège (intensité des faisceaux laser, désaccord de la résonance). Pour cela on peut utiliser l'expression analytique de la température de mélasse optique sub-Doppler pour la configuration $\sigma^+ - \sigma^-$ dans une dimension (Eq. (2.26)):

$$k_B T = \frac{\hbar \Gamma I / I_0}{(2|\delta|/\Gamma)} \left[\frac{29}{300} + \frac{254}{75} \frac{1}{1 + (2\delta/\Gamma)^2} \right]. \quad (2.51)$$

Pour une intensité de 3 mW/cm² par faisceau et un désaccord de $\delta \simeq 9$ MHz ($\sim 1.7 \Gamma$) nous obtenons $T \simeq 73 \mu\text{K}$. Cette valeur est en accord avec une valeur expérimentale de 70 μK obtenue dans la configuration $\sigma^+ - \sigma^-$ de mélasse de césium pour les paramètres expérimentaux semblables (figure 4 de référence [42]): désaccord de $\delta = 1.9\Gamma$ et $\Omega^2 \simeq 1.14\Gamma$ ce qui correspond à l'intensité par faisceau de 2.5 mW/cm². L'excès de la température dans le piège pour la configuration $\sigma^+ - \sigma^-$ selon la loi empirique obtenue pour le césium dans la référence [18] est donné par:

$$T - T_{mél} = 0.13 N^{0.33} \left(\frac{I}{2I_0} \right)^{1.5} \left(\frac{\Gamma}{\delta} \right)^{0.89}. \quad (2.52)$$

Pour les paramètres de piège $I = 3 \text{ mW/cm}^2$, $\delta = 1.7 \Gamma$ et le nombre d'atomes $N = 7 \cdot 10^7$ on obtient $T - T_{mél} \simeq 52 \text{ } \mu\text{K}$. En utilisant la valeur théorique obtenue pour la température de la mélasse et la valeur de l'excès de la température dans le piège on obtient l'estimation de la température correspondante à nos conditions expérimentales: $T \simeq 125 \text{ } \mu\text{K}$.

La deuxième méthode utilise la loi empirique donnant directement la température du piège en fonction des même paramètres [44]:

$$T = 30 + 0.56 N^{1/3} \frac{\Gamma \sqrt{I/2I_0}}{\delta}. \quad (2.53)$$

On obtient pour les mêmes valeurs de l'intensité par faisceau, du désaccord et du nombre d'atomes piégés une température de $T \simeq 186 \text{ } \mu\text{K}$.

2.4.6 Résumé

En généralisant les résultats de caractérisation de piège magnéto-optique on peut conclure que la source d'atomes froids utilisée dans nos expériences présente un échantillon de quelques 10^7 atomes froids à une température estimée inférieure ou de l'ordre de $200 \text{ } \mu\text{K}$. La densité atomique obtenue au centre de la distribution est de l'ordre de 10^{11} cm^{-3} avec la taille du piège en mi-hauteur d'environ 0.75 mm . Ces caractéristiques sont obtenues dans les conditions de l'intensité laser par faisceau typique d'environ 3 mW/cm^2 et pour un désaccord de 9 MHz . On verra plus loin (§ 2.5.3) que dans ces conditions la fraction d'atomes dans l'état excité $6P_{3/2}$ est typiquement de 30%. Une telle fraction permet d'obtenir un échantillon d'atomes de Rydberg froids relativement dense en utilisant une excitation en état de Rydberg à partir du niveau excité $6P_{3/2}$ (voir plus loin § 3.5.1 du chapitre suivant). La pression de vapeur de césium au centre de l'enceinte est typiquement dans nos expériences de l'ordre de 10^{-9} Torr . Une telle pression correspond à une densité d'atomes "chauds" de vapeur de césium à la proximité du piège de l'ordre de 10^8 cm^{-3} et est de trois ordres de grandeur inférieure à la densité atomique au centre du piège.

Avant de passer à l'utilisation de ce piège magnéto-optique pour l'étude des interac-

tions entre atomes de Rydberg ultra-froids, nous allons décrire une série d'expériences concernant la mise au point d'un piège magnéto-optique sombre ou creux, plus connu sous l'appellation anglaise "dark-SPOT" (dark spontaneous force optical trap). Bien que les caractéristiques de la source d'atomes froids obtenue, sont suffisantes pour l'étude des propriétés d'un gaz de Rydberg gelé, la motivation de cette étude était la recherche des possibilités d'amélioration d'une source d'atomes froids. En effet la densité atomique et la température sont limitées dans le fonctionnement d'un piège magnéto-optique normal par le processus de la diffusion multiple, qui peut être théoriquement supprimée en transférant tous les atomes dans un état non couplé avec le rayonnement de laser de refroidissement.

2.5 Piège magnéto-optique sombre

La technique de piège sombre à été proposée dans la référence [19] comme un moyen permettant d'augmenter la densité d'atomes dans le piège magnéto-optique de sodium. L'effet d'augmentation de la densité d'atomes piégés est lié d'une part à la réduction des pertes d'atomes ce qui permet de piéger plus d'atomes et d'autre part à la réduction des mécanismes limitant la densité d'atomes dans le piège contenant un grand nombre d'atomes: la réabsorption de rayonnement ou la diffusion multiple. Dans un piège, on peut augmenter le nombre d'atomes en augmentant par exemple la taille des faisceaux de piégeage (plus que 10^{10} atomes pour le diamètre des faisceaux de 60 mm à été obtenue dans la référence [40]), ce qui conduit à la croissance de volume du nuage atomique. La densité atomique dans tel piège reste pratiquement constante ou même diminue [45], [42], [44]. La cause principale de cette difficulté d'augmenter la densité atomique est le phénomène de diffusion multiple qu'il est important de réduire.

2.5.1 Principe du piège sombre et densité atomique dans le piège sombre

Nous avons déjà rencontré le phénomène de pompage optique entre les niveaux hyperfins du fondamental $F = 4 \rightarrow F = 3$ via l'excitation non-résonante du sous-niveau hyperfin $F' = 4$ de niveau excité ($6P_{3/2}$) qui a lieu lors des cycles de refroidissement (§ 2.3.4). D'une part, cet effet parasite de point de vue du mécanisme de refroidissement, implique l'utilisation d'un laser repompeur pour compenser les "fuites" d'atomes dans les cycles de refroidissement et de piégeage. D'autre part, comme les atomes dans le centre du piège sont déjà piégés et refroidis, ce même effet peut être utilisé comme un mécanisme permettant de ramener les atomes piégés et refroidis dans l'état hyperfin du fondamental non couplé avec le rayonnement de laser de piégeage (il s'agit de l'état hyperfin de plus basse énergie, $F = 3$ pour le césium). Pour cela on réduit l'intensité de rayonnement du laser repompeur au centre de piège en la laissant maximale dans la zone de collection des atomes. C'est ce principe qui est utilisé dans le mécanisme du piège sombre [19], où les atomes du centre du piège ne sont plus soumis au rayonnement du laser repompeur et sont en majorité dans un état hyperfin $F = 3$ du niveau fondamental et peuvent donc échapper à l'interaction avec les lasers de refroidissement et de piégeage. Nous reviendrons aux détails de réalisation expérimentale du piège sombre plus loin.

On caractérise un tel piège sombre par la probabilité p de trouver un atome dans l'état "brillant". Dans le cas du césium où l'état "brillant" et l'état "sombre" sont respectivement $F = 4$ et $F = 3$, cette probabilité (ou la population fractionnelle de l'état "brillant") est:

$$p = \frac{N_4}{N_4 + N_3}. \quad (2.54)$$

Ici N_4 et N_3 représentent les nombres d'atomes dans les états $F = 4$ et $F = 3$ du niveau fondamental dans un piège sombre. En ce qui concerne la densité atomique dans le piège on distingue, en général, trois limites de densité suivant le nombre d'atomes piégés. Nous n'allons pas ici entrer dans les détails de définition de ces limites (on les trouve dans

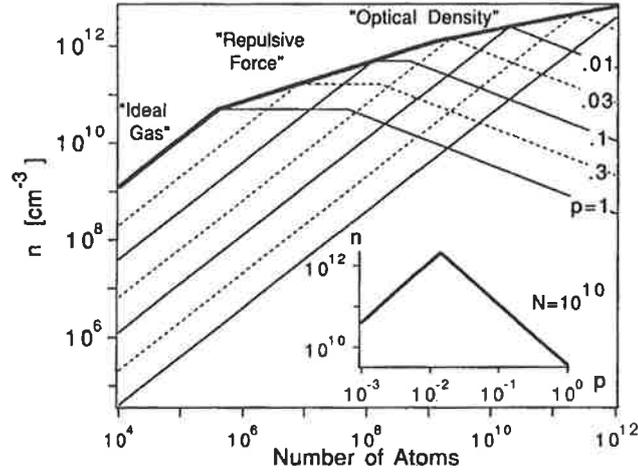


Figure 2-9: La densité atomique n en fonction du nombre d'atomes piégés N pour les différentes valeurs de population fractionnelle de l'état hyperfin "brillant" du niveau fondamental. Une grosse ligne montre une limite de densité qui peut être obtenue avec une valeur de p optimale (figure extraite de [19]).

les références [19], [47]), notons seulement que la valeur de population fractionnelle p correspondant à une densité maximale dans le piège sombre dépend du nombre d'atomes piégés et est petite pour les pièges contenant un grand nombre d'atomes (figure 2-9). Il est important de noter que l'utilisation du piège sombre a un sens seulement dans le régime de diffusion multiple où le nombre d'atomes piégés est grand. Dans le cas de petit nombre d'atomes dans le piège (régime de densité limitée par la température ou "ideal gas" sur la figure 2-9) la réduction de population fractionnelle de l'état "brillant" p conduit au résultat contraire: la décroissance de la densité. Un tel effet est lié au fait que la constante de raideur κ (voir Eq. (2.13)) est réduite dans le piège sombre: $\kappa' = \kappa p$. En utilisant les équations (2.47) et (2.50) on obtient pour la densité d'un tel piège:

$$n_{ps}^T = \frac{N}{(\sqrt{2\pi})^3} \left(\frac{\kappa'}{k_B T} \right)^{3/2} = \frac{N}{(\sqrt{2\pi})^3} \left(\frac{\kappa}{k_B T} \right)^{3/2} p^{3/2}. \quad (2.55)$$

Donc dans le piège dont la densité est limitée par la température, la densité atomique dé-

croît car pour une température constante le volume du piège croît comme $p^{-3/2}$. Cette expression définit la limite de la densité pour un piège contenant un petit nombre d'atomes.

Pour obtenir une estimation quantitative et pour contrôler la proportion d'atomes transférés dans un état hyperfin "sombre" examinons le mécanisme de transfert de population dans le piège sombre.

2.5.2 Mécanisme de transfert de population dans le piège sombre

Considérons les processus de pompage optique via l'état excité ($6P_{3/2}$, $F' = 4$): $F = 4 \rightarrow F' = 4 \rightarrow F = 3$ par laser de piégeage et $F = 3 \rightarrow F' = 4 \rightarrow F = 4$ par le laser repompeur (figure 2-10 (a)). Bien qu'ils utilisent le niveau excité $F' = 4$ commun nous les considérons ici comme des processus indépendants. Le taux d'excitation non-résonnante du niveau excité $F' = 4$ par laser de piégeage dans le cadre du modèle à deux niveaux est:

$$\Gamma'_{4 \rightarrow 4'} = \Gamma \frac{s_{44'}}{1 + s_{44'}}, \quad (2.56)$$

où le paramètre de saturation $s_{44'}$ est donné par expression suivante:

$$s_{44'} = \frac{1}{2} \frac{6\Omega_{44'}^2/2}{(\Delta + \delta)^2 + \Gamma^2/4}. \quad (2.57)$$

Ici le facteur 6 correspond aux six faisceaux laser de piégeage et $\Omega_{44'}$ à la fréquence de Rabi associée à la transition $F = 4 \rightarrow F' = 4$ pour un seul faisceau. Δ est l'écart d'énergie entre les niveaux hyperfins $F' = 4$ et $F' = 5$. Le taux de pompage entre les niveaux hyperfins du niveau fondamental $F = 4 \rightarrow F = 3$ peut être estimé par les intensités des transitions ("line strengths") $F' = 4 \rightarrow F = 3$, $F' = 4 \rightarrow F = 4$ et le taux d'excitation non-résonnante du niveau $F' = 4$ (Eq. (2.56)):

$$R_{4 \rightarrow 3} = \Gamma'_{4 \rightarrow 4'} \frac{S_{4'3}}{S_{4'3} + S_{4'4}} = \frac{\Gamma}{2} \frac{6\Omega_{44'}^2/2}{(\Delta + \delta)^2 + \Gamma^2/4 + 6\Omega_{44'}^2/2} \frac{S_{4'3}}{S_{4'3} + S_{4'4}}, \quad (2.58)$$

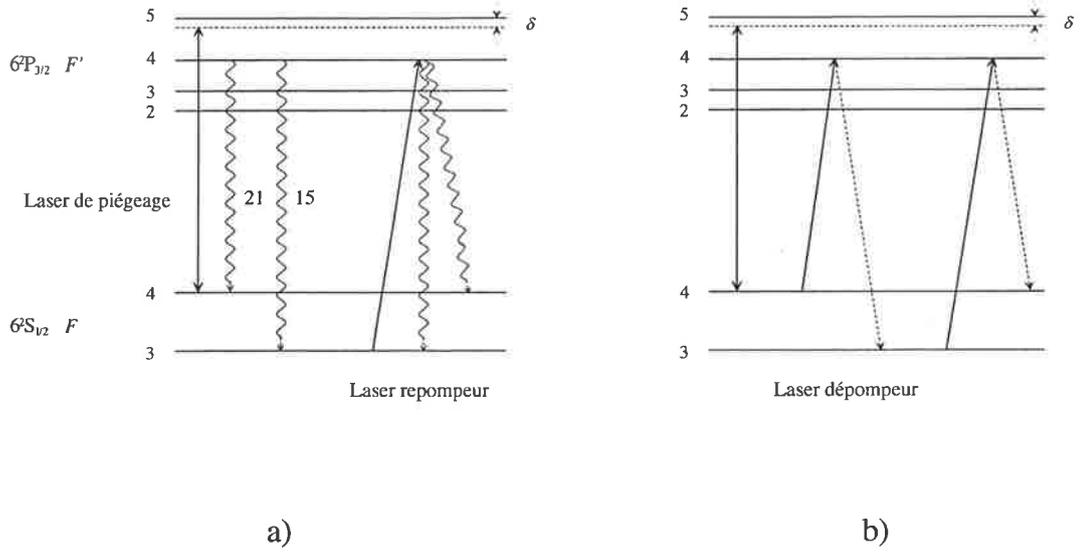


Figure 2-10: Mécanisme de pompage optique entre les sous-niveaux hyperfins. a) Dépompage "naturel". b) Dépompage forcé à l'aide de laser depompeur. Les chiffres devant les flèches indiquent les intensités de ces transitions.

où les symboles $S_{F'F}$ dénotent les intensités des transitions entre les niveaux hyperfins F' et F . Dans le piège en fonctionnement sombre l'intensité du rayonnement du laser repompeur est beaucoup plus faible que celle en fonctionnement normal du piège. Donc pour estimer le taux de pompage entre les niveaux hyperfins du niveau fondamental $F = 3 \rightarrow F = 4$ par le laser repompeur, on peut appliquer le même raisonnement que nous avons utilisé pour l'estimation de faible (à cause du grand écart Δ) taux de pompage par laser de piégeage. On obtient dans ce cas:

$$R_{3 \rightarrow 4} = \Gamma'_{3 \rightarrow 4'} \frac{S_{4'3}}{S_{4'3} + S_{4'4}} = \frac{\Gamma}{2} \frac{\Omega_{34'}^2/2}{\Gamma^2/4 + \Omega_{34'}^2/2} \frac{S_{4'4}}{S_{4'3} + S_{4'4}} \quad (2.59)$$

Nous avons supposé dans cette dernière expression que le laser repompeur est en résonance exacte sur la transition $F = 3 \rightarrow F' = 4$. En utilisant ces expressions pour les taux de pompage, nous pouvons estimer le rapport des populations des niveaux hyperfins $F = 3$ et $F = 4$ de la manière suivante. Le nombre d'atomes N_4 et N_3 dans le régime stationnaire, pour chacun des ces états est déterminé par la durée de vie des atomes dans

ces états: τ_4, τ_3 , qui est inverse proportionnelle au taux de pompage [47]:

$$\frac{N_4}{N_3} = \frac{\tau_4}{\tau_3} = \frac{R_{3 \rightarrow 4}}{R_{4 \rightarrow 3}}. \quad (2.60)$$

A l'aide des équations (2.59) et (2.58) on obtient finalement le rapport des populations stationnaires:

$$\frac{N_4}{N_3} = \frac{S_{4'4} \Omega_{34'}^2 (\Delta + \delta)^2 + \Gamma^2/4 + 6\Omega_{44'}^2/2}{S_{4'3} 6\Omega_{44'}^2 \Gamma^2/4 + \Omega_{34'}^2/2}. \quad (2.61)$$

La fréquence de Rabi associée à la transition $F = 4 \rightarrow F' = 4$ est inférieure à celle associée à la transition $F = 4 \rightarrow F' = 5$ et peut être estimée à l'aide des intensités des transitions correspondantes (voir annexe A):

$$\frac{\Omega_{44'}^2}{\Omega_{45'}^2} = \frac{S_{4'4}}{S_{5'4}} = \frac{21}{44}. \quad (2.62)$$

Remarquons ensuite que l'écart hyperfin entre les niveaux $F' = 5$ et $F' = 4$ pour le césium est de 251.4 MHz (ou $\sim 48.2 \Gamma$) et qu'il est beaucoup plus grand que la largeur naturelle du niveau excité 5.22 MHz. La fréquence de Rabi totale (de six faisceaux laser) associée à une transition $F = 4$ ($|m_F| = 4$) $\rightarrow F' = 5$ ($|m_{F'}| = 5$), qui dans nos expériences était de $\Omega_{45'}^{tot} \simeq 2.9 \Gamma$ et elle est aussi inférieure à Δ . En utilisant ces conditions ($\Delta \gg \Gamma$, $\Delta \gg \Omega_{45'}^{tot} > \Omega_{44'}^{tot}$) et en tenant compte de la faible intensité du laser repompeur $\Omega_{34'} \ll \Gamma$, réduite pour obtenir un transfert de population significatif vers l'état sombre on obtient:

$$\frac{N_4}{N_3} \simeq \frac{S_{4'4} \Omega_{34'}^2 4(\Delta + \delta)^2}{S_{4'3} 6\Omega_{44'}^2 \Gamma^2}. \quad (2.63)$$

Comme il a été déjà discuté dans le § 2.1.2, l'intensité de saturation I_0 et la fréquence de Rabi Ω_0 correspondante (Eq. (2.41)) sont définies pour la transition $F = 4$ ($|m_F| = 4$) $\rightarrow F' = 5$ ($|m_{F'}| = 5$) de la raie D_2 de césium. Dans le piège la fréquence de Rabi associée aux six faisceaux laser est une fonction compliquée des coordonnées spatiales et de l'état atomique. La prise en compte de la structure multi-niveaux des niveaux de l'atome est dans ce cas un problème assez difficile et pour une première approximation la fréquence

de Rabi Ω_{45} associé à une transition $F = 4 \rightarrow F' = 5$ peut être considérée égale à Ω_0 . Le rapport des fréquences de Rabi au carré associées aux transitions entre les niveaux hyperfins $F \rightarrow F'$ peut être dans ce cas estimé par les intensités de ces transitions (voir annexe A):

$$\Omega_{FF'}^2 \simeq \frac{S_{F'F}}{S_{5'4}} \Omega_0^2 = \frac{S_{F'F}}{S_{5'4}} \Gamma^2 \frac{I}{I_0}. \quad (2.64)$$

En remplaçant les fréquences de Rabi par les intensités des lasers à l'aide de l'équation (2.64) nous obtenons finalement:

$$\frac{N_4}{N_3} \simeq 4 \frac{(\Delta + \delta)^2}{\Gamma^2} \frac{I_{rep}}{I_{tot}}, \quad (2.65)$$

où I_{tot} correspond à l'intensité totale des six faisceaux laser de piégeage.

Maintenant nous pouvons donner une estimation quantitative pour le rapport des intensités du rayonnement du laser de piégeage et du laser repompeur. Pour obtenir le rapport des populations de $N_4/N_3 = 1$ ou la population fractionnelle de l'état brillant de $p = 0.5$ dans le piège, l'intensité du laser repompeur par rapport à l'intensité du laser de refroidissement doit être de l'ordre de $I_{rep}/I_{tot} \sim 10^{-4}$. Pour obtenir un transfert significatif dans l'état sombre $F = 3$ en préservant en même temps, un taux de capture des atomes dans le piège suffisant pour le fonctionnement du piège, on crée une zone "sans champ" au centre des faisceaux repompeurs [19]. (Un nombre minimum de deux faisceaux pour le laser repompeur est nécessaire (voir plus loin § 2.5.4 (α))). Ce moyen permet d'obtenir un piège sombre, dit "naturel" qui a été utilisé dans les expériences avec le piège de sodium [19]. Il est néanmoins insuffisant pour obtenir un transfert d'atomes dans l'état sombre important dans le cas d'un piège sombre de césium, alors qu'il a donné des résultats spectaculaire pour le sodium [19]. Nous allons voir plus loin (§ 2.5.6 (α)) que dans le cas du césium (et également du rubidium [39]) à cause du grand écart d'énergie entre les niveaux hyperfins, contrairement au sodium, et par conséquent du faible taux d'excitation non résonnante, il est impossible à l'aide de cette méthode (piège sombre "naturel") d'obtenir un transfert significatif (plus précisément supérieur à 50%) vers le

niveaux hyperfin $F = 3$ sans d'affecter le processus de collection d'atomes dans le piège. Dans cette situation il est nécessaire d'utiliser un laser complémentaire dit pompéur [39], [47] qui permet le transfert forcé des atomes vers le niveau sombre $F = 3$ (figure 2-10 (b)).

2.5.3 Nombre d'atomes dans le piège sombre

Comme nous l'avons déjà précisé dans des conditions de pression de vapeur de césium modérée ($10^{-9} - 10^{-8}$ Torr), les pertes d'atomes sont dues essentiellement aux collisions d'atomes piégés avec les atomes de vapeur de césium dans l'enceinte. Le nombre d'atomes dans un tel piège, en passant dans un régime de fonctionnement du piège sombre, peut être augmenté car la section efficace des collisions entre les atomes dans l'état fondamental est plus faible que dans le cas où un atome piégé se trouve dans un état excité. La section efficace des collisions qui définit les pertes d'atomes (Eq. (2.38)) peut être présentée sous la forme suivante [47]:

$$\sigma = \Pi_e \sigma_e + \Pi_f \sigma_f, \quad (2.66)$$

où σ_e et σ_f sont les sections efficaces des collisions correspondant à l'interaction dipôle-dipôle et van der Waals respectivement. Π_f et Π_e sont les populations fractionnelles respectivement de l'état fondamental et l'état excité ($6P_{3/2}$ $F' = 5$ pour le césium) dans le piège brillant:

$$\Pi_e = \frac{1}{2} \frac{3\Omega^2}{\delta^2 + \Gamma^2/4 + 3\Omega^2}, \quad (2.67)$$

$$\Pi_f = 1 - \Pi_e. \quad (2.68)$$

En utilisant ces relations, on obtient la section efficace totale de collision dans le cas du piège normal:

$$\sigma = \sigma_f \left[1 + \Pi_e \left(\frac{\sigma_e}{\sigma_f} - 1 \right) \right]. \quad (2.69)$$

Dans le piège sombre avec une population fractionnelle de l'état brillant p (sous-niveau hyperfin $F = 4$ du niveau fondamental) la section efficace totale de collision est:

$$\sigma = \sigma_f \left[1 + p\Pi_e \left(\frac{\sigma_e}{\sigma_f} - 1 \right) \right]. \quad (2.70)$$

Suivant l'équation (2.40) le nombre d'atomes piégés est inversement proportionnel à la section efficace de collision, ce qui conduit à un rapport du nombre d'atomes dans le piège sombre et du nombre d'atomes dans le piège brillant:

$$\frac{N_{ps}}{N_{piège}} = \frac{1 + \Pi_e (\sigma_e/\sigma_f - 1)}{1 + p\Pi_e (\sigma_e/\sigma_f - 1)}. \quad (2.71)$$

Suivant cette équation, l'augmentation du nombre d'atomes piégés maximale, qui peut être obtenue dans le piège sombre avec $p \ll 1$, est déterminée par deux paramètres: la proportion d'atomes dans l'état excité Π_e correspondant aux conditions expérimentales du piège brillant et le rapport des sections efficaces σ_e/σ_f .

α) Estimation des sections efficaces de collisions

L'estimation des sections efficaces de collision σ_e et σ_f peut être effectuée en considérant, que l'atome quitte le piège sous l'effet de collision s'il acquiert une vitesse supérieure à la vitesse d'échappement du piège. (Cette estimation a été réalisée pour le césium dans la référence [14]). La vitesse d'échappement du piège n'est pas nécessairement la même que la vitesse de capture mais est du même ordre de grandeur et on peut utiliser la valeur de vitesse de capture v_c pour une première estimation. On va donc calculer la section efficace pour une collision qui induit une impulsion $\Delta P = Mv_c$ pour un atome piégé. La vitesse de capture est beaucoup plus petite que la vitesse typique d'un atome dans la vapeur $v_c \ll \bar{v}$. On peut donc négliger les variations de vitesse d'un atome rapide de la vapeur et considérer que la trajectoire de cet atome est rectiligne au voisinage d'un atome piégé avec une vitesse constante [48], [14] (figure 2-11). L'impulsion totale acquise

par un atome durant une collision est:

$$\Delta \mathbf{P} = \int_{-\infty}^{\infty} \mathbf{F} dt. \quad (2.72)$$

Notons, que la composante de la force \mathbf{F} exercée parallèlement à trajectoire d'un atome rapide de la vapeur donne en moyenne zéro. Finalement, l'impulsion acquise par un atome au cours de sa collision est donnée par l'expression suivante [48], [14]:

$$\Delta P = \int_{-\infty}^{\infty} F \cos \theta dt = \int_{-\infty}^{\infty} \frac{n C_n \cos \theta}{\left(\sqrt{b^2 + \bar{v}^2 t^2}\right)^{n+1}} dt, \quad (2.73)$$

où $n = 3$ pour l'interaction dipôle-dipôle et $n = 6$ pour l'interaction van der Waals. b ici est le paramètre d'impact $b = \sqrt{\sigma/\pi}$. En utilisant une substitution $\bar{v}t = b \tan \theta$ nous arrivons à la relation suivante:

$$\Delta P = M v_c = \frac{n C_n}{b^n \bar{v}} \int_{-\pi/2}^{\pi/2} (\cos \theta)^n d\theta = \frac{n C_n}{b^n \bar{v}} f(n). \quad (2.74)$$

On obtient pour la section efficace σ de collision conduisant à l'éjection d'un atome de piège l'expression [14]:

$$\sigma = \pi \left(\frac{f(n) C_n}{M v_c \bar{v}} \right)^{2/n}, \quad f(3) = 4, \quad f(6) = \frac{15}{8} \pi. \quad (2.75)$$

Les valeurs de C_n pour le césium sont $C_6 = 7260$ a. u. $= 6.95 \cdot 10^{-76}$ J·m⁶ (table 1 de référence [49]). Le paramètre C_3 est pour le césium $6.56 \cdot 10^{-48}$ J·m³ [14]. En utilisant ces valeurs on obtient pour une vitesse de collision égale à la vitesse moyenne dans un gaz césium de température de l'ordre de 300 K de $\bar{v} \simeq 218$ m/s et une vitesse de capture de 15 m/s (voir Eq. (2.37)):

$$\sigma_e \simeq 3.4 \cdot 10^{-13} \text{ cm}^2, \quad (2.76)$$

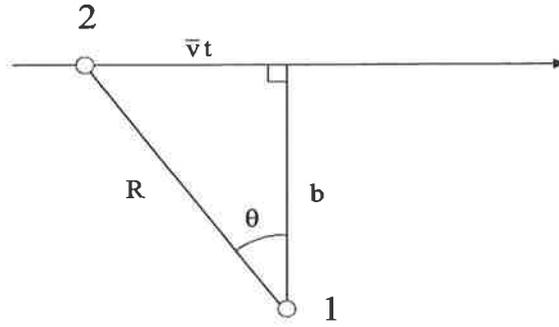


Figure 2-11: Schéma de collision entre un atome piégé (1) et un atome rapide de vapeur (2) (voir texte).

$$\sigma_f \simeq 0.56 \cdot 10^{-13} \text{ cm}^2,$$

soit $\sigma_e/\sigma_f \simeq 6$. Dans nos conditions expérimentales la proportion d'atomes dans l'état excité en fonctionnement brillant du piège est d'environ $\Pi_e \sim 0.3$. Suivant l'équation (2.71) l'augmentation maximale du nombre d'atomes piégés, qui peut être obtenue dans le piège sombre de césium avec $p \ll 1$, est dans ce cas seulement de $N_{ps}/N_{piège} \sim 2.5$. Ce faible gain résulte de la faible différence entre les sections efficace des collisions σ_e et σ_f . Pour les pièges caractérisés par une vitesse de capture plus faible ou qui fonctionnent avec une proportion d'atomes dans l'état excité élevée ou utilisant des atomes légers (comme par exemple le lithium ou le sodium) l'augmentation du nombre d'atomes piégés peut être plus importante.

2.5.4 Description du dispositif expérimental

Le fonctionnement du piège magnéto-optique sombre nécessite des modifications du dispositif initial décrit dans le § 2.3. Il s'agit tout d'abord d'une modification de la structure spatiale des faisceaux du laser repompeur, qui consiste en la création d'une zone sombre au centre de ces faisceaux. Pour obtenir un taux de transfert des atomes vers l'état sombre (sous-niveau hyperfin inférieur $F = 3$ du niveau fondamental) important dans un piège magnéto-optique sombre de césium, il est en plus nécessaire d'utiliser

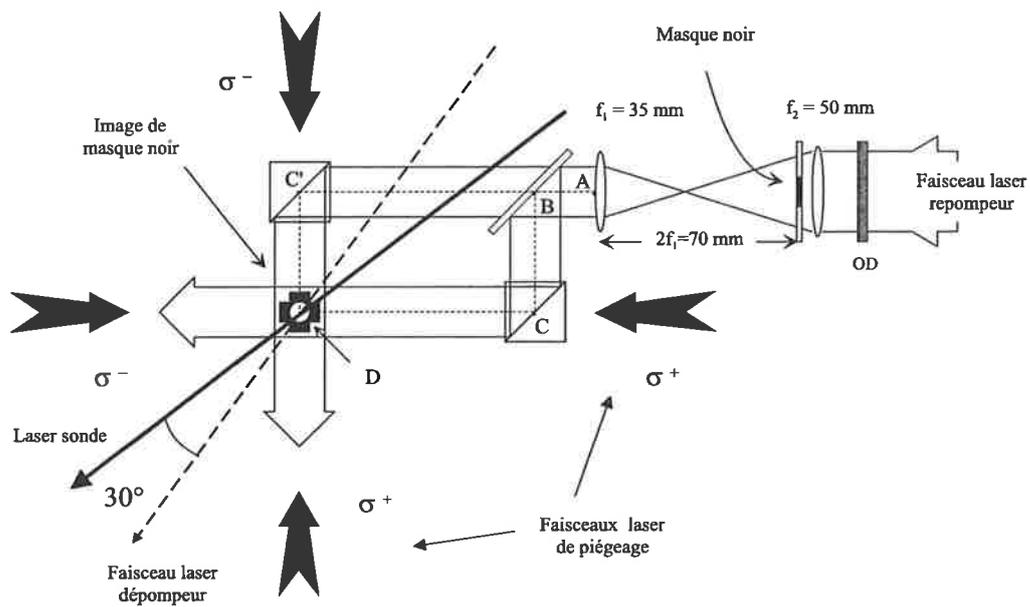


Figure 2-12: Schéma de dispositif du piège magnéto-optique sombre dans le plan horizontal (xy). Les longueurs des parcours des faisceaux laser repompeur: $|ABCD| = |ABC'D| = 2f_1 = 70$ mm.

un faisceau laser complémentaire dit dépompeur. Ce laser permet d'obtenir un pompage forcé des atomes vers l'état sombre.

α) Montage du dispositif du piège sombre

Pour obtenir une zone sombre des faisceaux du laser repompeur on utilise un masque noir circulaire, situé à l'intérieur d'un télescope optique (figure 2-12). L'utilisation de ce système optique permet d'obtenir dans la zone de piège l'image du masque noir placé sur le trajet du repompeur et d'éviter ainsi les effets de diffraction (tels que le "point de Poisson"). Une particularité de notre configuration expérimentale est la présence de grilles à l'intérieur de l'enceinte à vide (c'est une partie du "dispositif Rydberg" nécessaire pour appliquer un champ électrique aux atomes (voir figure 3-6 de chapitre suivant). Ces grilles possèdent des trous, qui permettent le passage des faisceaux laser de piégeage et repompeur. Pour éviter la diffraction de rayonnement du repompeur sur les bords de ces trous nous avons utilisé un télescope de grandissement 0.7 ce qui réduit la taille des

faisceaux repompeur d'un facteur ~ 1.3 inférieur à la taille des trous. Pour avoir au centre du piège une zone "sans" laser repompeur, il est nécessaire d'utiliser deux faisceaux laser repompeur se croisant à l'angle droit (un seul faisceau laser repompeur est nécessaire pour un piège magnéto-optique "brillant"). L'utilisation d'un seul faisceau donnerait la possibilité aux atomes de s'échapper selon l'axe du faisceau repompeur. En utilisant une lame semi-réfléchissante, située après le télescope le faisceau de laser repompeur est divisé en deux. Ensuite ces faisceaux sont superposés avec les faisceaux de piégeage à l'aide de cubes mélangeurs (figure 2-12). Le télescope, que nous avons utilisé pour nos expériences permet d'obtenir un déplacement linéaire de l'image en fonction de la position objet avec un coefficient de proportionnalité -1 et de grandissement $g \simeq 1$ dans la limite des petits déplacements de la position du masque noir $|\Delta| \ll f_2 = 35$ mm. La procédure de réglage du piège sombre consiste à superposer les deux images du masque noir au centre du piège. Le réglage grossier s'effectue à l'aide des cubes mélangeurs et le réglage fin en déplaçant la position de masque noir par rapport aux lentilles.

β) Laser dépompeur

Pour le dépompage forcé nous avons utilisé la transition $6S_{1/2} (F = 4) \rightarrow 6P_{3/2} (F' = 4)$ de la raie D_2 . Le faisceau laser dépompeur à la fréquence correspondant à cette transition est obtenu à partir d'un faisceau laser asservi sur un signal d'absorption saturée correspondant au croisement des transitions $6S_{1/2} (F = 4) \rightarrow 6P_{3/2} (F' = 4)$ et $6S_{1/2} (F = 4) \rightarrow 6P_{3/2} (F' = 5)$. On utilise le faisceau d'ordre zéro à la sortie du modulateur acousto-optique utilisé pour obtenir le faisceau laser de piégeage (faisceau d'ordre un) (voir la figure 2-14). A l'aide d'un second modulateur acousto-optique la fréquence de ce faisceau est décalée de -125.7 MHz. La puissance du faisceau laser dépompeur est contrôlée à l'aide de filtres de densité optique. La taille du faisceau dépompeur est réduite à ~ 2 mm et spatialement symétrique, ce qui est obtenu à l'aide d'une paire des prismes anamorphoseurs et d'un télescope. Le faisceau dépompeur est appliqué suivant la direction montrée sur la figure 2-12 de plan $x - y$.

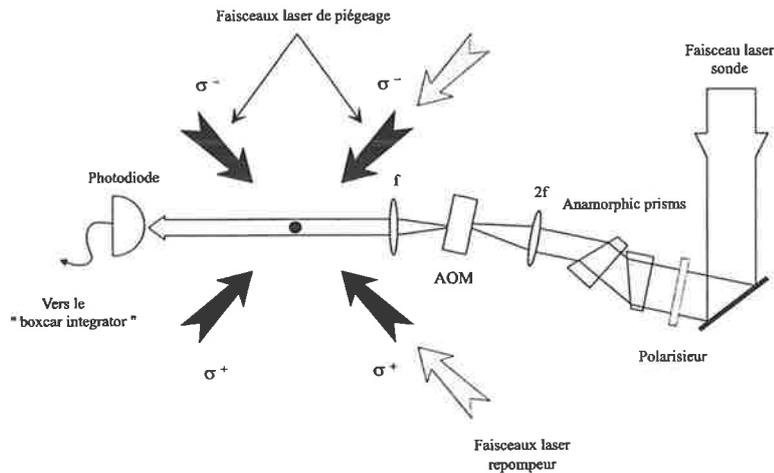


Figure 2-13: Schéma du dispositif du laser sonde (voir texte).

Ce nouveau dispositif du piège magnéto-optique peut maintenant fonctionner en mode de piège sombre. Il s'agit d'être capable d'analyser le comportement d'un tel piège. L'analyse de la fluorescence n'est plus adaptée puisqu'une grande partie des atomes du piège sont maintenant dans un état sombre². Pour cela on utilise un faisceau laser sonde dont on va mesurer l'absorption par les atomes du piège, pour déduire les populations fractionnelles sur chacun des sous-niveaux hyperfins ($F = 3$ et $F = 4$).

γ) Laser sonde

Pour obtenir le faisceau sonde nous avons utilisé une diode laser en fonctionnement en cavité étendue sans asservissement. Le balayage en fréquence permettant d'obtenir le spectre d'absorption est réalisé à l'aide d'un générateur de fonction commercial (THURLBY THANDAR TG 210). La vitesse de balayage de 2 MHz/s est choisie supérieure à la déviation de fréquence mesurée du laser sonde, en fonctionnement sans asservissement qui est de 100 kHz/s. Les mesures d'absorption par le piège ont été effectuées suivant une séquence temporelle présentée sur la figure 2-14 (b). Pour contrôler la durée

²Il s'agit d'application directe de cette méthode. Il est possible de modifier cette méthode pour l'analyse de piège sombre (voir la référence [47]).

de l'impulsion de la sonde nous avons utilisé un modulateur acousto-optique. Un télescope, constitué de lentilles, situées de part et d'autre du modulateur acousto-optique permet à la fois la modulation du faisceau sonde et la réduction de sa taille (figure 2-13). La taille du faisceau sonde est de l'ordre de ~ 2 mm de diamètre, soit ~ 2.5 supérieure à la taille du piège en fonctionnement normal qui est typiquement de $0.75 - 0.8$ mm (à mi-hauteur de profil de densité). Ces paramètres pour le laser sonde ont été choisis lors des mesures du nombre d'atomes dans le piège. Les prismes anamorphoseurs sont utilisés pour obtenir une forme spatialement symétrique du faisceau sonde. La polarisation du laser sonde dans nos expériences était linéaire et sa puissance était de ~ 0.2 mW/cm². Le faisceau laser sonde est appliqué suivant le même sens de propagation que le laser pompes, avec un angle $\sim 30^\circ$ pour sa direction par rapport à la direction du faisceau laser pompes (figure 2-12).

2.5.5 Méthode expérimentale

Le schéma d'ensemble de l'expérience est présenté sur la figure 2-14 (a)). Les mesures d'absorption s'effectuent avec la séquence temporelle, présentée sur la figure 2-14 (b)). La coupure des faisceaux laser de refroidissement dans nos expériences permet un "sondage" du niveau hyperfin fondamental $F = 4$ sans les éventuelles perturbations dues au rayonnement de laser de refroidissement. La coupure des faisceaux laser de refroidissement pour un intervalle du temps de $20 \mu\text{s}$ n'affecte pas sensiblement le fonctionnement de piège. La diminution du nombre d'atomes piégés n'est pas importante, car le rapport de l'intervalle du temps où les faisceaux laser de refroidissement et de piégeage sont coupés par rapport à l'intervalle du temps où ces faisceaux laser sont appliqués n'excède pas 2 %. En même temps le déplacement des atomes de vitesse ~ 10 cm/s (correspondant à une température de limite Doppler) pendant l'intervalle de temps où les faisceaux laser de refroidissement et de piégeage sont coupés, est d'environ $2 \mu\text{m}$. Les atomes ne peuvent donc pas s'échapper du piège pendant le temps de coupure des faisceaux laser de piégeage (l'effet de la pesanteur sur l'intervalle de $20 \mu\text{s}$ est également négligeable).

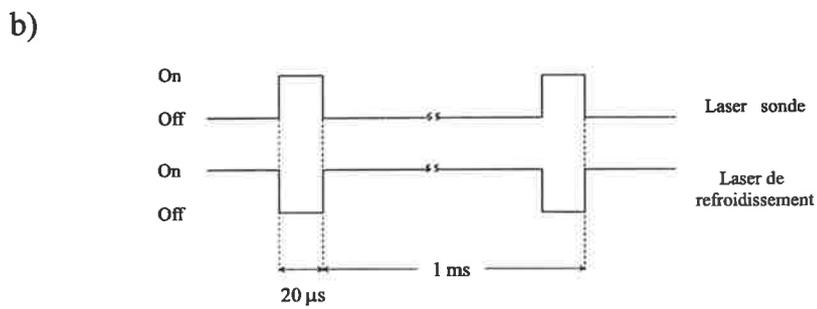
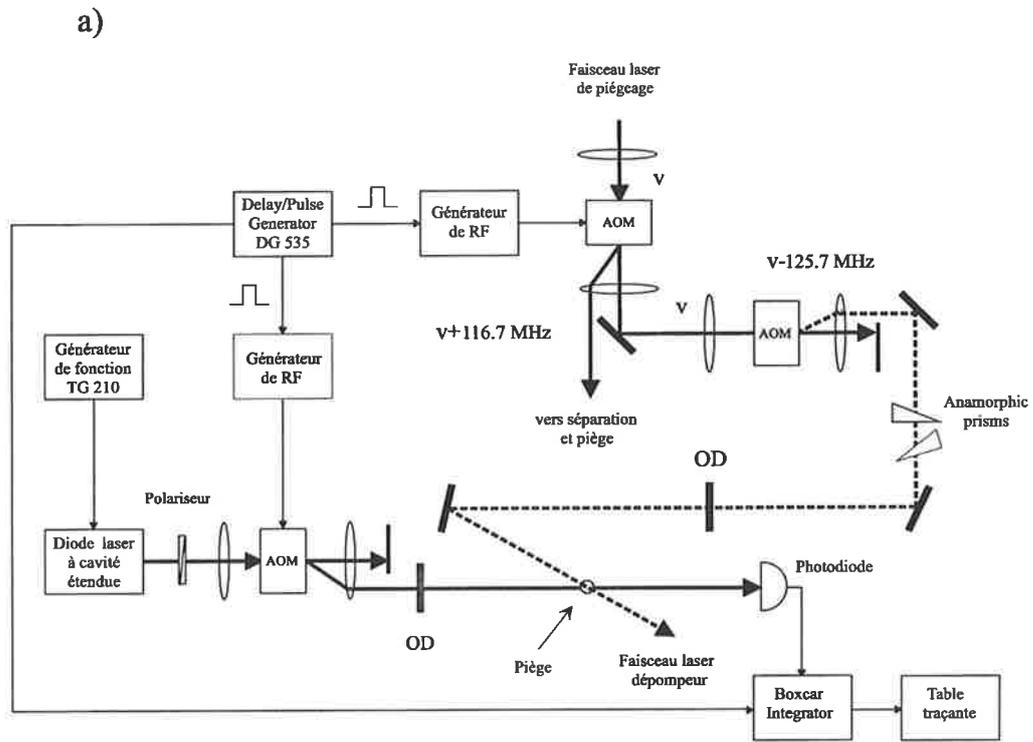


Figure 2-14: a) Schéma d'ensemble du dispositif expérimental. b) Séquence temporelle de l'expérience.

L'intervalle du temps où le laser sonde est appliqué ($20 \mu\text{s}$) est largement supérieur à la durée de vie du niveau excité, qui est de 30.5 ns [38], ce qui assure un régime stationnaire pendant le sondage. Nous pouvons donc utiliser le modèle à deux niveaux en régime stationnaire pour déduire les populations fractionnelles à partir des coefficients d'absorption mesurés. En utilisant l'expression (2.42) pour le nombre de photons émis par unité du temps par un seul atome, qui est égal pour un atome à deux niveaux en régime stationnaire au nombre de photons absorbés, on obtient la puissance absorbée par N atomes:

$$P_A = h \frac{c}{\lambda} \frac{dN_{ph}}{dt} N = h \frac{c}{\lambda} N \frac{\Gamma}{2} \frac{\Omega_s^2/2}{\delta^2 + \Gamma^2/4 + \Omega_s^2/2}, \quad (2.77)$$

où Ω_s est la fréquence de Rabi associé au laser sonde. Cette relation entre la puissance absorbée et le nombre d'atomes dans le piège est valable pour un faisceau sonde de taille supérieure à la taille caractéristique du piège et dans le cas d'absorption faible. Pour la section efficace d'absorption à résonance ($\delta = 0$) nous obtenons:

$$\sigma = h \frac{c}{\lambda} \frac{dN_{ph}}{dt} \frac{1}{I_s} = \frac{3\lambda^2}{2\pi} \frac{1}{1 + 2\Omega_s^2/\Gamma^2}. \quad (2.78)$$

Le coefficient d'absorption A dans ce cas est proportionnel au nombre d'atomes et est:

$$A = \frac{P_A}{P_s} = \text{Const} \times \sigma N, \quad (2.79)$$

où P_s est la puissance du faisceau laser sonde. La précision des mesures absolues du nombre d'atomes par cette méthode est évidemment très faible, mais pour analyser le fonctionnement du piège sombre nous n'avons besoin que des valeurs relatives des coefficients d'absorption pour les différents états hyperfins $F = 3$ et $F = 4$. Plus précisément nous allons analyser le piège sombre à l'aide de deux paramètres: la population fractionnelle de l'état sombre (Eq. (2.54)) et en ce qui concerne le nombre d'atomes dans le piège sombre, le rapport entre le nombre d'atomes total dans le piège sombre N_{ps} et celui du

piège en fonctionnement brillant:

$$\frac{N_{ps}}{N_{\text{piège}}} = \frac{N_4 + N_3}{N_4^{\text{piège}}}. \quad (2.80)$$

Ici N_4 et N_3 représentent le nombre d'atomes dans les états $F = 4$ et $F = 3$ dans le piège sombre et $N_4^{\text{piège}}$ est le nombre d'atomes dans le piège en fonctionnement brillant³. Le nombre d'atomes dans le piège en fonctionnement brillant $N_{\text{piège}}$ a été mesuré par la méthode décrite dans le § 2.4.2 à l'aide d'une photodiode calibrée. En utilisant ces expressions (2.54) et (2.80) et l'expression pour le coefficient d'absorption (2.79) on exprime les paramètres p et $N_{ps}/N_{\text{piège}}$ par les coefficients d'absorption du piège A_4 (à partir de $F = 4$) et A_3 (à partir de $F = 3$) correspondant aux transitions choisies pour l'estimation:

$$p = \frac{A_4}{A_4 + A_3\sigma_4/\sigma_3}, \quad (2.81)$$

$$\frac{N_{ps}}{N_{\text{piège}}} = \frac{A_4 + A_3\sigma_4/\sigma_3}{A_4^{\text{piège}}}. \quad (2.82)$$

Ici σ_3 et σ_4 sont les sections efficaces d'absorption correspondant à ces transitions. Des exemples de spectres d'absorption typiques pour les transitions à partir des niveaux $F = 4$ dans le piège brillant et $F = 3$ dans le piège sombre sont présentés sur la figure 2-15. Les résonances présentent des profils lorentziens avec une largeur à mi-hauteur d'environ 8 MHz. La précision de la mesure de la largeur des résonances est d'environ 1 MHz et est due essentiellement à la dérivée en fréquence du laser sonde fonctionnant sans l'asservissement. Notons, que l'élargissement, dû au gradient de champ magnétique est de l'ordre de 1 MHz, inférieur à la largeur naturelle du niveau excité. On note que les intensités des raies d'absorption expérimentales sont différentes de celles données par les intensités correspondant à ces transitions (par exemple pour les transitions à partir de niveau hyperfin $F = 3$: $S_{32} : S_{33} : S_{34} = 20 : 21 : 15$). Dans nos expériences ceci

³Dans le fonctionnement en piège brillant, tous les atomes sont dans le niveau $F = 4$. Les mesures d'absorption ne permettent pas de mettre en évidence une fraction appréciable d'atomes dans le niveau $F = 3$.

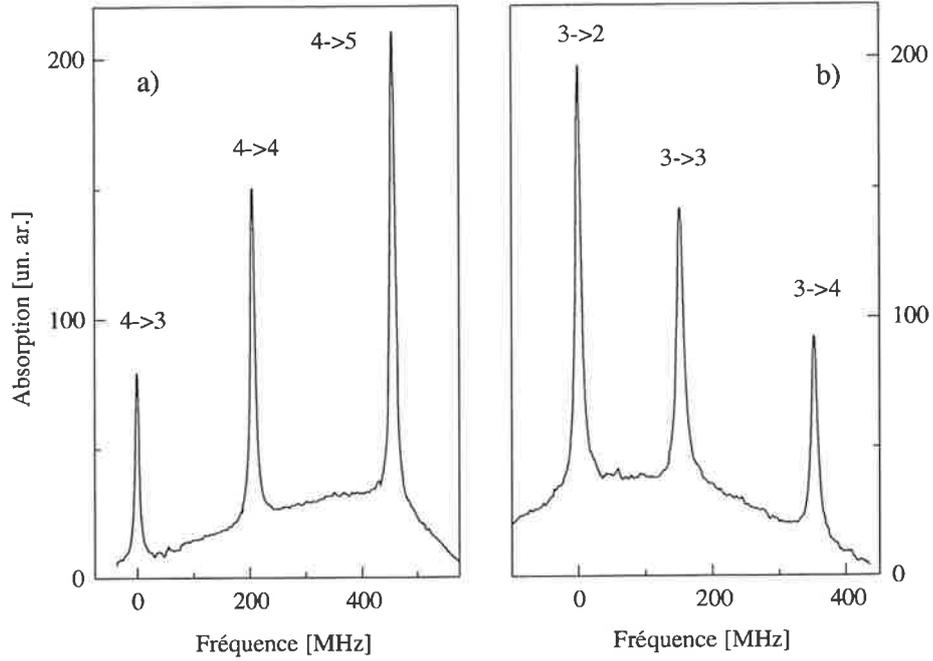


Figure 2-15: Les raies d'absorption du piège à partir du sous-niveau hyperfin du niveau fondamental $F = 4$ dans le piège "brillant" (a) et $F = 3$ dans le piège sombre dé pompé avec une population fractionnelle de l'état brillant $p \simeq 0.15$ (b). Les chiffres devant les raies dénotent les transitions entre les niveaux hyperfins correspondants.

est lié probablement au taux de pompage par laser sonde sur les transitions "ouvertes" (par exemple suivant le schéma: $F = 3 \rightarrow F' = 4 \rightarrow F = 4$) qui n'est pas négligeable. Pour éviter cet inconvénient pour l'estimation des paramètres (2.81) et (2.82) ont été choisies les transitions "fermées" $F = 4 \rightarrow F' = 5$ et $F = 3 \rightarrow F' = 2$ pour déduire les populations dans l'état hyperfin du niveau fondamental $F = 4$ et $F = 3$ respectivement.

Le rapport des sections efficaces d'absorption σ_4/σ_3 inclus dans les formules (2.81), (2.82), pour le cas où l'intensité du laser sonde est inférieure à l'intensité de saturation $I_s/I_0 \ll 1$ ($\Omega_{32}^2 \ll \Gamma^2$, $\Omega_{45}^2 \ll \Gamma^2$), est égal approximativement au rapport des fréquences de Rabi associées aux transitions correspondantes:

$$\frac{\sigma_4}{\sigma_3} = \frac{\Omega_{45}^2}{\Omega_{32}^2} \frac{1 + 2\Omega_{32}^2/\Gamma^2}{1 + 2\Omega_{45}^2/\Gamma^2} \simeq \frac{\Omega_{45}^2}{\Omega_{32}^2}. \quad (2.83)$$

Le rapport des fréquences de Rabi associé aux transitions entre les état hyperfins peut être estimé à l'aide des intensités de ces transitions (voir annexe A):

$$\frac{\Omega_{45}^2}{\Omega_{32}^2} = \frac{S_{45}}{S_{32}} = \frac{11}{5} \sim 2. \quad (2.84)$$

Remarque: nous avons estimé ici de manière grossière, par l'intermédiaire de l'intensité des transitions, les fréquences de Rabi en considérant que le rayonnement du laser sonde n'est pas polarisé. Ceci est lié au fait que l'état hyperfin $F = 3$ possède des sous-états Zeeman qui dans le cas de transition $F = 3 \rightarrow F' = 2$ ne sont pas couplés avec le rayonnement polarisé (dans le cas de polarisation π ce sont les états $m_F = \pm 3$, dans le cas de polarisation σ c'est l'un des états $|m_F| = 3$, voir la figure A-1 de l'annexe A). L'estimation plus précise tenant compte de la polarisation du rayonnement du laser sonde est difficile dans cette situation.

2.5.6 Résultats expérimentaux

α) Effet de saturation de la transition de repompage.

Nous avons déjà dit plus haut que dans le cas des alcalins lourds comme le césium ou le rubidium, à cause du grand écart entre les niveaux hyperfins et par conséquent à cause du faible taux d'excitation non résonnante, il est impossible d'obtenir un transfert significatif vers le niveau hyperfin $F = 3$ sans d'affecter le processus de collection d'atomes dans le piège. Ceci résulte du fait que l'intensité de repompeur nécessaire pour compenser le dépompage naturel par le processus non résonant dans le nuage d'atomes piégés est relativement faible pour les alcalins lourds dû au taux de dépompage faible, tandis que pour un atome en dehors du volume de piégeage (zone de collection des atomes) l'intensité de repompeur nécessaire pour saturer la transition est beaucoup plus élevée. Comme il a été montré dans les références [39], [47] à cause de l'effet Doppler et du déplacement des niveaux par effet Zeeman, pour un tel atome le désaccord de résonance peut être de quelques largeurs naturelles du niveau excité. Par exemple l'élargissement Doppler δ_D

pour un atome avec une vitesse de l'ordre de la vitesse de capture $v_c \sim 15$ m/s excède trois largeurs naturelles du niveau excité.

En utilisant l'expression (2.65) obtenue dans le § 2.5.2 la population fractionnelle de l'état brillant pour les atomes piégés s'écrit:

$$p \approx \left(1 + \frac{I_{tot}}{I_{rep}} \frac{\Gamma^2}{4(\Delta + \delta)^2} \right)^{-1}. \quad (2.85)$$

De manière analogue on obtient l'expression pour la population fractionnelle de l'état brillant pour les atomes dans la zone de collection des atomes:

$$p' \approx \left(1 + \frac{I_{tot}}{I_{rep}} \frac{\delta_D^2}{4(\Delta + \delta)^2} \right)^{-1}. \quad (2.86)$$

Cette expression est obtenue en tenant compte du déplacement Doppler δ_D dans l'équation (2.59). L'équation (2.86) permet d'estimer les pertes dans la collection des atomes dues à la réduction de l'intensité des faisceaux laser repompeur. (L'atome dans l'état hyperfin $F = 3$ échappe à l'interaction avec les lasers de refroidissement et de piégeage). La figure 2-16 (a) présente l'évolution de nombre relatif d'atomes piégés et de la population fractionnelle de l'état brillant p dans le piège en fonctionnement normal. Les cercles sont les points expérimentaux, obtenus par mesure d'absorption à partir du niveau $F = 4$ dans un piège brillant. N_{max} correspond au nombre d'atomes piégés typique dans le piège brillant pour une valeur de l'intensité de repompeur optimale. Les résultats similaires à ceux présentés sur la figure 2-16 (a) ont été obtenus dans la référence [47] pour le piège de césium avec les conditions expérimentales comparables. Les pertes d'atomes dans le processus de collection à cause de la différence des intensités de rayonnement de laser repompeur pour la collection des atomes et pour la compensation de dépompagement naturel peuvent être sensiblement réduites dans le piège en fonctionnement du piège sombre, dit naturel (figure 2-16 (b)). Dans ce cas la réduction de l'intensité du laser repompeur dans la zone du piège est obtenue en utilisant un masque noir. Cependant la valeur minimale de population fractionnelle de l'état brillant qu'on peut obtenir dans un tel piège est

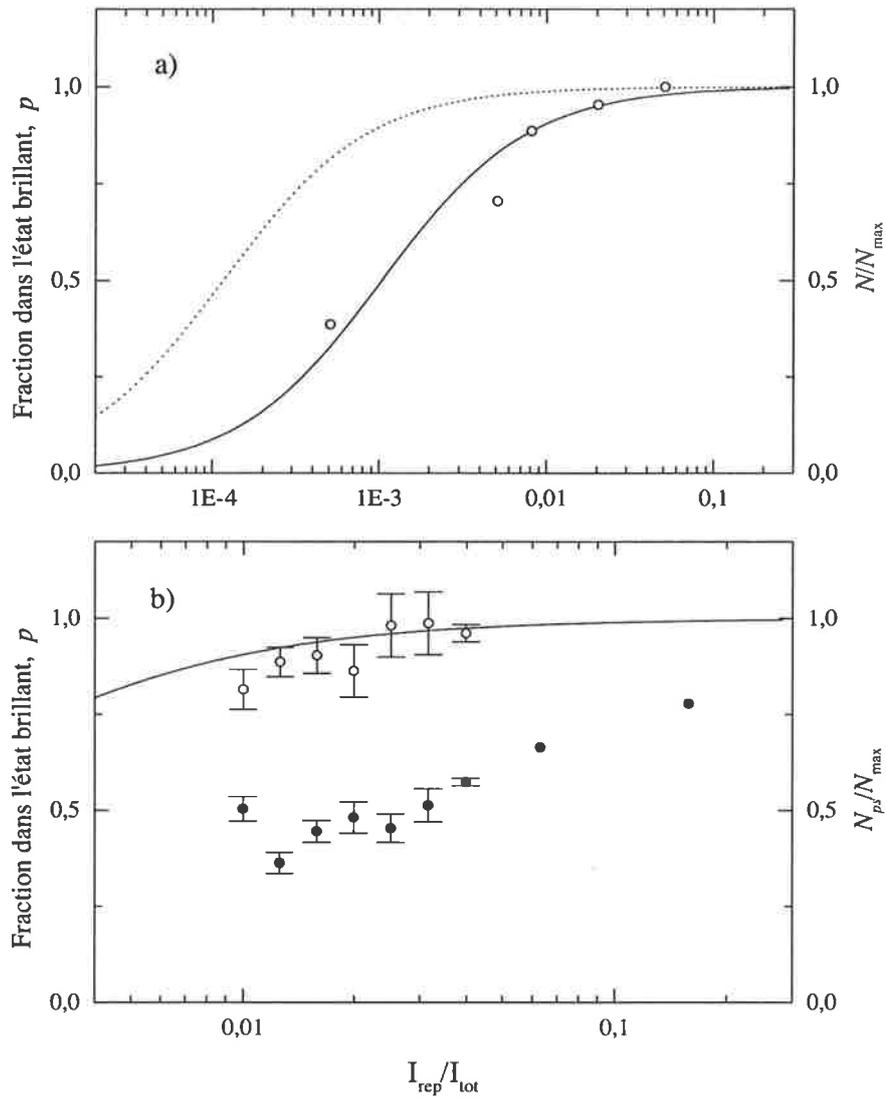


Figure 2-16: a) Le nombre relatif d'atomes dans le piège brillant (\circ) en fonction de l'intensité relative de repompeur I_{rep}/I_{tot} . La ligne pointillée correspond à l'équation (2.85) pour la population fractionnelle de l'état brillant p dans le piège "brillant". b) Le nombre relatif d'atomes (\circ) et la population fractionnelle de l'état brillant p (\bullet) en fonction de l'intensité relative de repompeur I_{rep}/I_{tot} dans le piège sombre "naturel" utilisant un masque de 2 mm de diamètre. La ligne continue sur les deux figures a) et b) correspond à l'équation (2.86) avec $\delta_D = 3\Gamma$. L'intensité totale des faisceaux laser de piégeage $I_{tot} \simeq 18 \text{ mW/cm}^2$.

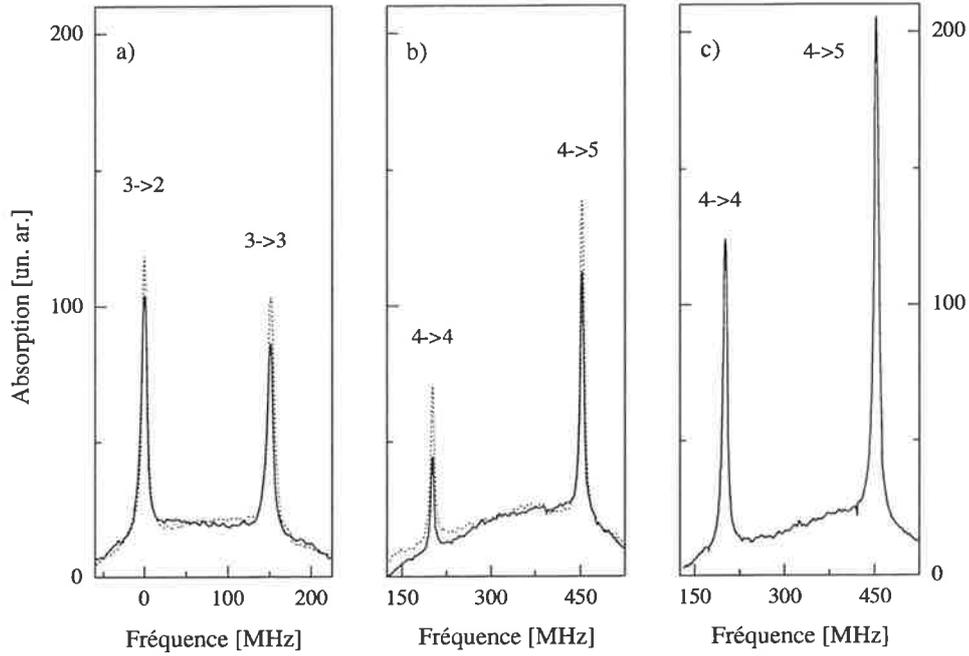


Figure 2-17: Les raies d'absorption du piège à partir du sous-niveau hyperfin du niveau fondamental $F = 3$ a) et $F = 4$ b) dans le piège sombre utilisant un masque de 2 mm (raies en ligne continue) et 1.5 mm (raies en ligne pointillée). c) Les raies d'absorption du piège à partir du sous-niveau hyperfin $F = 4$ dans le piège brillant.

$p \sim 0.5$. Cette valeur est en accord avec les expériences dans le piège de rubidium sans pompueur [39]. Ceci est lié à la présence de lumière résiduelle du laser pompueur due par exemple à la diffusion sur les fenêtres de l'enceinte à vide. En plus les pertes dans la collection des atomes pour une valeur de l'intensité de laser pompueur nécessaire pour obtenir une telle population sont encore importantes. Ces pertes peuvent être réduites en utilisant les masques de taille plus petite. Dans nos expériences nous avons utilisé les masques de la taille 1.5, 2 et 3 mm de diamètre. Les meilleurs résultats pour le piège sombre sans pompueur ont été obtenus pour un masque de 1.5 mm diamètre (figure 2-17). Ceci est lié probablement au fait que la plage spatiale de capture pour le piège est faible dans nos expériences. Cette plage est limitée par la taille des faisceaux de refroidissement et de repompage. Dans nos expériences la taille des faisceaux repompeurs a été

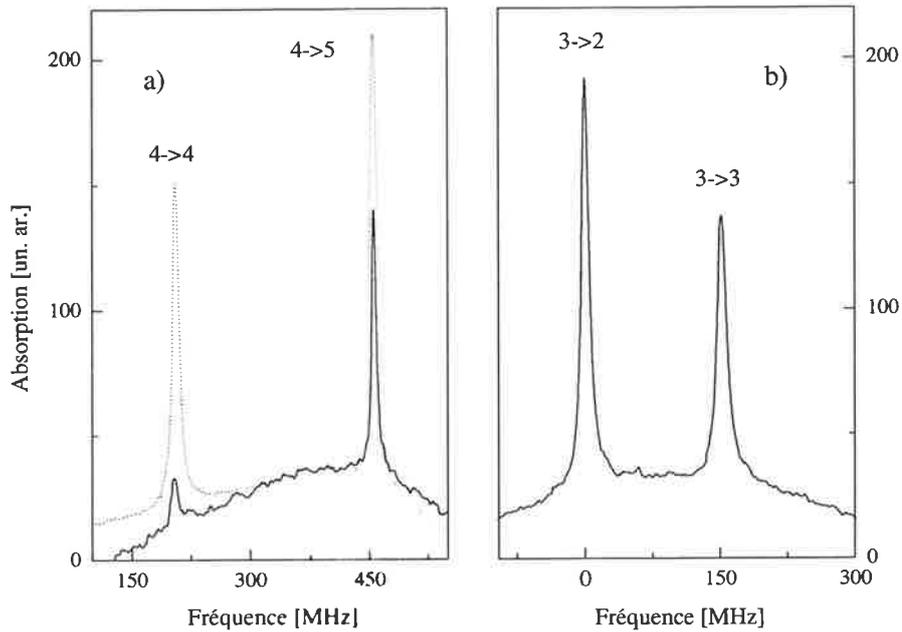


Figure 2-18: Les raies d'absorption du piège à partir du sous-niveau hyperfin du niveau fondamental $F = 4$ dans le piège sombre dé pompé (raies en ligne continue) et dans le piège brillant (raies en ligne pointillée) (a) et $F = 3$ dans le piège sombre dé pompé avec une population fractionnelle $p \sim 0.2$ et un rapport $N_{ps}/N_{piège} \sim 2$ (b).

réduite pour éviter toute diffraction sur les grilles nécessaires pour appliquer le champ électrique (voir figure 3-6 du chapitre suivant). Notons que certaines améliorations des caractéristiques du piège sombre sans dé pompé peuvent être obtenues en utilisant un laser repompé désaccordé en fréquence par rapport à la transition de repompé [39].

Cependant la méthode la plus efficace pour obtenir une petite fraction d'atomes dans l'état "brillant" est l'utilisation d'un laser dé pompé. Pour les expériences avec un laser dé pompé, nous avons utilisé un masque de 2 mm de diamètre et un laser dé pompé ayant le diamètre de faisceau de ~ 2 mm. Avec ces paramètres les processus de collection et de piégeage d'atomes ne sont pas sensiblement affectés. L'intensité du laser dé pompé permettant d'obtenir $p \sim 0.2$ dans nos expériences était d'environ $350 \mu\text{W}/\text{cm}^2$. Une plus faible intensité est nécessaire pour une taille de faisceau plus grande: par exemple le faisceau de diamètre 3.5 mm avec une intensité de $100 \mu\text{W}/\text{cm}^2$ a été utilisé dans la

référence [47]. Le régime avec l'intensité de laser dépompeur plus faible est préférable car l'inconvénient majeur dans l'utilisation du dépompage forcé est le réchauffement des atomes dans le piège, dû au laser dépompeur. Les études effectuées dans la référence [47] montrent que l'addition d'un laser dépompeur relativement faible de $50 - 60 \mu\text{W}/\text{cm}^2$ augmente sensiblement la température de la mélasse. Un exemple de spectre d'absorption dans le cas d'un piège sombre dé pompé est présenté sur la figure 2-18. La diminution de la section efficace d'absorption sur la transition $F = 4 \rightarrow F' = 4$ dans ce cas est liée à la présence du laser dépompeur accordé sur la même transition.

β) Le nombre d'atomes dans le piège sombre

Les mesures du nombre relatif d'atomes piégés en fonction de la population fractionnelle de l'état "brillant" ont été réalisées dans le cas d'un piège sombre dé pompé, obtenu à partir d'un piège brillant avec une population stationnaire dans le niveau excité de $\Pi_e \simeq 0.3$. Les résultats sont présentés sur la figure 2-19. Le nombre d'atomes $N = 7 \times 10^7$ correspondant à $p = 1$ (piège brillant) est mesuré par la méthode de fluorescence à l'aide de la photodiode calibre (voir § 2.4.2). Les résultats expérimentaux sont en accord satisfaisant avec une prédiction théorique donnée dans le § 2.5.3. On note cependant une grande dispersion des valeurs expérimentales ce qui montre une faible précision de nos mesures. L'augmentation du nombre d'atomes de facteur ~ 2 pour le paramètre $p \sim 0.15$ est du même ordre de grandeur que celle obtenue dans le cas de rubidium pour des conditions expérimentales similaires de pression de vapeur de rubidium de $10^{-9} - 10^{-8}$ Torr (figure 1 de référence [39]). Les études effectuées dans nos expériences concernent une mesure du nombre d'atomes. La densité atomique dans nos expériences n'a pas été mesurée. De telles mesures ont été faites dans la référence [47] montrant également une faible augmentation de la densité dans le piège sombre: d'un facteur ~ 5 supérieur à la densité de piège ordinaire.

Ces résultats sont très différents de ceux obtenus dans les expériences avec le piège de sodium [19], qui utilise un piège de grande dimensions ~ 3 mm de diamètre de nuage

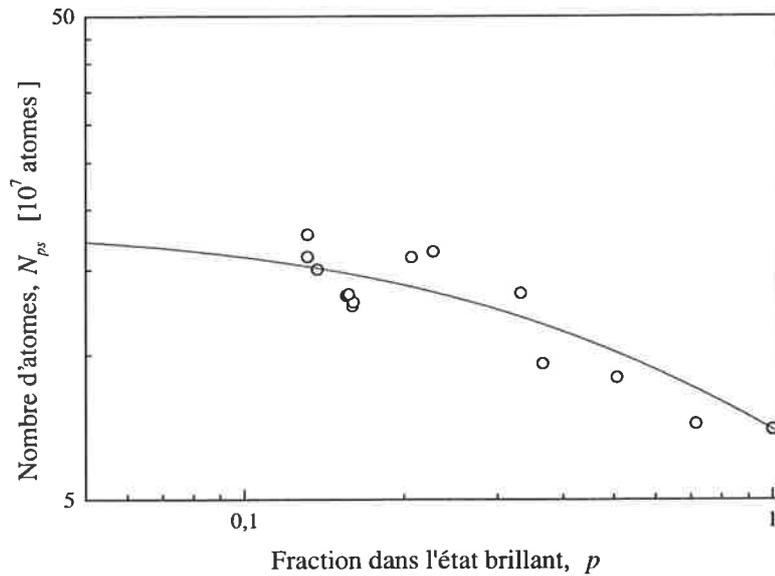


Figure 2-19: Nombre d'atomes dans le piège sombre exprimé en fonction de la fraction d'atomes dans un état brillant p . La ligne continue correspond à l'équation (2.71) avec le paramètre $\sigma_e/\sigma_f = 5.5$.

atomique réalisé à partir d'un jet prérefroidi par laser où les pertes d'atomes dans le piège sont dues aux collisions avec les atomes de jet atomique plutôt qu'avec la vapeur de sodium. Nos résultats sont comparables avec des expériences réalisées avec le rubidium et le césium ce qui montre que la méthode du piège sombre est efficace plutôt pour les atomes légers comme le sodium. De même dans le cas de fonctionnement du piège dans des conditions de très faible pression de vapeur, où les pertes d'atomes piégés sont déterminés par d'autres types de collision, la méthode de piège sombre peut être assez efficace, par exemple dans le cas des collisions des atomes froids en présence de rayonnement [39].

2.6 Conclusion

L'utilisation de la technique de "dark-SPOT" (piège sombre) pour le piège magnéto-optique de césium permet de réduire le taux des pertes d'atomes résultant des collisions avec les atomes de la vapeur de césium dans l'enceinte, correspondant au mécanisme

essentiel de pertes pour le piège fonctionnant dans les conditions de pression de vapeur modérée de $10^{-9} - 10^{-8}$ Torr. Cependant l'augmentation du nombre d'atomes obtenue dans le piège sombre avec les paramètres expérimentaux typiques pour le piège normal est faible ~ 2 . On peut espérer obtenir un nombre d'atomes jusqu'à 10^8 atomes dans tel piège sombre. Cette valeur est déterminée par la différence des sections efficaces de collision entre atomes dans un état fondamental et dans un état excité, relativement faible de ~ 6 .

Les difficultés d'application de cette technique pour les alcalins lourds à savoir les modifications du mécanisme par addition d'un laser complémentaire de dépompage diminuent l'intérêt de la méthode. Plus précisément il est impossible de réduire l'excès de température dans le piège en utilisant cette méthode. Néanmoins cette technique peut être utilisée comme moyen d'obtenir un piège dont la plupart des atomes se trouvent dans un niveau hyperfin de plus basse énergie du niveau fondamental, qui n'est pas couplé avec le rayonnement de laser de piégeage, avec une densité atomique comparable ou légèrement supérieure à la densité typique du piège ordinaire. Le réchauffement du nuage des atomes du piège par le laser dépompeur peut être compensé par la réduction de l'excès de température dans le piège due à la diffusion multiple. La température d'un tel piège sombre peut être finalement comparable à celle des pièges ordinaires. Un tel piège a été utilisé par exemple dans les expériences de photoassociation, pour considérer des collisions entre atomes dans le niveau hyperfin du fondamental de plus basse énergie.

Chapitre 3

Etude expérimentale des propriétés d'un gaz de Rydberg gelé de césium: Mise en évidence d'effets à plusieurs corps

3.1 Introduction

Nous abordons maintenant le coeur du sujet de ce travail qui est l'étude des problèmes liés aux interactions ou aux collisions dans un gaz d'atomes de Rydberg ultra-froids. Le choix d'étudier des atomes de Rydberg froids pour comprendre les phénomènes d'interaction inter-atomique dans un gaz d'atomes froids a été motivé par le fait que ces atomes "de grande dimension" sont sensibles à toute perturbation, en particulier celle due à leurs voisins. Un gaz d'atomes de Rydberg froids peut être efficacement créé par excitation d'atomes froids par une impulsion laser (durée ~ 10 ns). Dans les expériences de collisions mettant en jeu des atomes de Rydberg, les collisions résonnantes [8] ont donné des résultats spectaculaires. Ces collisions résonnantes correspondent à des collisions avec transfert résonnant d'énergie interne. Le premier exemple étudié fut celui du sodium avec

la réaction:



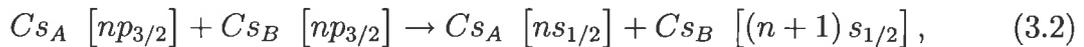
où l'accord à résonance est obtenu à l'aide d'un petit champ électrique qui déplace les niveaux d'énergie de l'atome jusqu'à amener en énergie le niveaux ns à mi-chemin entre les niveaux np et $(n+1)p$. Les paramètres d'impact mesurés excédaient d'un ordre de grandeur la taille de l'atome ($\sim n^2$ u.a.). Les temps caractéristiques de collision atteignaient jusqu'à 10 ns (pour $n \sim 20$). Ces valeurs exceptionnelles pour des collisions sont dues au dipôle considérable ($\sim n^2$ u.a.) associé aux atomes de Rydberg. L'interprétation de ces collisions, sur lesquelles nous reviendrons s'effectue en traitant l'interaction entre atomes de Rydberg comme purement dipôle-dipôle. On montre que le paramètre d'impact de collision et le temps caractéristique doivent croître lorsque la vitesse relative de collision diminue, jusqu'à atteindre respectivement pour $v \sim 10 - 15$ cm/s, $40 \mu\text{m}$ et $500 \mu\text{s}$ (pour $n \sim 20$). Ces considérations nous ont naturellement conduit à se poser le problème des collisions résonantes dans un gaz d'atomes de Rydberg ultra-froids. Considérons un gaz d'atomes de Rydberg froids c'est à dire à une température de 100 à 200 μK , correspondant à une vitesse moyenne des atomes de l'ordre de 10 cm/s. Admettons une densité entre 10^8 à 10^{10} atomes de Rydberg / cm^3 . Une telle densité correspond à une distance moyenne entre atomes proches voisins de l'ordre de $20 - 5 \mu\text{m}$. Les considérations précédentes sur les paramètres d'impact nous conduisent naturellement à conclure que nous sommes dans des conditions où les phénomènes à plusieurs corps doivent se produire.

On considère, en général que les processus d'échange d'énergie entre les atomes sont régis principalement par l'interaction binaire. La situation est donc complètement différente dans un ensemble d'atomes de Rydberg ultra-froids en situation de collisions résonantes. L'enthousiasme à étudier une telle situation (paramètre d'impact beaucoup plus large que la distance moyenne entre proches voisins) favorable à l'apparition d'effets à plusieurs corps doit être tempéré par une durée de vie courte du gaz de Rydberg gelé, qui est typiquement de $10 \mu\text{s}$ (pour $n \sim 20$). Il faut comparer ce temps au temps caractéristique des collisions, $\sim 500 \mu\text{s}$. Un temps de vie aussi court peut-il permettre

aux effets à plusieurs corps de se manifester? Que signifie cette nouvelle contrainte? Les temps de vie "courts" des atomes de Rydberg imposent des durées d'expérience encore plus courtes (typiquement quelques microsecondes). En de telles durées d'expérience les atomes vont pouvoir se déplacer d'une distance d'environ 100 nm c'est à dire typiquement la taille des atomes de Rydberg. Cette quantité doit aussi être comparée à la distance moyenne entre atomes de Rydberg proche voisins ($20 - 5 \mu\text{m}$). Il est clair que le gaz de Rydberg ultra-froids peut être considéré comme figé durant la durée de l'expérience. On peut oublier le mouvement des atomes. On a réalisé un gaz de Rydberg gelé. Remarquons tout de suite que toutes les quantités précédentes sont plus large que la longueur d'onde de De Broglie ~ 30 nm associée à ce gaz dont on considère que les "particules" ont un comportement classique. On peut oublier les phénomènes de collision dans un tel gaz. Toutefois, les atomes "immobiles" interagissent toujours par interaction dipôle-dipôle. Le gaz de Rydberg gelé peut s'apparenter davantage à un solide, solide amorphe à cause de la répartition stochastique des atomes.

Comment va se comporter un tel gaz? L'interaction binaire entre atomes proches voisins suffit-elle à en comprendre les propriétés ou des effets à plusieurs atomes peuvent-ils se manifester? On peut noter que l'inverse de l'interaction typique entre atomes proche voisins, qui correspond au temps caractéristique de l'interaction (temps pour que l'interaction produise un effet notable sur le système) pour les densités maximales est plus court que le temps de l'expérience et le temps de vie des atomes de Rydberg. On verra que cette condition est essentielle pour l'apparition d'effets à plusieurs corps.

Dans ce chapitre nous allons exposer les résultats concernant l'étude expérimentale des propriétés d'un gaz de Rydberg gelé. Plus précisément nous étudions la dynamique d'échange résonnant d'énergie interne entre atomes de Rydberg froids, suivant la réaction:



dans le piège magnéto-optique de césium. Le premier paragraphe (3.2) sert à présenter quelques propriétés importantes des atomes de Rydberg. Dans le deuxième paragraphe

(3.3) nous décrivons le principe de l'expérience. L'approche théorique pour traiter les collisions résonnantes est présentée dans le paragraphe suivant (3.4), où nous discutons aussi le passage au régime de très faibles vitesses des atomes. Dans le paragraphe (3.5) nous discutons les détails de la réalisation d'ensemble d'atomes froids "à deux niveaux". La description du montage expérimental est donnée dans le paragraphe (3.6). Dans le paragraphe (3.7) nous présentons les résultats expérimentaux, en particulier l'étude de l'évolution des raies de résonance (réaction 3.2) en fonction de la densité d'atomes de Rydberg et le temps d'évolution libre du système. La discussion des résultats obtenus est présentée dans le dernier paragraphe (3.8).

3.2 Propriétés des atomes de Rydberg

L'intérêt de considérer des atomes de Rydberg pour l'étude de phénomènes d'interactions entre atomes, en particulier d'atomes froids, est lié aux propriétés particulières de ces atomes, "exagérées" par rapport aux atomes ordinaires. Plus précisément les atomes de Rydberg sont des atomes dans un état très excité avec un nombre quantique principal n élevé. La première propriété des atomes de Rydberg est la régularité des raies. Celle-ci a été découverte de manière expérimentale pour la série de Balmer de l'atome d'hydrogène. De manière générale cette régularité permet la classification des spectres des atomes, en particulier des atomes alcalins selon une loi empirique pour les nombres d'ondes correspondant aux séries de Rydberg ($l = s, p, d$):

$$\nu_l = \nu_l^\infty - \frac{Ry}{(n - \delta_l)^2}, \quad (3.3)$$

où ν_l^∞ et δ_l sont respectivement la limite de la série et son défaut quantique. La constante Ry dite de Rydberg est la constante universelle qui permet de décrire les différentes séries d'un même atome (elle s'applique pour tous les atomes). La signification physique claire du nombre n a été donnée après l'apparition du modèle de l'atome d'hydrogène proposé par N. Bohr. Un résultat important de ce modèle concernant les atomes de Rydberg est

que le rayon de l'orbitale r pour un électron de charge e est masse m en mouvement autour d'un coeur de masse très grande et de charge Ze est proportionnel au carré du nombre quantique principal n :

$$r = \frac{n^2 \hbar^2}{kZe^2m}, \quad k = \frac{1}{4\pi\epsilon_0}, \quad (3.4)$$

où ϵ_0 est la permittivité du vide. Les atomes dans l'état très excité avec n très grand ont donc des tailles très grandes. Les énergies des états de Rydberg sont négatives et décroissent en valeur absolue comme n^{-2} :

$$E = -\frac{Z^2 e^4 m k^2}{2\hbar^2} \frac{1}{n^2} = -\frac{Ry}{n^2}. \quad (3.5)$$

De ce modèle on voit déjà les propriétés intéressantes des atomes de Rydberg, soit l'électron de valence a une orbitale très grande et est faiblement lié au coeur. Par exemple pour un atome avec $n = 10$, l'énergie de liaison de l'électron est comparable à l'énergie thermique (1/40 eV) et la section efficace géométrique $\sigma \sim r^2 \sim n^4$ est de trois à quatre ordres de grandeur plus large que pour des atomes ordinaires.

La plupart des propriétés des atomes de Rydberg découlent des propriétés précédentes: par exemple la sensibilité de ces atomes au champ électrique (l'effet Stark). Cette grande sensibilité conduit à l'effet qu'un champ électrique relativement faible peut non seulement perturber les niveaux énergétiques de l'atome mais peut également ioniser cet atome lorsque le champ devient assez fort. On peut calculer le champ classique nécessaire pour ioniser un atome de nombre quantique principal n :

$$\mathcal{E}_{cl} = \frac{Ry}{4kn^4}. \quad (3.6)$$

Le champ d'ionisation décroît donc comme n^{-4} . D'une manière générale, les atomes de Rydberg sont très sensibles à toutes perturbations par un champ électrique, un champ magnétique, un champ électro-magnétique ou à des processus de collisions. Les états de

Rydberg de l'hydrogène et des autres atomes sont très similaires. La différence provient du coeur (atome moins l'électron de Rydberg) qui dans le cas des atomes non hydrogénéoïdes possède une taille finie. Ce coeur est composé du noyau de l'atome (ayant N protons) et de $N - 1$ électrons et possède un nuage électronique dans lequel peut pénétrer l'électron de Rydberg. Cette différence entre l'atome hydrogène et les atomes comme les alcalins est minimale lorsqu'un électron se trouve en un point éloigné sur son orbite elliptique où seul la charge totale de coeur intervient. Par contre à la proximité du coeur l'effet de la distribution de charge du noyau électronique devient très important. Les effets de polarisation de coeur et de pénétration de l'électron de Rydberg dans le coeur modifient la fonction d'onde d'un atome de Rydberg. Plus précisément il s'ajoute un déphasage dans la fonction d'onde et l'énergie de l'état de Rydberg de l'atome alcalin par rapport à ceux de l'hydrogène va s'exprimer en ajoutant un défaut quantique dans la formule pour l'énergie (3.5). La différence est plus importante pour les états de faible moment angulaire, lorsque les orbites sont très elliptiques et très pénétrantes. Ces effets conduisent à la décroissance de l'énergie totale des états de Rydberg. Ces énergies sont données par l'expression suivante pour des états de nombres quantiques principal n et orbital l :

$$E_{n,l} = -\frac{Ry}{(n - \delta_l)^2}, \quad (3.7)$$

où δ_l est le défaut quantique correspondant à l'état avec le moment angulaire l . Le tableau 3.1 donne les défauts quantiques pour l'atome de césium.

	$nS_{1/2}$	$nP_{1/2}$	$nP_{3/2}$	$nD_{3/2}$	$nD_{5/2}$
$\delta_{l,J}$	4.049	3.591	3.559	2.475	2.466

Tableau 3.1: Les défauts quantiques pour les états de faible moment angulaire des atomes de Rydberg de césium¹.

¹ référence [50].

De nombreuses références sont consacrées aux études des propriétés des atomes de Rydberg parmi lesquelles on peut citer deux ouvrages: [9], [51]. Nous allons donner ici quelques propriétés des atomes de Rydberg essentielles dans nos expériences. Le rayon orbital de l'électron de l'atome de Rydberg dépend aussi du moment angulaire et peut être calculé suivant l'expression:

$$R_o = n^2 + n\sqrt{n^2 - l(l+1)} \simeq 2n^2 \quad |_{n \gg l} . \quad (3.8)$$

On prendra pour la suite une dimension des atomes de Rydberg de $4n^2$. Le moment dipolaire est en général donné avec une bonne approximation par $\mu \simeq 0.6(n - \delta_l)^2$. Une caractéristique importante des atomes de Rydberg est la durée de vie de ces atomes. La durée de vie radiative des atomes de Rydberg d'alcalins est très différente de celle de l'atome d'hydrogène: en particulier celle de l'état np est plutôt grande pour un atome d'alcalin contrairement au cas de l'hydrogène. La durée de vie radiative est donnée par l'expression [52]:

$$\tau_{Ryd} = \tau_0 (n - \delta)^\alpha \quad [\text{ns}], \quad (3.9)$$

où les paramètres α et τ_0 dans le cas de l'atome de césium sont présentés dans le tableau 3.2.

	<i>s</i>	<i>p</i>	<i>d</i>
α	2.96	2.94	2.93
τ_0	1.43	4.42	0.96

Tableau 3.2: Paramètres pour le calcul des durées de vie radiatives des atomes de Rydberg de césium¹.

¹ reference [52].

Cette valeur de la durée de vie radiative donnée par l'expression (3.9) doit être corrigée par les effets de relaxation induite par l'interaction de l'atome de Rydberg avec

le rayonnement du corps noir. La durée de vie d'un atome de Rydberg dans ce cas est donnée par l'expression suivante [53]:

$$\frac{1}{\tau_{n,l}^{tot}} = \frac{1}{\tau_{n,l}} + \frac{1}{\tau_{n,l}^{cn}}, \quad (3.10)$$

où l'expression approximative pour calculer le terme correspondant à l'effet de radiation du corps noir est pour les états p [53]:

$$\frac{1}{\tau_{n,l}^{cn}} \simeq \frac{4\alpha^3 k_B T}{3(n - \delta_l)^2} \quad (\text{u. a.}), \quad (3.11)$$

où α est la constante de structure fine. Le tableau 3.3 présente la comparaison des durées de vie pour des états s et p . Les valeurs pour $l = 1$ (p) sont corrigées en tenant compte de l'effet de radiation du corps noir à l'aide des équations (3.10) et (3.11). Avec cette correction les durées de vie des états s et p ne sont pas très différentes.

	24s _{1/2}	23p _{3/2}	26s _{1/2}	26p _{3/2}
$\tau_n, \mu\text{s}$	10.1	27.2	13.4	41.4
$\tau_n^{cn}, \mu\text{s}$		18.6		24.8
$\tau_n^{tot}, \mu\text{s}$		11.0		15.5

Tableau 3.3: Les durées de vie des états de différents moments angulaires des atomes de Rydberg de césium.

Lorsque le champ électrique est appliqué à un atome les niveaux d'énergie sont déplacés (effet Stark). Pour un faible champ électrique \mathcal{E} ce déplacement a une dépendance quadratique avec le champ et pour un état avec un moment angulaire total J et de projection m_J il peut être décrit à l'aide de la polarisabilité scalaire α_0 et tensorielle α_2 suivant l'expression:

$$\Delta E_{st} = -\frac{1}{2} \left[\alpha_0 + \alpha_2 \frac{3m_J^2 - J(J+1)}{J(2J-1)} \right] \mathcal{E}^2, \quad (3.12)$$

En résumé, le tableau 3.4 donne la liste des propriétés essentielles des atomes de Rydberg et les valeurs précises pour le cas de l'atome de césium. Le développement des techniques des lasers à colorant permet d'exciter une grande proportion d'atomes dans un état de Rydberg bien défini. Dans le même temps, la sensibilité des atomes de Rydberg au champ électrique permet la modification de l'énergie des niveaux et leur détection par ionisation par champ. Les grands moments dipolaires des atomes de Rydberg dus à leur grande taille font de ces atomes des candidates idéales pour l'étude des interactions inter-atomiques, en particulier celles de type dipôle-dipôle.

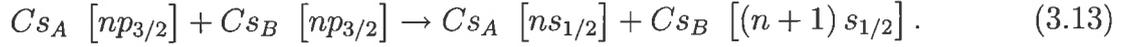
Propriété	Dépendance avec n	Cs 23p	Cs 26p
Energie de liaison	n^{-2}	0.036 eV	0.027 eV
Intervalle entre niveaux consécutifs	n^{-3}	0.0034 eV	0.0022 eV
Rayon orbital	n^2	420 Å	540 Å
Section efficace géométrique	n^4	550000 Å ²	920000 Å ²
Moment dipolaire $\langle np_{3/2} r ns_{1/2} \rangle$	n^2	200 u. a.	265 u. a.
Polarisabilité en champ électrique faible ($n \sim 30$)	n^7	10	MHz/(V/cm) ²
Durée de vie radiative	n^3	27.2 μs	41.4 μs
Intervalle de structure fine	n^{-3}	29 GHz	19 GHz
Champ d'ionisation classique	n^{-4}	2.25 kV/cm	1.27 kV/cm

Tableau 3.4: Propriétés des atomes de Rydberg.

3.3 Principe de l'expérience

Le principe des expériences sur le gaz de Rydberg gelé est très proche de celui des collisions résonantes entre les atomes de Rydberg thermiques [8], [9], [54]. La différence essentielle est que dans le cas des expériences sur un gaz de Rydberg gelé, on prépare préalablement un échantillon d'atomes froids de césium. On excite cet échantillon dans un état de Rydberg $np_{3/2}$ correspondant à des conditions d'interaction résonnante selon

la réaction:



Le principe des expériences dans un gaz de Rydberg gelé consiste à préparer un échantillon d'atomes excités dans un état de Rydberg bien défini (dans nos expériences il s'agit de l'état $np_{3/2}$ de césium, où n est le nombre quantique principal) et à le laisser ensuite évoluer librement sous l'effet des interactions mutuelles entre atomes. Les atomes de Rydberg ont du fait de leur grande taille des moments dipolaires importants ($\sim n^2$ unité atomique), ce qui permet des interactions de type dipôle-dipôle très efficaces entre atomes voisins. L'interaction dipolaire est de l'ordre de $\mu_1\mu_2/R_{AB}^3$, où R_{AB} est une distance entre deux atomes A et B , μ_1 et μ_2 sont les moments dipolaires liés aux transitions (figure 3-1):

$$\begin{aligned} \mu_1 &= \langle np_{3/2} | r | ns_{1/2} \rangle, \\ \mu_2 &= \langle np_{3/2} | r | (n+1)s_{1/2} \rangle. \end{aligned} \quad (3.14)$$

Dans des échantillons denses d'atomes de Rydberg froids, il est possible de réaliser des interactions "très fortes" entre atomes proches voisins. A l'aide d'un petit champ Stark on peut déplacer en énergie les niveaux $np_{3/2}$ du césium. Pour une valeur du champ définie, les niveaux ns et $(n+1)s$, se trouvent à une égale distance en énergie du niveau $np_{3/2}$. (Les niveaux $(n+1)s$ et ns ont respectivement une énergie supérieure et inférieure à l'énergie de niveau $np_{3/2}$). A cause de l'interaction dipôle-dipôle, deux atomes initialement dans un état $np_{3/2}$ peuvent échanger de l'énergie initiale de manière résonante (figure 3-1). Au cours de ce processus, un des deux atomes perd de l'énergie interne et fait une transition dans l'état ns , en même temps son partenaire acquiert de l'énergie interne et fait une transition vers l'état $(n+1)s$. Ce processus de transfert de l'énergie suit le schéma (3.13). Après excitation, le système reste en évolution libre pendant un intervalle du temps qui peut être variable et qui dans nos expériences est choisi entre 0.1 et 10 μs . La limite

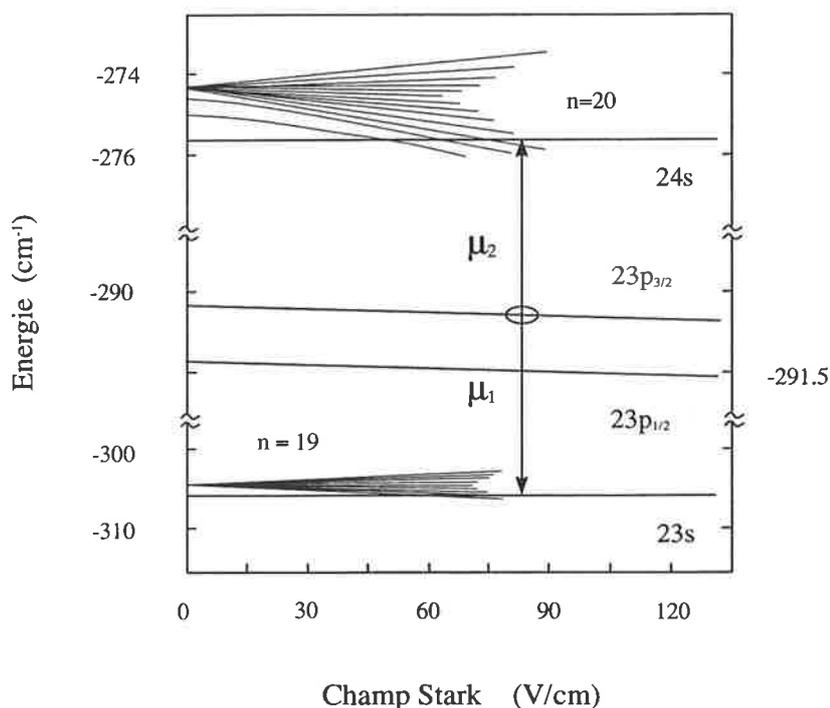


Figure 3-1: Diagramme des niveaux d'énergie de l'atome de césium entre des multiplicités $n = 19$ et $n = 20$ en présence du champ électrique (les états d ne sont pas présentés ici). Les flèches représentent le transfert résonant de population dû à l'interaction dipôle-dipôle avec les éléments de matrice dipolaire μ_1 et μ_2 respectivement. La position de la résonance est donnée par l'égalité: $E_{24s} - E_{23p_{3/2}} = E_{23p_{3/2}} - E_{23s}$. Les deux états $|m_j| = 1/2$ et $|m_j| = 3/2$ de niveau $23p_{3/2}$ ne sont pas discernables sur la figure.

supérieure $10 \mu s$ correspond à la durée de vie radiative des atomes de Rydberg. Les produits de réaction (3.13) peuvent être détectés sélectivement à l'aide de la méthode de l'ionisation par le champ électrique pulsé [55], [56]. En appliquant une impulsion de champ électrique dont l'amplitude au maximum est supérieure au seuil d'ionisation de l'état $(n+1)s$, mais inférieure aux seuils pour les états $np_{3/2}$ et ns nous pouvons détecter sélectivement les ions provenant des atomes dans l'état $(n+1)s$. La méthode de détection sera exposée en détail plus loin.

3.4 Des collisions résonnantes au gaz de Rydberg gelé

Traisons tout d'abord le cas des collisions résonnantes et comparons le au cas du gaz de Rydberg gelé. L'étude des collisions résonnantes, lorsque les partenaires de collision échangent leur énergie interne, dans le cas des gaz thermiques a été réalisée depuis longtemps. La motivation a été l'importance de ce type des processus d'échange d'énergie par exemple pour le développement de certains types de laser à gaz comme les lasers He-Ne ou CO₂ (il s'agit alors de processus quasi-résonants). L'utilisation des atomes de Rydberg pour l'étude de processus similaires permet d'atteindre les conditions de résonance. Les atomes de Rydberg possèdent une riche structure d'états, qui permet de trouver des coïncidences en énergie pour des transferts résonnants du type de réaction (3.13). Les atomes de Rydberg à cause de leur grand taille géométrique peuvent présenter des sections efficaces de collision importantes.

Considérons la réaction (3.13) et supposons qu'en collision les deux atomes suivent les trajectoires rectilignes avec une vitesse relative v et un paramètre d'impact b (la géométrie de cette collision est similaire à celle présentée sur la figure 2-11 du chapitre précédent). Le traitement théorique du processus des collisions résonnantes consiste à considérer l'interaction entre atomes de Rydberg comme une interaction dipôle-dipôle pure [10]. Pour obtenir la section efficace de collision on calcule la probabilité de transition $P(b)$ de l'état initial à l'état final du système durant la collision pour un paramètre d'impact b donné. La section efficace de collision peut être obtenue ensuite en intégrant cette probabilité sur toutes les valeurs du paramètre d'impact. D'abord on construit les états final et initial comme le produit des états atomiques avec les fonctions d'onde:

$$\begin{aligned}\Psi_i &= \psi_{Anp} \otimes \psi_{Bnp}, \\ \Psi_f &= \psi_{Ans} \otimes \psi_{B(n+1)s},\end{aligned}\tag{3.15}$$

où ψ_{Anl} et ψ_{Bnl} sont les fonctions d'onde atomiques des atomes A et B dans l'état nl . L'Hamiltonien du système dans le cas de l'interaction dipôle-dipôle avec les moments dipolaires donnés par l'expression (3.14) est:

$$H = H_0 + V = H_0 + \frac{\mu_1 \mu_2}{r^3} - 3 \frac{(\mu_1 \cdot \mathbf{r})(\mu_2 \cdot \mathbf{r})}{r^5}, \quad (3.16)$$

où H_0 est l'Hamiltonien correspondant à deux atomes sans interaction en présence de champ électrique. Pour les deux états possibles (3.15) du système considéré la solution générale de l'équation de Schrödinger dépendante du temps $H\Psi = i\partial\Psi/\partial t$ est:

$$\Psi = C_i(t) \Psi_i + C_f(t) \Psi_f. \quad (3.17)$$

Après la substitution de cette expression dans l'équation de Schrödinger nous obtenons deux équations couplées pour les amplitudes $C_i(t)$ et $C_f(t)$:

$$\begin{aligned} i \dot{C}_i(t) &= E_i C_i(t) + V_{if} C_f(t) + V_{ii} C_i(t), \\ i \dot{C}_f(t) &= E_f C_f(t) + V_{fi} C_i(t) + V_{ff} C_f(t), \end{aligned} \quad (3.18)$$

où E_i et E_f sont les énergies de l'état initial et l'état final respectivement: $E_i = 2E_{np}$, $E_f = E_{ns} + E_{(n+1)s}$. Les éléments de matrice d'interaction V_{if} dans ces équations (3.18) sont dépendants du temps car l'interaction V dépend de la distance inter-nucléaire. La solution analytique de ce système d'équations peut être trouvée seulement dans quelques cas particulier. Pour cela on utilise une approximation suivante. On considère $V_{ii} = V_{ff} = 0$ et on remplace le potentiel d'interaction donné par l'équation (3.16) par le potentiel rectangulaire. Donc on considère $V_{if} = \mu_1 \mu_2 / b^3$ constant pour $r < b\sqrt{5}/2$ et égal à zéro pour $r > b\sqrt{5}/2$. Pour les conditions initiales $C_i(t) = 1$ et $C_f(t) = 0$ (deux atomes sont dans l'état np) on trouve pour la probabilité de trouver l'un des atomes dans un état ns et l'autre dans un état $(n+1)s$ après la collision, une expression [10]:

$$P(b) = |C_f(t)|^2 = \frac{|V_{if}|^2}{\Omega^2} \sin^2\left(\frac{\Omega b}{v}\right), \quad (3.19)$$

où $\Omega = \frac{1}{2}\sqrt{(E_i - E_f)^2 + 4|V_{if}|^2}$. L'équation (3.19) donne une résonance de profil lorentzien avec une largeur de l'ordre de:

$$\Delta\nu \sim \frac{v^{3/2}}{\sqrt{\mu_1\mu_2}}. \quad (3.20)$$

Dans le cas de la résonance exacte la probabilité (3.19) est:

$$P(b) = \sin^2\left(\frac{\mu_1\mu_2}{b^2v}\right). \quad (3.21)$$

Dans les deux dernières expressions nous avons utilisé $V_{if} = \mu_1\mu_2/b^3$. L'intégration de probabilité (3.21) sur le paramètre d'impact $\sigma = \int P(b) 2\pi b db$ donne pour la section efficace de collision une expression [10]:

$$\sigma \sim b^2 = \frac{\mu_1\mu_2}{v}. \quad (3.22)$$

En utilisant la dernière expression (3.22) on peut estimer le temps caractéristique de collision qui est $\tau_{coll} = b/v = \sqrt{\mu_1\mu_2}/v^{3/2}$. La dépendance des largeurs des résonances (3.20) suivant la vitesse relative de collision a été étudiée pour des faibles vitesses en utilisant un jet atomique avec une sélection de vitesse mécanique [11].

Examinons maintenant le cas d'atomes de Rydberg ultra-froids dans le piège magnéto-optique. La vitesse de collision pour une température donnée T est:

$$v_{col} = \sqrt{\frac{8k_B T}{\pi M}}, \quad (3.23)$$

où k_B est la constante de Boltzman, M est la masse d'atome de césium. Pour la température Doppler $T \simeq 125$ K la vitesse moyenne est d'environ $v \simeq 14$ cm/s. Pour les valeurs des moments dipolaires $\mu_1 = \mu_2 \simeq 200$ u. a nous obtenons pour une telle vitesse le

temps de collision $\tau_{coll} \simeq 580 \mu s$. On voit, que le temps de collision dans ce cas excède considérablement la durée de vie d'atome de Rydberg $\tau_{Ryd} \simeq 10 \mu s$. Dans le même temps le paramètre d'impact calculé à l'aide de l'expression (3.22) est considérable $b \simeq 40 \mu m$. Comparons ce paramètre d'impact avec la distance moyenne entre atomes proches voisins dans l'ensemble d'atomes de Rydberg $\bar{R} \sim (n_{Ryd})^{-1/3}$. Pour les densités d'atomes de Rydberg entre 10^{10} et 10^8 cm^{-3} la distance moyenne est de l'ordre de $5 - 20 \mu m$ et pour les grandes densités elle est beaucoup plus petite par rapport au paramètre d'impact calculé. Ceci nous amène à conclure que d'une part, un si grand paramètre d'impact $b > \bar{R}$ doit favoriser l'apparition des effets à plusieurs atomes, mais d'autre part dans les conditions de temps caractéristique de collision beaucoup plus grands par rapport à la durée de vie de l'atome de Rydberg $\tau_{coll} \gg \tau_{Ryd}$ le comportement d'un tel système ne peut pas être considéré comme collisionnel.

La durée de vie des atomes de Rydberg définit en effet le temps de l'expérience t_{exp} qui est le temps d'évolution libre du système considéré et ce temps doit être choisi de l'ordre de la microseconde. Les atomes dans le piège avec une vitesse typique de $v \sim 10 \text{ cm/s}$ vont se déplacer pendant le temps de l'expérience $t_{exp} = 1 \mu s$ d'une distance ΔR de l'ordre de 100 nm . Comparons cette quantité avec la taille de l'atome de Rydberg $2R_o \simeq 4n^2$ (voir Eq. (3.8)). Pour $n = 23$ nous obtenons la taille d'atome de Rydberg d'environ 112 nm . En même temps la longueur d'onde de de Broglie vaut

$$\lambda_{dB} = \frac{h}{Mv} \approx 34 \text{ nm}, \quad (3.24)$$

ce qui signifie que le mouvement des atomes peuvent être considéré comme ayant un caractère classique. Ces estimations montrent, que pendant l'évolution libre du système les déplacements spatiaux d'atomes sont de même ordre de grandeur que la taille d'atome de Rydberg et sont beaucoup plus petits que la distance moyenne entre les plus proches voisins $\Delta R \sim 2R_o \ll \bar{R}$. Ceci nous amène à une conclusion importante, que l'on peut totalement négliger le mouvement des atomes pendant le temps d'évolution libre du

système¹. Pourtant les atomes de Rydberg, bien qu'immobiles, restent en interaction mutuelle à travers l'interaction dipôle-dipôle. Le temps caractéristique correspondant à l'inverse de l'interaction typique entre proches voisins est:

$$\tau_{int} = V^{-1} = \left(\frac{\mu_1 \mu_2}{R^3} \right)^{-1}. \quad (3.25)$$

Pour les valeurs des moments dipolaires $\mu_1 \simeq \mu_2 = 200$ u. a et les distances moyennes \bar{R} entre proches voisins entre 5 et 20 μm correspondant aux densités comprises entre 10^{10} et 10^8 cm^{-3} nous obtenons les temps caractéristiques d'interaction dans l'ensemble τ_{int} entre 0.4 et 40 μs . Pour une densité d'atomes de Rydberg maximale dans nos expériences $\sim 10^{10}$ cm^{-3} nous obtenons la situation où le temps caractéristique de l'interaction dans l'ensemble est inférieur aux temps caractéristiques du système:

$$\tau_{coll} \gg \tau_{Ryd} > \tau_{exp} \gg \tau_{int}. \quad (3.26)$$

On voit donc que ce système ne présente plus le phénomène de caractère collisionnel. On ne s'attend donc plus à des effets de collisions binaires mais à des effets à N corps.

3.5 Le diagramme Stark d'énergie et l'excitation dans des états de Rydberg

En présence d'un champ électrique la dégénérescence du niveau $np_{3/2}$ par rapport à $|m_j|$ est levée (m_j est le nombre quantique magnétique total). L'écart d'énergie entre ces deux niveaux autour de résonance est de l'ordre de 1.2 GHz pour $n = 23$. Comme nous le verrons plus loin la largeur spectrale du laser d'excitation dans nos expériences est d'environ 3 GHz, ce qui signifie qu'on excite des niveaux $np_{3/2}$ $|m_j| = 1/2$ et $np_{3/2}$ $|m_j| =$

¹L'image quasistatique similaire a été utilisée dans la référence [57] pour le gaz de Rydberg thermique très dense.

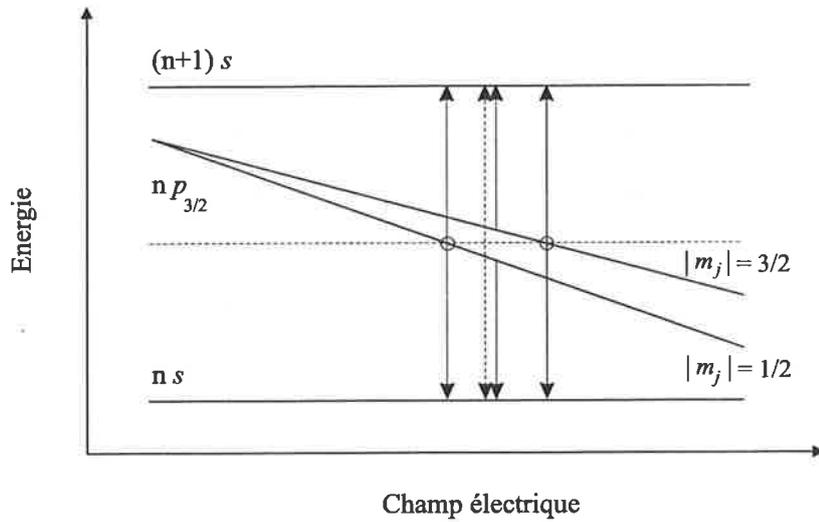


Figure 3-2: Représentation schématique de transfert résonant d'énergie suivant un schéma: $np_{3/2} + np_{3/2} = ns_{1/2} + (n+1)s_{1/2}$. Les paires de flèches représentent les transferts de population correspondant aux différents niveaux initiaux.

3/2. Donc trois processus de transfert d'énergie résonnant sont possibles:

$$np_{3/2} (|m_j| = 1/2) + np_{3/2} (|m_j| = 1/2) \rightarrow ns_{1/2} + (n+1)s_{1/2}, \quad (3.27)$$

$$np_{3/2} (|m_j| = 1/2) + np_{3/2} (|m_j| = 3/2) \rightarrow ns_{1/2} + (n+1)s_{1/2}, \quad (3.28)$$

$$np_{3/2} (|m_j| = 3/2) + np_{3/2} (|m_j| = 3/2) \rightarrow ns_{1/2} + (n+1)s_{1/2}. \quad (3.29)$$

La figure 3-2 présente schématiquement les niveaux d'énergie d'un atome de Rydberg dans le champ électrique et les positions des résonances pour le transfert de l'énergie pour un état initial $np_{3/2}$. On notera que les niveaux ns et $(n+1)s$ sont pratiquement non perturbés par le champ électrique.

3.5.1 Excitation dans des états de Rydberg

Pour nos expériences nous avons eu le choix entre deux schémas d'excitation: l'excitation à deux étages et l'excitation à deux photons (figure 3-3). L'excitation à deux

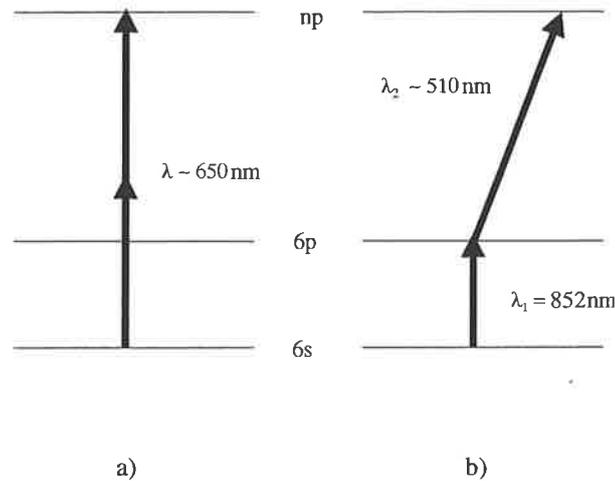


Figure 3-3: Deux schémas d'excitation en état de Rydberg np . a) L'excitation à deux photons à partir du niveau fondamental $6s_{1/2}$. b) L'excitation à deux étages à partir du niveau excité $6p_{3/2}$ en présence du champ électrique. L'excitation $6s_{1/2} \rightarrow 6p_{3/2}$ dans le piège magnéto-optique est fournie par le laser de refroidissement.

photons correspond à une excitation à partir du niveau fondamental suivant la transition $6s_{1/2} \rightarrow np_{3/2}$. (Ce n'est pas un schéma qui a été finalement retenu.) Le deuxième schéma d'excitation est l'excitation à partir du niveau excité $6p_{3/2}$ selon le schéma $6p_{3/2} \rightarrow np_{3/2}$ (une telle excitation est possible en présence du champ électrique). Dans ce cas le premier étage d'excitation $6s_{1/2} \rightarrow 6p_{3/2}$ est fourni par le rayonnement des lasers de refroidissement de piège magnéto-optique. On excite les atomes du piège qui sont dans l'état $6p_{3/2}$ $F' = 5$.

La présence de champ électrique conduit au mélange des fonctions d'ondes d'états de Rydberg différents p et d [58]. En particulier l'état $np_{3/2}$ est mélangé avec l'état $(n-1)d$. Le taux de mélange pour un champ relativement faible peut être calculé en utilisant la méthode de théorie de perturbation du premier ordre. Le mélange de ces états croît rapidement, lorsque le nombre quantique principal n croît. On peut négliger l'effet du champ électrique pour le niveau inférieur $6p_{3/2}$ de la transition $6p_{3/2} \rightarrow np_{3/2}$ et considérer seulement le mélange pour le niveau supérieur $np_{3/2}$. La probabilité des transitions "interdites" est cependant plus faible, que pour les transitions normalement

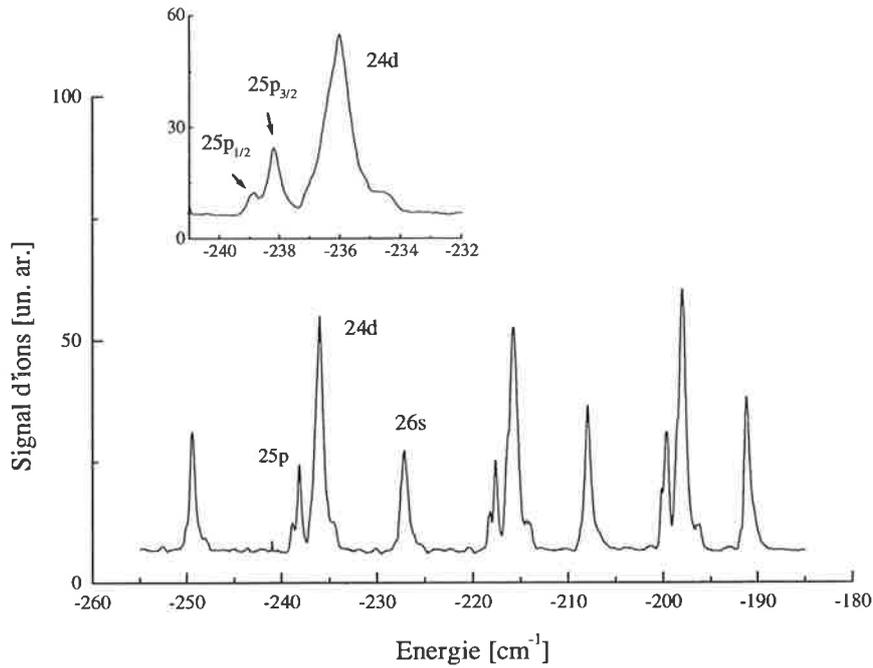


Figure 3-4: Spectre d'excitation optique des états ns , nd et np d'atome de césium à partir du niveau excité $6p_{3/2}$ en présence du champ électrique.

permisses. On peut montrer que l'état p en présence de champ électrique $|p, \mathcal{E}\rangle$ contient de l'ordre 20% de d composante pour les champs typiques de nos expériences. L'exemple du spectre d'excitation optique des états de Rydberg en présence de champ électrique est présenté sur la figure 3-4.

Dans le régime de faible effet Stark le nombre quantique magnétique total m_j est un bon nombre quantique [58]. Si nous négligeons la présence des champs magnétiques, liés au fonctionnement du piège magnéto-optique, on peut choisir l'axe de quantification selon le champ électrique et appliquer les règles de sélection pour l'excitation optique, qui sont dans ce cas: $\Delta m = 0$ pour la polarisation du laser parallèle au champ électrique et $\Delta m = \pm 1$ pour la polarisation du laser orthogonale au champ électrique. Le niveau initial dans le schéma d'excitation à deux étages $6p_{3/2}$ est composé de deux niveaux avec $|m_j| = 1/2, 3/2$. Quelque soit la polarisation choisie pour le laser fournissant l'excitation

Rydberg, on obtient un mélange de $|m_j| = 1/2$ et $3/2$ pour l'état de Rydberg np .

On note que la perturbation des états de Rydberg (où $n \sim 20 - 30$) due au champ magnétique est négligeable (~ 100 Hz/Gauss).

α) Estimation du nombre d'atomes de Rydberg

La fraction d'atomes dans l'état $6p_{3/2}$ dans le piège pour les paramètres expérimentaux typiques dans nos expériences a été estimée dans le chapitre précédent et est d'environ 30 %, soit une densité atomique correspondante de $\sim 3 \times 10^{10} \text{ cm}^{-3}$. L'excitation dans l'état de Rydberg $np_{3/2}$ s'effectue à l'aide d'une impulsion laser de durée d'environ 8 ns et l'énergie d'impulsion de 1.5 mJ au maximum. On peut utiliser une méthode approximative pour estimer l'ordre de grandeur du nombre d'atomes de Rydberg dans nos expériences. La section efficace de photoexcitation a une dépendance en n^{-3} suivant le nombre quantique principal et est la simple continuation de la section efficace de photoionisation σ_{PI} [9]. La section efficace de photoexcitation $\sigma(n)$ d'un état de Rydberg résolu est (en unités atomiques) [9]:

$$\sigma(n) = \frac{\sigma_{PI}}{\Delta E n^3}, \quad (3.30)$$

où ΔE est la résolution en énergie expérimentale d'excitation. La section efficace de photoexcitation est donc la section efficace de photoionisation fois le rapport de l'intervalle en énergie entre les niveaux de Rydberg consécutifs et de la résolution expérimentale ΔE .

Dans nos expériences l'impulsion laser de durée de 8 ns possède une largeur spectrale d'environ 3 GHz. Pour une puissance de $10 \mu\text{J}$ cette impulsion contient environ $\sim 10^{13}$ photons. La section de focalisation dans nos expériences est de l'ordre de $\sim 10^{-3} \text{ cm}^2$ ce qui correspond au flux de photons de $\sim 10^{16} \text{ cm}^{-2}$. La section efficace de photoionisation pour césium est de $\sigma_{PI} = 2 \times 10^{-19} \text{ cm}^2$ [59]. L'espacement entre les niveaux consécutifs pour $n \sim 25$ est d'environ $\sim 27 \text{ cm}^{-1}$ et est au moins deux ordres de grandeur plus grand que la largeur spectrale du laser d'excitation $\Delta E \sim 0.1 \text{ cm}^{-1}$. Nous pouvons donc estimer la section efficace de photoexcitation de l'ordre de $\sigma(n \sim 25) \sim 10^{-17} \text{ cm}^2$. Pour un flux de photon de $\sim 10^{16} \text{ cm}^{-2}$ ceci représente le taux d'excitation de 10% ou en tenant compte

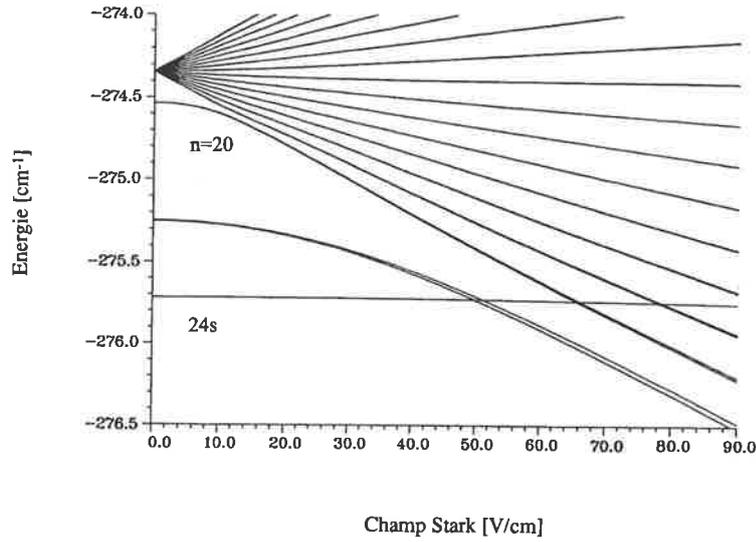


Figure 3-5: Diagramme d'énergie des niveaux d'atome de césium au voisinage du niveau 24s.

d'un facteur 0.2 pour le taux d'excitation de l'état p en présence de champ électrique par rapport au taux d'excitation de l'état d on obtient environ 2 % d'atomes excités. Soit 0.6 % ou la densité atomique $\sim 6 \times 10^8 \text{ cm}^{-3}$ en tenant compte de la proportion d'atomes dans en état excité $6p_{3/2}$. Pour une puissance laser de l'ordre de $200 \mu\text{J}$ nous pouvons donc estimer que nous avons une densité d'atomes de Rydberg de l'ordre de 10^{10} cm^{-3} .

3.5.2 Croisements évités

Pour réaliser une condition de schéma à trois niveaux propre, il est nécessaire de choisir les niveaux permettant la réaction (3.13), mais isolés des autres niveaux des multiplicités. Si cette condition est remplie pour les niveaux $np_{3/2}$, ce n'est pas le cas des niveaux ns et $(n+1)s$ qui traversent les multiplicités respectives $(n-4)k$ et $(n-3)k$ (figure 3-5).

Ces niveaux coupent les niveaux des multiplicités dans la mesure, où le niveau s peut être mélangé avec celle-ci. Les croisements s avec une multiplicité présentent de très faibles croisements évités. Les positions et les largeurs des croisements évités ont été expérimentalement étudiées [60] et ont aussi été déterminées par le calcul par diagonalisation

Niveau détecté	Position de croisement évité [60] V/cm	Largeur de croisement évité [60] MHz	Position de résonance V/cm
24s	49.9	50.7	-
	65.9	47.0	-
	78.4	77.5	-
	-	-	80.5
	-	-	84.4
	-	-	88.8
27s	30.7	38.2	-
	-	-	32.9
	-	-	34.5
	-	-	36.3
	39.9	34.3	-
	46.5	46.3	-

Tableau 3.5: Position en champ électrique des croisement évités et positions des résonances pour le transfert d'énergie.

d'une matrice tronquée d'Hamiltonien Stark. Il a été montré que les positions de ces croisements se situent respectivement de part et d'autre de la position des résonances et que pour les champ électriques correspondant aux résonances on peut considérer que les états ns et $(n + 1)s$ sont pratiquement purs. On peut considérer que notre système est un système bien isolé. Le tableau 3.5 donne les valeurs des positions de résonances pour une excitation des niveaux $23p_{3/2}$ et $26p_{3/2}$.

3.6 Dispositif expérimental

Nous abordons maintenant la description du montage expérimental proprement dit. La partie "obtention d'atomes froids" a fait l'objet du chapitre précédent. L'échantillon d'atomes de Rydberg froids est réalisé par excitation des atomes froids. Pour obtenir une excitation Rydberg nous avons utilisé deux schémas d'excitation différents, utilisant

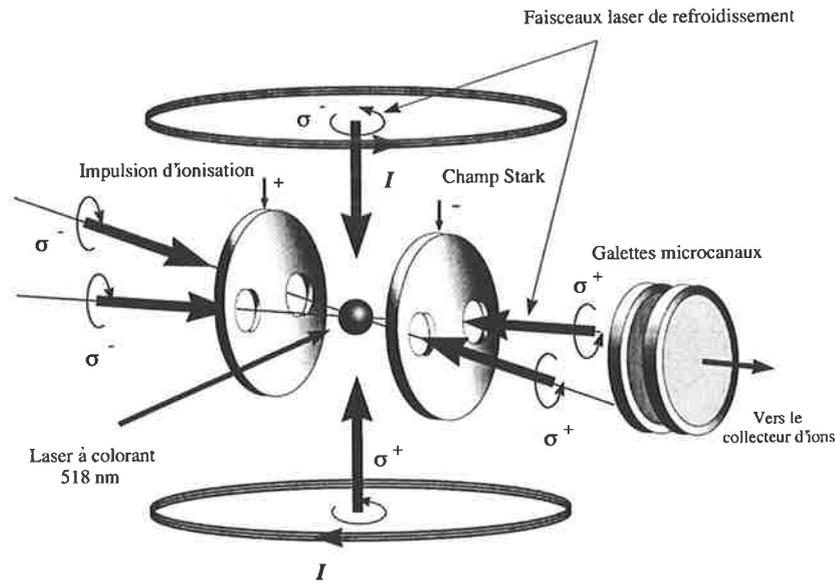


Figure 3-6: Schéma du dispositif expérimental. Le piège magnéto-optique est créé à l'aide de trois paires de faisceaux laser en présence du gradient du champ magnétique. La préparation de l'état de Rydberg initial $np_{3/2}$ s'effectue par l'excitation optique à l'aide du laser à colorant pulsé. Les grilles sont utilisées pour appliquer le champ Stark et le champ électrique pulsé d'ionisation sélective de l'état final $(n + 1) s_{1/2}$. Le signal d'ions est amplifié à l'aide des galettes micro-canaux.

deux lasers à colorant différents. L'excitation se produit entre deux grilles parallèles permettant d'appliquer aux atomes un champ Stark ainsi qu'une impulsion de champ d'ionisation (figure 3-6). Le faisceau laser d'excitation est focalisé sur le piège, suivant une section de dimensions $300 \times 150 \mu\text{m}$ selon les axes y et z respectivement. L'asymétrie de la section du faisceau laser coïncide avec l'asymétrie du piège dans le plan $y - z$ (voir chapitre précédent). La taille du piège (à mi-hauteur de profil de la densité atomique) est typiquement $\sim 800 \mu\text{m}$, on excite donc la partie centrale du piège, qui correspond à une densité maximale et relativement homogène.

3.6.1 Les lasers d'excitation

Les lasers utilisés pour l'excitation Rydberg sont des lasers à colorant pompés par un laser Nd: YAG en impulsion.

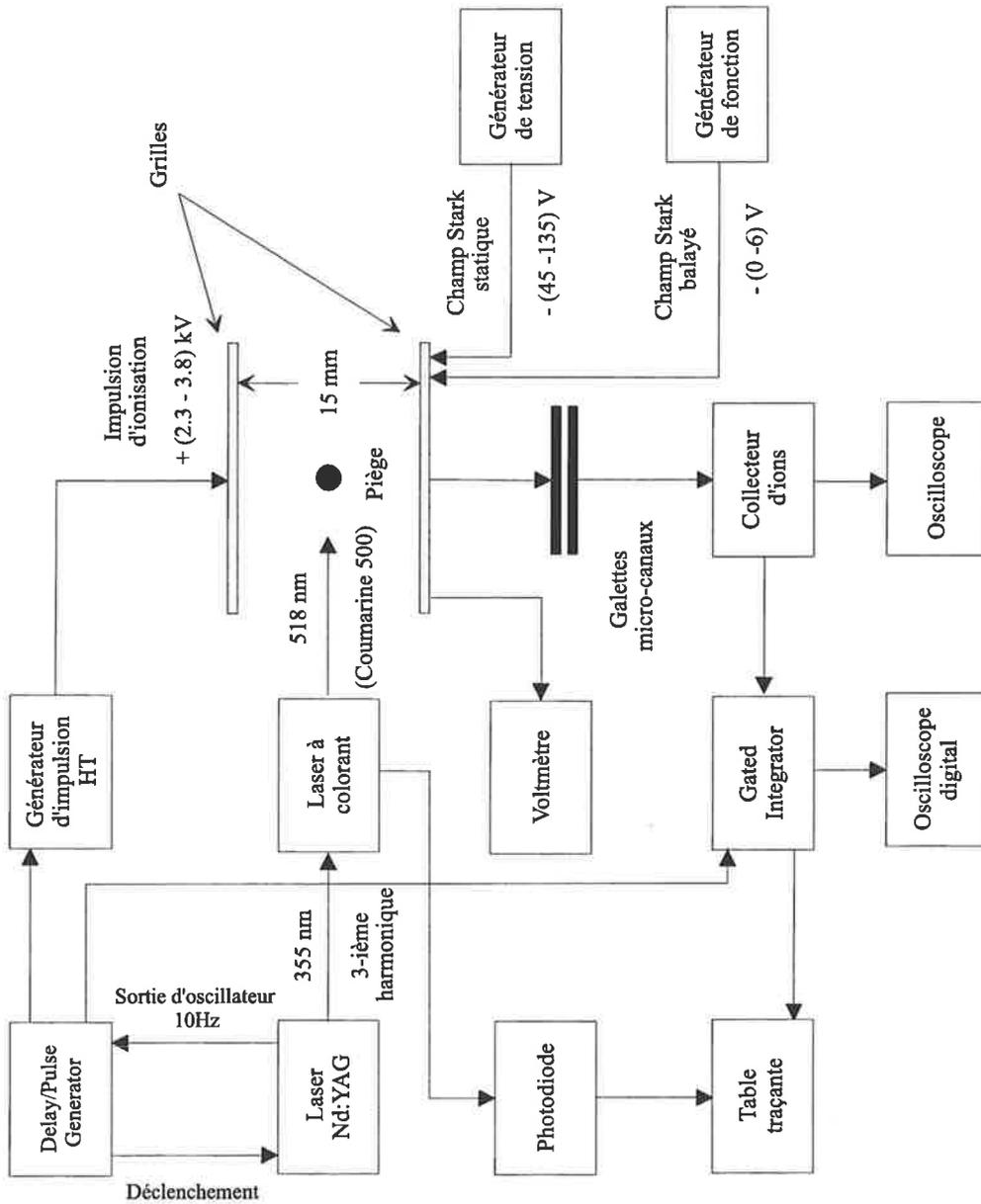


Figure 3-7: Schéma d'ensemble de l'expérience (voir texte).

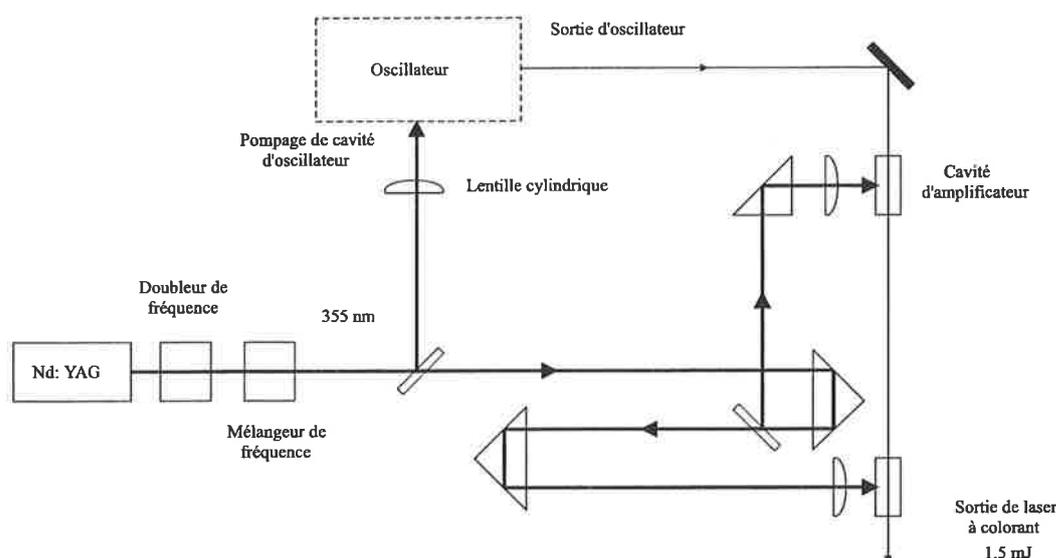


Figure 3-8: Schéma du dispositif du laser à colorant. Le faisceau laser d'oscillateur est amplifié à l'aide de deux amplificateurs et fournit la puissance de 1.5 mJ par impulsion d'une durée de 8 ns.

α) Le laser de pompe

Le laser de pompe utilisé dans nos expériences est un laser Nd: YAG pulsé Quanta-Ray DCR-3, qui fonctionne avec un taux de répétition de 10 Hz. L'impulsion du laser de pompe a une durée de 8 ns. La longueur d'onde d'émission est 1064 nm. La fréquence d'oscillateur du laser Nd: YAG (à un taux de répétition 10 Hz), gère la séquence temporelle de l'expérience (voir plus loin la figure 3-11). Elle pilote en particulier le déclenchement du générateur d'impulsion, qui gère les déclenchements et les retards du champ d'ionisation du système de détection et aussi le déclenchement de l'élément de Pockels du laser Nd: YAG même (qui est en mode de déclenchement externe) (figure 3-7).

β) Les lasers à colorant

Chacun des lasers à colorant est constitué d'un oscillateur et de deux amplificateurs (figure 3-8). Le principe de fonctionnement de l'oscillateur est présenté sur la figure 3-9. Les cellules de l'oscillateur et des amplificateurs sont rectangulaires et sont pompés

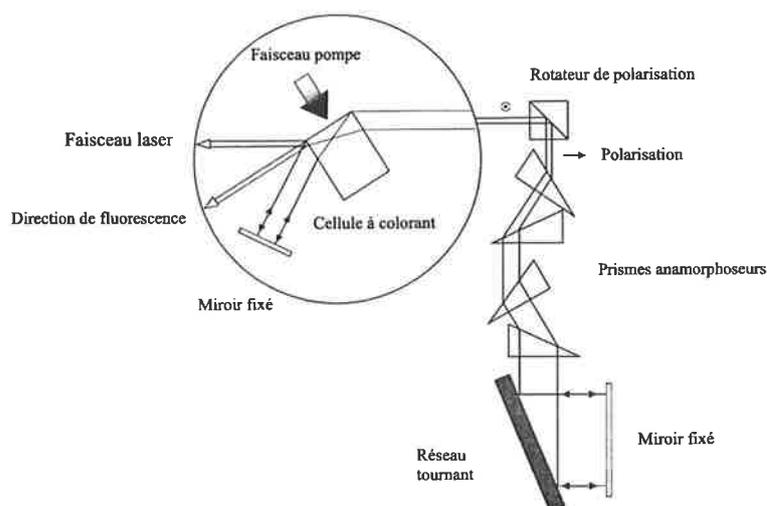


Figure 3-9: Schéma de dispositif de la cavité d'oscillateur de laser à colorant. Le balayage en longueur d'onde s'effectue à l'aide d'un réseau optique tournant.

transversalement. Le balayage en longueur d'onde s'effectue à l'aide de réseaux de haute résolution: 1800 trait par millimètre (longueur d'onde bleu-vert) et 2400 trait par millimètre pour la longueur d'onde rouge.

L'excitation à partir du niveau excité $6p_{3/2}$ (excitation à deux étages) s'effectue à l'aide d'un laser à colorant utilisant comme colorant la Coumarine 500 dissoute dans du méthanol. Ce colorant est pompé par la troisième harmonique du laser Nd: YAG pulsé (355 nm). La longueur d'onde au centre de spectre d'émission est de 508 nm avec une largeur spectrale de l'ordre de 3 GHz ($\sim 0.1 \text{ cm}^{-1}$). L'énergie maximale est de l'ordre de 1.5 mJ par impulsion. Le deuxième schéma d'excitation $6s_{1/2} \rightarrow np_{3/2}$ est l'excitation à partir du niveau fondamental à travers une transition à deux photons. Ce deuxième laser à colorant est pompé par la deuxième harmonique du laser Nd: YAG (532 nm) et utilise comme colorant le DCM dissout dans du méthanol. La largeur spectrale est approximativement la même, que pour le premier laser. La longueur d'onde au centre de spectre d'émission est de 650 nm avec une énergie maximale par impulsion d'environ 1 mJ.

Dans nos expériences nous avons utilisé essentiellement le schéma d'excitation à deux

étages et donc un laser à colorant avec le Coumarine 500, car ce schéma permet d'obtenir un taux d'excitation plus important. Le contrôle permanent de puissance de ce laser à colorant s'effectuait à l'aide d'une photodiode enregistrant l'intensité d'un faisceau prélevé sur le faisceau à l'aide d'une lame de verre. La puissance du faisceau laser appliqué sur l'échantillon d'atomes froids est contrôlée à l'aide des filtres de densité optique. La polarisation du faisceau laser d'excitation Rydberg est linéaire avec un angle qui peut varier par rapport à la direction du champ électrique grâce à un rotateur de polarisation. La fluctuation de puissance du laser d'excitation est typiquement $\pm 10\%$.

L'origine des fluctuations du nombre d'atomes excités dans un état de Rydberg est due aux fluctuations ou sauts de mode des lasers utilisés. Il est intéressant de noter que ces fluctuations sont plus importantes que dans le cas d'expériences réalisées avec un jet atomique. Nous interprétons ce fait comme étant dû à l'effet Doppler résiduel qui n'est pas totalement nul dans un jet même en excitation transverse.

3.6.2 Les champs électriques

Le piège magnéto-optique est situé entre deux grilles métalliques (de cuivre) qui servent à appliquer les champs électriques: le champ Stark et le champ d'ionisation pulsé. La distance entre les grilles est de 15 mm. Dans chaque grille il a été fait deux trous elliptiques de 6 mm \times 8 mm de taille suffisante pour permettre le passage des faisceaux laser de piégeage sans diffraction sur les bords. L'inhomogénéité du champ vu par les atomes dans le piège, due, en outre, à la présence de ces trous est de l'ordre de $\Delta\mathcal{E}/\mathcal{E} \sim 10^{-3}$, ce qui correspond à une erreur de ~ 0.08 V/cm sur le champ pour une valeur de celui-ci correspondant à la résonance pour le niveau $n = 23$ (cette valeur dépend du niveau considéré). Cette valeur limite la résolution spectrale dans nos expériences. La valeur de la limite de résolution peut être convertie en MHz à l'aide de tableau 3.6 et est au maximum < 30 MHz pour le niveau $n = 23$.

Résonance	$23p_{3/2}$ MHz/V/cm	$26p_{3/2}$ MHz/V/cm
$ m_j = 1/2 + m_j = 1/2$	366.2	430.3
$ m_j = 1/2 + m_j = 3/2$	346.9	416.6
$ m_j = 3/2 + m_j = 3/2$	331.4	395.5

Tableau 3.6: Valeurs calculées des pentes des niveaux.

α) Le champ Stark

Le champ Stark nécessaire pour nos expériences varie entre 30 V/cm ($n = 26$) et 90 V/cm ($n = 23$) ou soit respectivement une différence de potentiel de 45 – 135 Volt, en tenant compte de la distance de 15 mm entre les grilles. Le champ Stark qu'on applique sur l'une des grilles est composé d'un champ électrique constant, qui est choisi approximativement égal à la valeur de la résonance correspondant à un niveau Rydberg donné, et d'un champ faible balayé de 0 à 6 Volt (soit $0 \sim 4$ V/cm) (figures 3-6 et 3-7). Le balayage du champ Stark est réalisé à l'aide de générateurs de fonctions commerciaux THURLBY THANDAR TG 210 ou TEKELEC TA 41. La vitesse de balayage du champ est de 28 (mV/cm/s) pour le générateur TG 210 et d'environ 1.5 (mV/cm/s) pour le TA 41. Le temps de mesure, qui est pratiquement le temps d'évolution libre est de quelques microsecondes. On voit, que pendant la durée de mesure la variation du champ Stark est négligeable ($\sim 10^{-7} - 10^{-9}$ V/cm) ce qui permet de considérer ce champ comme statique.

β) Le champ d'ionisation pulsé

Le signal de champ d'ionisation est appliqué sur l'autre grille (figures 3-6 et 3-7). L'amplitude maximale de cette impulsion est ~ 3.8 kV (~ 2.5 kV/cm) avec un temps de montée correspondant d'environ 200 ns (figure 3-10). Le temps entre l'excitation des atomes dans l'état de Rydberg et l'application d'impulsion d'ionisation est le temps d'évolution libre du système. Ce champ sert à ioniser sélectivement les atomes de Rydberg, mais aussi à "pousser" les ions Cs^+ formés vers le détecteur de galettes de micro-canaux.

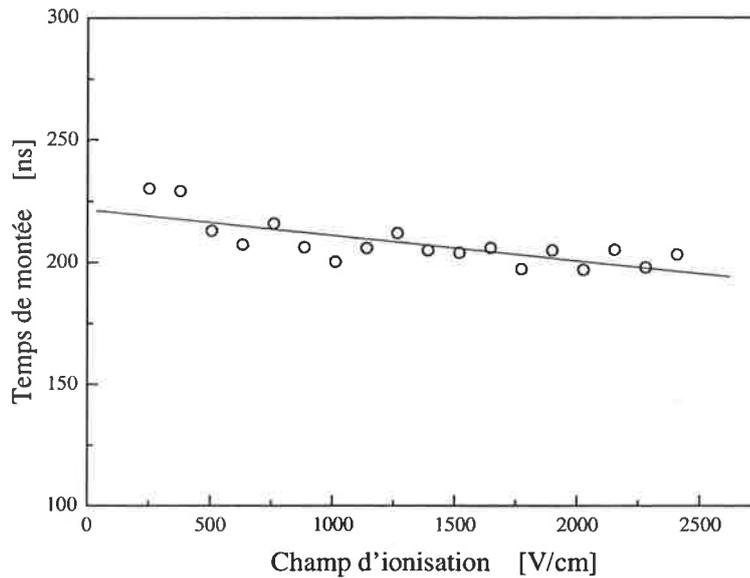


Figure 3-10: Temps de montée d'impulsion d'ionisation exprimé en fonction de l'amplitude d'impulsion.

Le principe de l'ionisation sélective par champ électrique pulsé repose sur le fait que les atomes de Rydberg ont des seuils d'ionisation pour des champs différents selon les états de Rydberg considérés. Pour les états s et p et de manière générale pour les états de m_l égal à 0 ou 1, les seuils d'ionisation varient comme: $1/16 (n^*)^4$ u. a. ($n^* = n - \delta_l$ est le nombre quantique effectif), c'est à dire la valeur classique d'ionisation par champ électrique. Le processus d'ionisation correspond dans ce cas à un suivi adiabatique des niveaux du diagramme Stark avec le champ électrique appliqué. Cette loi est vérifiée dans le cas de l'atome de sodium par exemple dans la référence [55]. Il est en particulier aisé de différencier les états s , p , d dans ce cas. Dans le cas de l'atome de césium, à cause d'une structure fine importante les états p et d présentent des seuils d'ionisation multiples. L'interprétation de ces seuils est lié à un suivi non parfaitement adiabatique des niveaux du diagramme Stark [61]. De ce fait il est plus délicat de parfaitement discerner les seuils d'ionisation pour les différents états et ceci limite les possibilités de l'expérience pour des états de n élevé.

Notons, qu'en général, le signal d'ions récoltés contient essentiellement les ions provenant des atomes dans les états $(n + 1)s$, np ou ns (en fonction des valeurs du champ d'ionisation appliqué), mais une partie des ions détectés sont créés par la photoionisation et aussi les ions provenant des atomes dans les états voisins de np où ils peuvent être transférés par l'interaction avec la radiation du corps noir [53], [9].

3.6.3 Détection et traitement du signal

La détection des ions accélérés par le champ d'ionisation s'effectue à l'aide des deux paires de galettes micro-canaux situés à environ 60 mm de la grille de sortie (figure 3-6). Les galettes ont une taille de 25 mm de diamètre et un diamètre de surface active de 19 mm. La tension appliquée sur les galettes dans nos expériences est entre 2.2 et 2.5 kV ce qui correspond à un gain de 10^7 au maximum [54]. Le signal d'ions collectés est traité par un intégrateur à porte ("gated integrator" de Stanford Research Systems) qui permet la sélection temporelle du signal d'ions et l'intégration de ce signal. Le temps d'intégration du signal dans nos expériences est de 1 à 3 s. Un tel temps est nécessaire pour accumuler et moyennner sur 10 à 30 mesures. Cette intégration permet de diminuer le bruit d'un facteur 3 à 5 fois. Une trop large intégration fini par altérer la résolution spectrale. Dans nos expériences l'inhomogénéité du champ reste la source principale d'erreur. Elle définit la limite de résolution (~ 0.08 V/cm, < 30 MHz pour $n = 23$) et le temps d'intégration doit être choisi selon la vitesse de balayage du champ Stark de manière à ne pas altérer cette résolution. Pour le générateur TG 210 le temps d'intégration peut être au maximum 1 s, ce qui donne la variation du champ Stark pendant les mesures de 0.028 V/cm. Pour le générateur TA 41 le temps d'intégration peut être augmenter jusqu'au 3 s et plus, car la variation du champ reste inférieure que la limite de résolution (< 0.01 V/cm pour 3 s). Le signal moyennné est enregistré avec une table traçante.

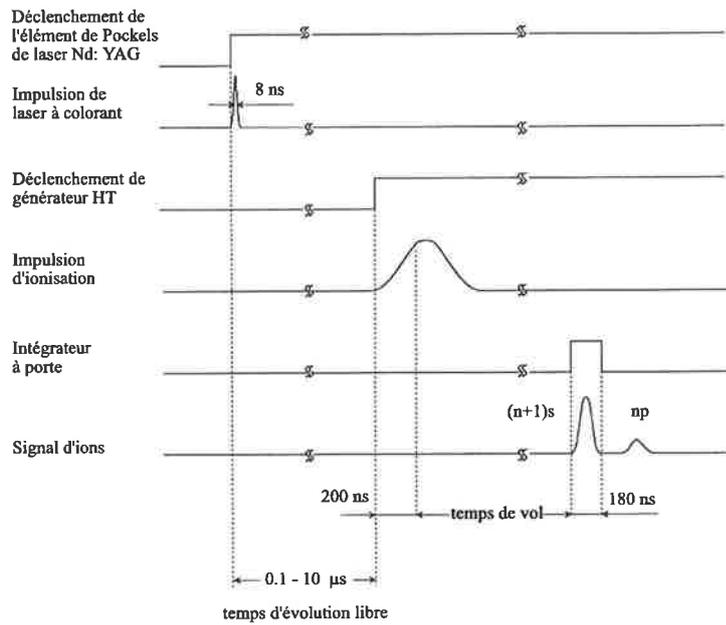


Figure 3-11: Séquence temporelle de l'expérience (voir texte).

3.6.4 Procédure expérimentale

Les expériences ont été réalisées pour des excitations $np_{3/2}$ avec $n = 23$ à 26 . Les données ont surtout été obtenues pour $n = 23$ et $n = 26$. Après excitation des atomes froids dans un état de Rydberg, on laisse les atomes évoluer librement et on détecte les transferts de population dus à la réaction (3.13). La détection est obtenue par ionisation sélective par champ. Pour détecter le transfert de population dans l'état $(n + 1)s$ après excitation de l'état de Rydberg $np_{3/2}$ on applique le champ d'ionisation avec une amplitude juste au-delà du seuil d'ionisation du niveau $(n + 1)s$. La séquence temporelle de l'expérience est présentée sur la figure 3-11. On observe (figure 3-12) parmi les signaux d'ions récoltés deux pics. Le premier, qui est pratiquement indépendant de la valeur du champ Stark correspond à un signal d'ions, provenant d'une photoionisation directe par le laser d'excitation. Le deuxième pic n'apparaît que lorsque la valeur du champ Stark approche de la valeur correspondant à la résonance. Il correspond au signal d'ions provenant des atomes dans l'état $24s$, dû au transfert de population dans le processus (3.13).

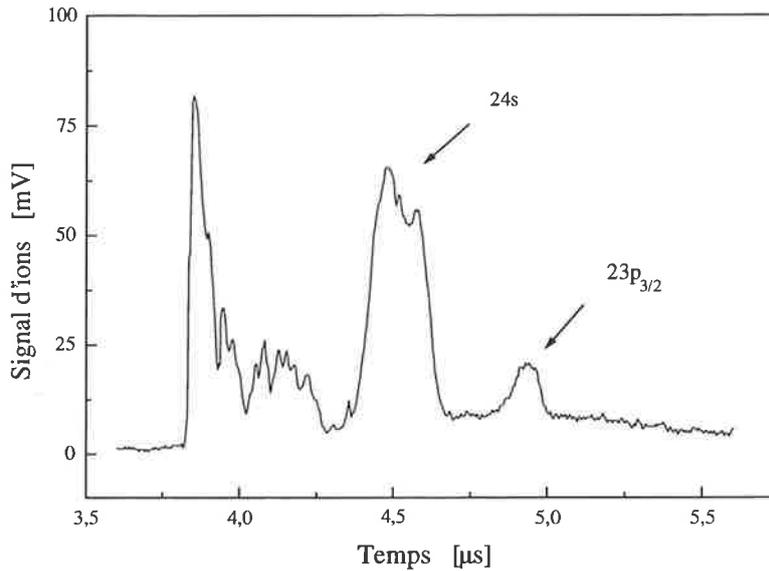


Figure 3-12: Figure montrant la différence des seuils d'ionisation (voir texte).

Remarque: le signal de photoionisation est faible, essentiellement présent pour des impulsions du laser excitateur intenses. La charge d'espace créée par ces ions n'affecte pas en général le résultat de l'expérience. Il peut se traduire par un déplacement de la position en champ de la résonance vers les valeurs du champ plus élevées.

Le contrôle de la densité d'atomes excités dans un état de Rydberg s'effectue en atténuant à l'aide de filtres de densité optique la puissance du laser d'excitation Rydberg. Une autre méthode possible de contrôle de la densité d'atomes est la variation de la puissance des faisceaux de laser de piégeage ou de repompeur. C'est à dire le contrôle de la fraction d'atomes dans l'état excité $6p_{3/2}$ dans le cas d'excitation à deux étages. La première méthode est préférable dans certains cas car le changement de la puissance des faisceaux laser de piégeage ou de repompeur peut également conduire au changement de la température du piège. Les expériences présentées dans cette thèse ont été réalisées en utilisant la première méthode de contrôle de la densité d'atomes de Rydberg.

3.7 Résultats expérimentaux

Dans cette partie nous allons exposer les résultats expérimentaux. Nous avons étudié le processus d'échange résonnant d'énergie interne dans un gaz de Rydberg froid en changeant l'écart à la résonance (profil de résonance) et en fonction de la densité initiale d'atomes de Rydberg. Nous avons aussi considéré l'évolution de ces résonances en fonction du temps d'évolution libre du système d'atomes de Rydberg froids.

Nous allons commenter les résultats correspondants à ces raies de résonance. Dans un premier paragraphe (3.7.1) nous analysons le taux de transfert de population dans l'état $(n + 1)s$, dans le paragraphe (3.7.2) nous étudions la variation des largeurs et d'amplitudes des raies en fonction du temps d'évolution libre, dans le paragraphe (3.7.3) nous décrivons la forme des raies obtenues, dans les paragraphes (3.7.4) et (3.7.5) nous étudions la variation des largeurs et d'amplitudes de raie en fonction de la densité d'atomes de Rydberg.

3.7.1 Taux de transfert de population

α) Densité initiale d'atomes de Rydberg

Nous avons fait varier la densité initiale d'atomes de Rydberg en jouant avec la puissance du laser excitation. Pour des puissances laser faibles ou moyennes il est possible de calibrer directement la densité relative d'atomes dans le niveau initial pour les différentes atténuations du laser d'excitation. La procédure consiste à mesurer le nombre d'ions récoltés en ionisant le niveau $np_{3/2}$ avec piège et sans piège (pour calibrer le bruit). La différence donne le nombre d'atomes relatif ou la densité relative car le volume de l'échantillon Rydberg peut être défini par la section du laser d'excitation. Ces mesures ont été réalisées avec un champ Stark inférieur à la valeur du champ électrique nécessaire à la résonance. La figure 3-13 présente les résultats expérimentaux pour le calibrage de la densité relative en fonction de la puissance de laser. On voit, que pour des puissances du laser entre 10 et 130 μJ (un ordre de grandeur pour les puissances) la densité croît

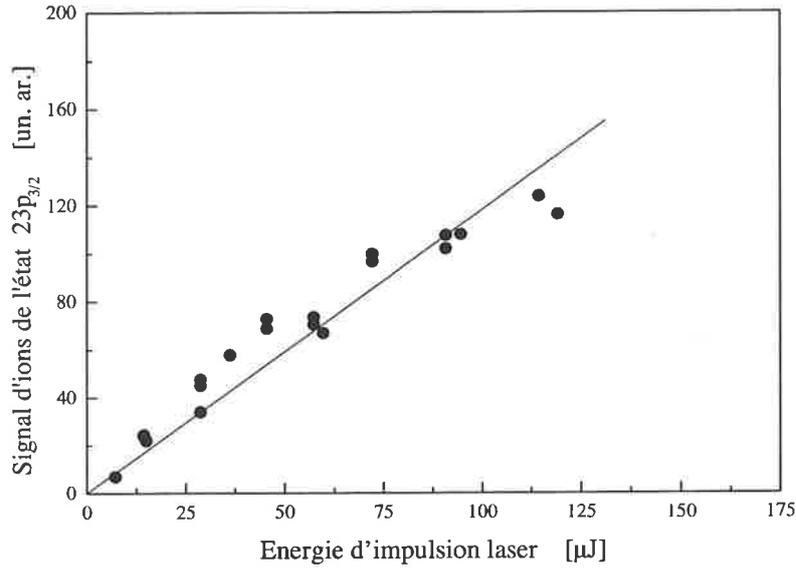


Figure 3-13: Signal d'ions de l'état de Rydberg $23p_{3/2}$ en fonction de la puissance du laser d'excitation $6p_{3/2} \rightarrow 23p_{3/2}$. L'impulsion laser de durée de 8 ns est focalisée sur le piège avec les dimensions verticale et horizontale de $150 \times 300 \mu\text{m}$ respectivement. La ligne continue est l'ajustement linéaire.

pratiquement linéairement avec la puissance de laser. Les mesures du nombre d'atomes excités dans l'état de Rydberg pour les puissances laser plus élevées sont difficiles à calibrer car le signal correspond à un très grand nombre d'ions. Un tel nuage d'ions a la taille d'une partie excitée du piège c'est à dire de quelques centaines de micromètres. La charge d'espace créée par ce nuage conduit à un élargissement et à une déformation du signal d'ions détectés. Dans ces conditions les mesures sont difficiles à comparer avec les mesures pour des faibles charges d'espace.

β) **Proportion de nombre d'atomes transférés dans l'état $(n + 1) s$.**

Pour définir la proportion des atomes transférés lors de la résonance exacte dans le niveau supérieur $(n + 1) s$, on mesure la valeur relative du signal d'ions, provenant du niveau $(n + 1) s$ par rapport au signal d'ions récoltés en ionisant directement le niveau initial np . Le signal d'ions détectés contient toujours un faible signal de photo-ions qui est pro-

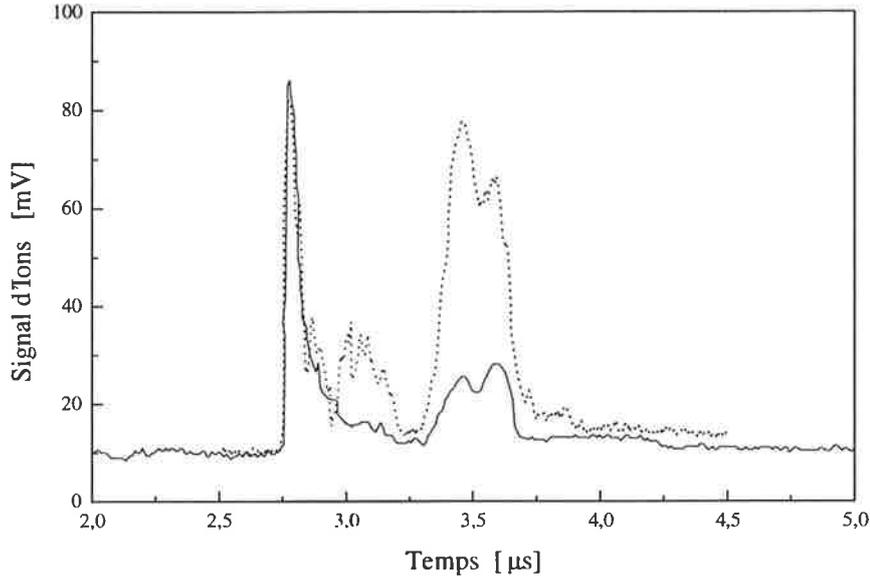


Figure 3-14: Signal d'ions provenant des atomes dans l'état $23p_{3/2}$ hors de résonance (ligne pointillée) et de l'état $24s$ dans le cas de résonance (ligne continue). Le taux de transfert vers l'état $24s$ est de $\sim 20\%$.

proportionnel au nombre d'atomes de Rydberg créés et qu'on utilise pour calibrer le taux d'excitation (figure 3-14). Nous supposons que le signal de photoionisation n'est pas affecté par le changement de l'amplitude d'impulsion d'ionisation (pour ioniser sélectivement le niveau $(n + 1)s$ ou np). Les mesures ont été réalisées pour le niveau initial $23p$ et donnent la proportion d'atomes transférés entre 10 et 20 % au maximum.

Avant de passer aux détails des raies de résonances nous présentons le spectre complet des résonances sur un exemple de niveau initial $23p_{3/2}$. Dans le cas de l'excitation du niveau $23p_{3/2}$ nous obtenons trois pics de résonance (figure 3-15). Ces trois pics A , B et C correspondent aux processus (3.27), (3.28) et (3.29) respectivement où $n = 23$. On obtient ces mêmes pics dans des expériences de collisions résonnantes en jet [54]. Les valeurs calculées du champ Stark correspondant aux résonances pour le niveau $n = 23$ sont respectivement 80.49 V/cm pour le processus (3.27), 84.36 V/cm pour le processus (3.28), et 88.82 V/cm pour le processus (3.29). Les largeurs à mi-hauteur des raies de résonance sont d'environ 150–170 MHz correspondant au cas de grande densité d'atomes

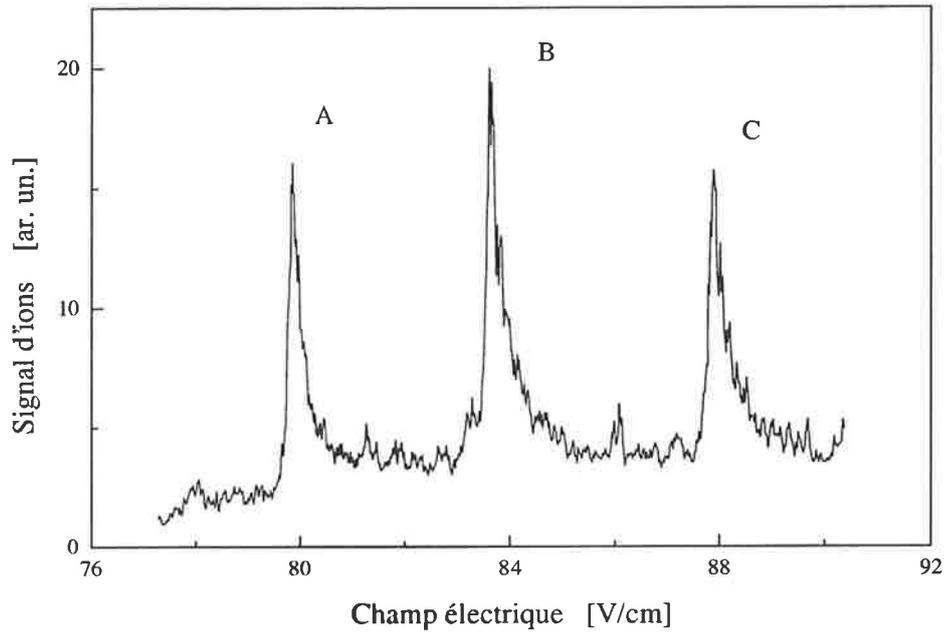


Figure 3-15: Les raies de résonances obtenues pour le niveau initial $23p_{3/2}$ (voir texte).

de Rydberg. Les valeurs pour les largeurs des raies ont été converties en MHz à l'aide des valeurs calculées pour les pentes des niveaux autour des résonances (tableau 3.6).

3.7.2 Dépendance temporelle des profils de raies de résonance

Le comportement du système en fonction du temps d'évolution libre de l'ensemble d'atomes de Rydberg a été étudié pour le cas d'excitation du niveau $23p$ pour une densité d'atomes fixée. La figure 3-16 présente les spectres des résonances obtenues pour une densité d'atomes de Rydberg de l'ordre de $8 \times 10^8 \text{ cm}^{-3}$. Ce spectre correspond à la résonance (3.27). Comme on peut voir sur la figure 3-16 (b) la forme des résonances ne change pas et reste pratiquement lorentzienne. Par contre la largeur de cette résonance pour un temps de $0.5 \mu\text{s}$ est beaucoup plus grande que celles obtenues pour la même densité d'atomes de Rydberg, mais avec un temps d'évolution supérieur ou égal à $2 \mu\text{s}$.

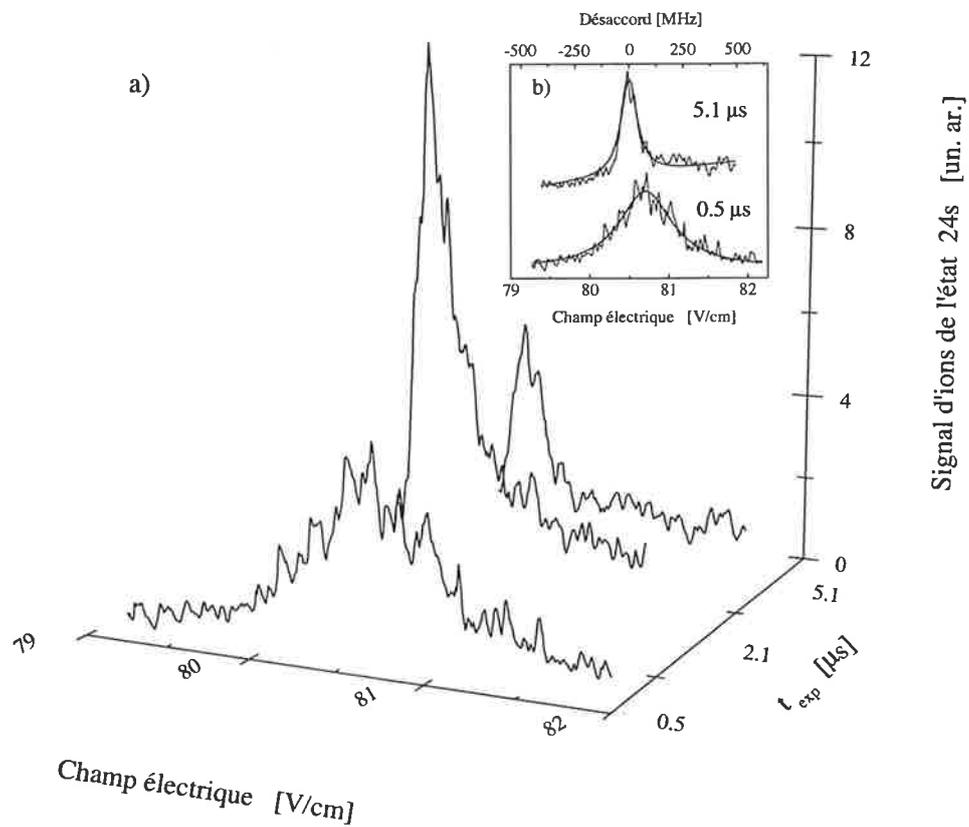


Figure 3-16: a) Dépendance temporelle des raies de résonance pour la densité d'atomes estimée dans l'état initial $23p_{3/2} |m_j| = 1/2$ de $8 \times 10^8 \text{ cm}^{-3}$. b) Les mêmes spectres pour les temps 0.5 et 5.1 μs montrent l'élargissement des raies sans changement des profils. Les largeurs correspondantes sont: 250 MHz (pour $t_{\text{exp}} = 0.5 \mu\text{s}$) et 81 MHz (pour $t_{\text{exp}} = 5.1 \mu\text{s}$). Les lignes continues superposées aux spectres expérimentaux sont les ajustements par les fonctions lorentziennes.

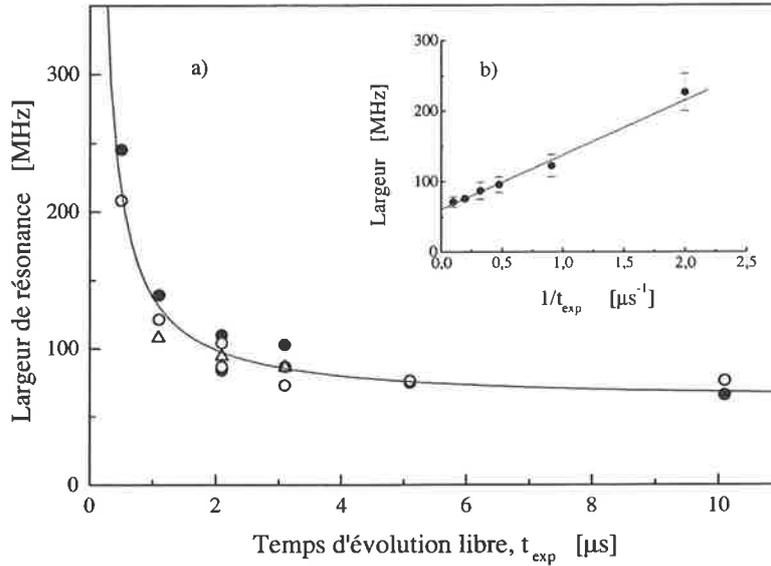


Figure 3-17: a) Largeur de résonance $23p_{3/2} |m_j| = 1/2$ (\circ), $23p_{3/2} |m_j| = 1/2 + 23p_{3/2} |m_j| = 3/2$ (\bullet) et $23p_{3/2} |m_j| = 3/2$ (\triangle) en fonction du temps d'évolution libre. b) Toutes les données pour le niveau initial $23p_{3/2}$. Les lignes sont les ajustements suivant l'équation (3.32) avec les paramètres $\Delta\nu_\infty = 60.58$ MHz et $C = 77.3$ MHz $\cdot\mu$ s. La densité d'atomes de Rydberg est de 8×10^8 cm $^{-3}$.

Cette largeur est d'environ ~ 250 MHz. Les résonances de type (3.28, 3.29) ont le même comportement. Les figures 3-17 et 3-18 présentent l'évolution des largeurs et d'amplitudes pour les temps entre 0.5 et 10 μ s pour les trois types de résonances (3.27, 3.28 et 3.29). On voit que la largeur des résonances croît rapidement comme l'inverse du temps d'évolution libre (ou temps de l'expérience) pour les temps t_{exp} très petits. Pour les temps de 2 à 10 μ s la largeur reste pratiquement constante. La petite décroissance de largeur pour les temps grands est liée au fait que le temps d'évolution libre devient comparable à la durée de vie de l'atome de Rydberg (~ 10 μ s). Un effet similaire de croissance des largeurs dans le cas des collisions résonnantes entre les atomes de Rydberg a été étudié dans [62] ("transform-limited collisions"). L'effet correspond dans ce cas à un temps d'interaction plus court que le temps caractéristique de collision. Pour un temps d'interaction inférieur au temps caractéristique de collision les raies de résonance sont élargies. Dans le cas des

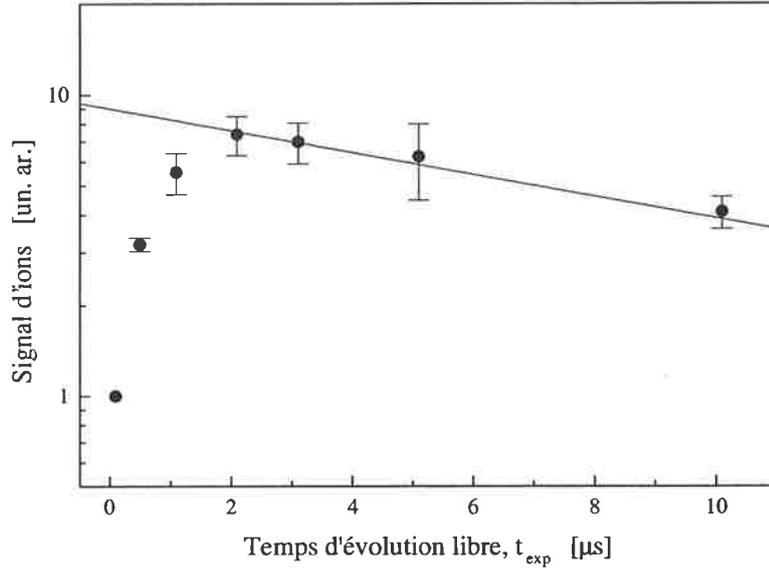


Figure 3-18: Figure montrant une dépendance temporelle du maximum de transfert de population en résonance. Les points expérimentaux représentent toutes les données pour le niveau initial $23p_{3/2}$ pour une densité de $8 \times 10^8 \text{ cm}^{-3}$ (voir texte).

collisions résonantes l'élargissement est décrit par la relation suivante [62]:

$$\Delta\nu = \Delta\nu_{\infty} + \frac{2}{\pi t}, \quad (3.31)$$

où $\Delta\nu_{\infty}$ correspond aux temps grands. Bien que nous sommes ici dans le cas de gaz de Rydberg gelé, soit de caractère très différent, il est possible d'ajuster les largeurs à l'aide de la formule similaire:

$$\Delta\nu = \Delta\nu_{\infty} + \frac{C}{t_{\text{exp}}}. \quad (3.32)$$

L'ajustement du paramètre C pour le niveau initial $23p_{3/2}$ avec une densité initiale considérée $8 \times 10^8 \text{ cm}^{-3}$ donne une valeur de $C = 77.3 \text{ MHz}\cdot\mu\text{s}$. Sa compréhension nécessite de comprendre le phénomène d'interaction dans le gaz de Rydberg gelé.

Pour ce qui concerne les amplitudes absolues, le maximum de transfert de population croît en fonction du temps d'évolution libre jusqu'à un temps d'évolution de $2 \mu\text{s}$. Pour

des temps plus grands l'amplitude des pics des résonances décroît avec le temps. Ceci est principalement dû à la durée de vie des atomes de Rydberg liée à l'émission spontanée. La ligne continue sur la figure 3-18 est l'ajustement pour les données à partir de $t_{\text{exp}} = 2.1 \mu\text{s}$ selon la loi: $A = C_A \exp(-t_{\text{exp}}/\tau)$ avec $C_A = 9$ un. ar. et $\tau = 12 \mu\text{s}$. Ce temps τ est de l'ordre de durée de vie des atomes de Rydberg (voir le tableau 3.3). Dans la plupart des nos expériences nous avons choisi une valeur de $2 \mu\text{s}$ pour le temps d'évolution libre. On obtient dans ces conditions le maximum de transfert sans désexcitation spontanée (durée de vie des atomes de Rydberg de $10 - 15 \mu\text{s}$).

3.7.3 Structure des raies de résonance en fonction de la densité d'atomes de Rydberg

Nous allons décrire qualitativement l'évolution des profils des raies de résonance (dépendance du transfert en fonction du désaccord avec la résonance) en fonction de la densité. Les expériences ont été faites ici pour un temps d'évolution libre de l'ensemble d'atomes de Rydberg (temps de l'expérience) de $2 \mu\text{s}$.

Résonance	Mesuré V/cm	Calculé V/cm
$23p_{3/2} (m_j = 1/2) + 23p_{3/2} (m_j = 1/2)$	80.51 ± 0.03	80.49
$23p_{3/2} (m_j = 1/2) + 23p_{3/2} (m_j = 3/2)$	84.10 ± 0.04	84.36
$24p_{3/2} (m_j = 1/2) + 24p_{3/2} (m_j = 1/2)$	59.07 ± 0.02	59.05
$24p_{3/2} (m_j = 3/2) + 24p_{3/2} (m_j = 3/2)$	64.89 ± 0.05	65.13
$26p_{3/2} (m_j = 1/2) + 26p_{3/2} (m_j = 1/2)$	32.91 ± 0.03	32.93
$26p_{3/2} (m_j = 1/2) + 26p_{3/2} (m_j = 3/2)$	34.43 ± 0.02	34.49

Tableau 3.7: Valeurs expérimentales et calculées des positions en champ Stark des résonances.

Pour une très forte atténuation du laser d'excitation correspondant à une densité atomique de l'ordre de $4 \times 10^8 \text{ cm}^{-3}$, nous obtenons des raies de résonance qui sont pra-

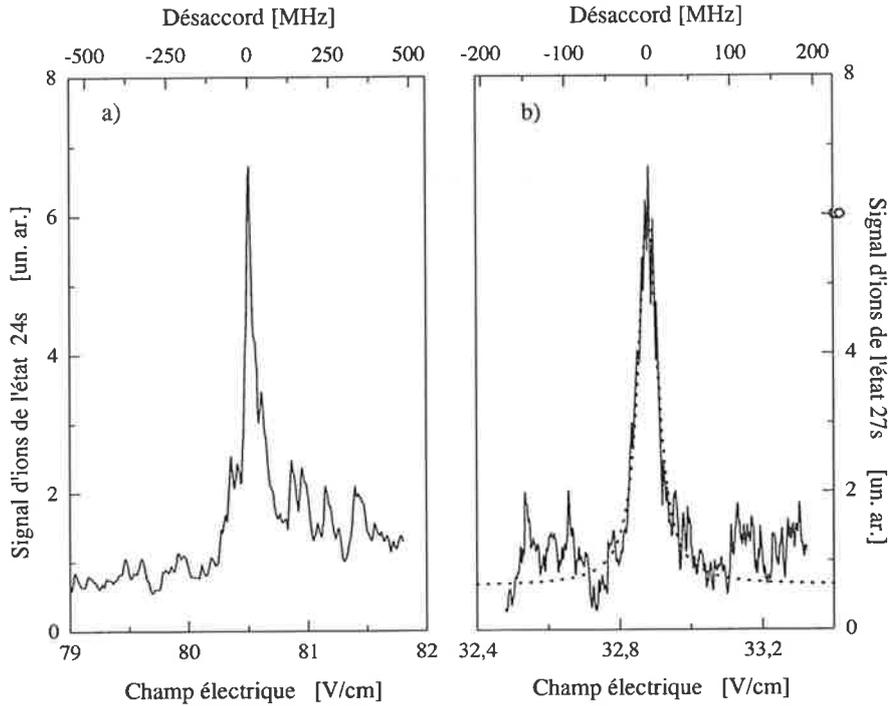


Figure 3-19: Les résonances de transfert d'énergie obtenues pour les faibles densités d'atomes dans l'état initial et le temps d'évolution de $2 \mu\text{s}$. a) La résonance $23p_{3/2} + 23p_{3/2} \rightarrow 23s + 24s$ pour une densité de $4 \times 10^8 \text{ cm}^{-3}$. La largeur de raie à mi-hauteur est de 30 MHz. b) La résonance $26p_{3/2} + 26p_{3/2} \rightarrow 26s + 27s$ pour une densité de $3.9 \times 10^8 \text{ cm}^{-3}$. La largeur de raie à mi-hauteur est de 27 MHz. La ligne continue est l'ajustement par fonction lorentzienne.

tiquement des lorentziennes et ont les largeurs de l'ordre de ~ 30 MHz (figure 3-19). Ces valeurs sont proches de la valeur de limite de résolution dans nos expériences (< 30 MHz). Une atténuation du laser d'excitation plus forte conduit à un taux d'excitation Rydberg plus faible et à l'observation de la décroissance de l'amplitude de la raie de résonance, mais la largeur de celle-ci reste pratiquement constante. On atteint donc notre limite de résolution. Les positions expérimentales des résonances, obtenues pour des faibles densités d'atomes excités dans l'état de Rydberg, correspondent aux valeurs calculées de ces résonances (voir tableau 3.7).

En augmentant successivement la puissance du laser d'excitation et par conséquent la densité d'atomes excités dans l'état initial $np_{3/2}$, nous obtenons des raies de résonance

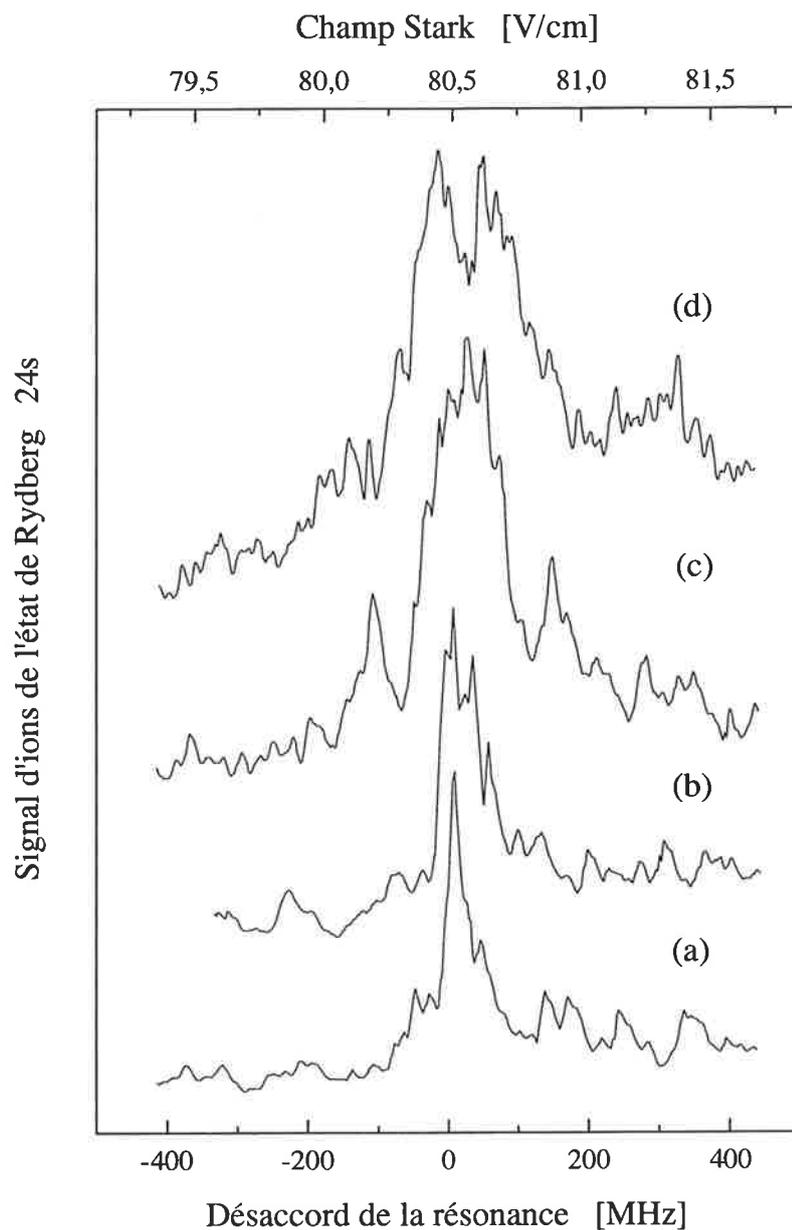


Figure 3-20: Le transfert résonnant d'énergie pour le niveau initial $23p_{3/2} |m_j| = 1/2$ en fonction du désaccord avec la résonance pour un temps d'évolution libre de $2 \mu\text{s}$. Les densités estimées d'atomes dans l'état initial et les largeurs des résonances à mi-hauteur sont: a) $4 \times 10^8 \text{ cm}^{-3}$ et 30 MHz, b) $7 \times 10^8 \text{ cm}^{-3}$ et 70 MHz, c) $4 \times 10^9 \text{ cm}^{-3}$ et 120 MHz et d) 10^{10} cm^{-3} et 180 MHz.

dont la largeur croît en fonction de la densité. Pour les densités très élevées, qui s'approchent des densités maximales qui peuvent être obtenues dans notre dispositif on obtient une raie de résonance avec une largeur d'environ 180 MHz (figure 3-20 (d)). On voit aussi, que le profil de raie possède une structure: apparition de double pic ou creux de résonance au centre de celle-ci. Le comportement du système avec les densités d'atomes de Rydberg intermédiaires a un caractère encore plus complexe. La raie de résonance présente un pic principal de largeur de 120 MHz et deux pics secondaires, situés symétriquement autour du pic principal avec des largeurs ~ 30 MHz (figure 3-20 (c)).

Nous avons étudié l'effet de la polarisation du laser d'excitation, c'est à dire suivant l'angle de la polarisation linéaire du laser d'excitation Rydberg par rapport à la direction du champ électrique. La figure 3-21 montre une raie de résonance obtenue dans pratiquement les mêmes conditions d'excitation pour deux polarisations différentes. On voit, que la structure de raie de résonance ne dépend pas fortement de la polarisation du laser d'excitation. Comme il a été dit plus haut, l'excitation avec les polarisations de laser différentes dans notre système ne change pas de manière significative la proportion d'atomes excités et certains changements sur les spectres sont dus à la différence de puissances de laser d'excitation, qui est ici pour le cas (b) est d'un facteur ~ 1.8 plus grande, que dans le cas (a). Ceci explique en outre la différence des largeurs (facteur ~ 1.3) à mi-hauteur de ces deux raies. Nous verrons plus loin (figure 3-22), que l'augmentation de la densité de 1.8 provoque une telle augmentation de largeur. On peut également remarquer, que l'amplitude des raies reste comparable.

L'effet de la densité sur la forme des raies de résonance pour l'excitation du niveau $26p$ est plus difficile à étudier pour les densités très fortes, car l'espacement entre les pics voisins correspondant aux résonances (3.27, 3.28, 3.29) est beaucoup plus petit que pour le cas de l'excitation du niveau $23p$ et est de l'ordre de 1.5 V/cm.

Remarque: sur les figures 3-20 et 3-21 on remarque les déplacements des positions des résonances pour les grandes densités. Ces déplacements restent cependant petits et leurs valeurs correspondent à la limite de résolution dans notre expérience. Ceci ne nous a pas

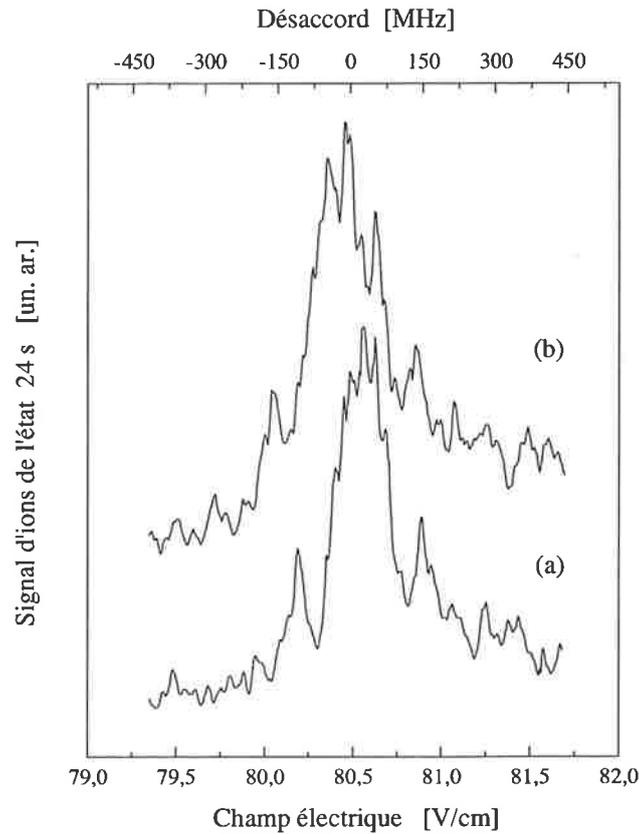


Figure 3-21: Le transfert résonant d'énergie pour le niveau initial $23p_{3/2} |m_j| = 1/2$ avec le temps d'évolution libre de $2 \mu s$. a) Le même spectre présenté sur la figure 3-20 (c) correspondant à l'excitation avec une polarisation orthogonale au champ électrique. b) La résonance obtenue pour une densité de $7.2 \times 10^9 \text{ cm}^{-3}$ et une polarisation avec un angle de 45° par rapport au cas a). La largeur correspondante est de 160 MHz.

permis de conclure sur leur origine.

3.7.4 Evolution de la largeur des raies de résonance en fonction de la densité

L'étude de l'évolution de la largeur en fonction de la densité d'atomes de Rydberg a été réalisée pour différentes résonances et différentes polarisations. La figure 3-22 présente les résultats obtenus. La dispersion des valeurs de largeur n'excède pas 30 MHz, ce qui est

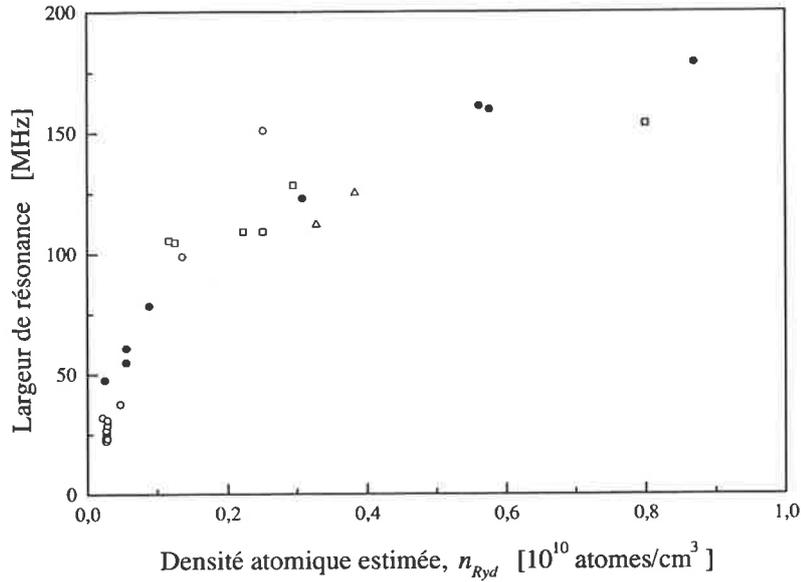


Figure 3-22: Largeur à mi-hauteur des raies de résonances pour le niveau initial $23p_{3/2} |m_j| = 1/2$ (●), $26p_{3/2} |m_j| = 1/2$ (○), $23p_{3/2} |m_j| = 1/2 + 23p_{3/2} |m_j| = 3/2$ (△), et $23p_{3/2} |m_j| = 1/2$ avec une polarisation de laser d'excitation orthogonale (□) en fonction de la densité d'atomes dans l'état initial pour le temps d'évolution de $2 \mu s$.

proche de l'incertitude de < 30 MHz, due à l'inhomogénéité du champ. Le comportement de largeur des raies en fonction de la densité d'atomes excités présente un caractère pratiquement linéaire pour les faibles densités. Le comportement global a un caractère de loi de puissance avec un exposant inférieur à 1. On notera qu'il n'y a pas de différences notables supérieures à l'incertitude de nos expériences entre les données pour les différents états de Rydberg initiaux $np_{3/2}$ avec n variant de 23 à 26 et différentes polarisations (parallèle ou orthogonale au champ électrique). Il faut noter la difficulté des expériences avec les atomes de Rydberg pour obtenir une mesure fiable du nombre d'atomes ou de la densité. Pour cette raison la définition du caractère global de la loi de dépendance de la largeur en fonction de la densité nécessite des études complémentaires. Nous n'avons pas dans nos expériences de calibrage fiable de la densité d'atomes de Rydberg pour les fortes excitations.

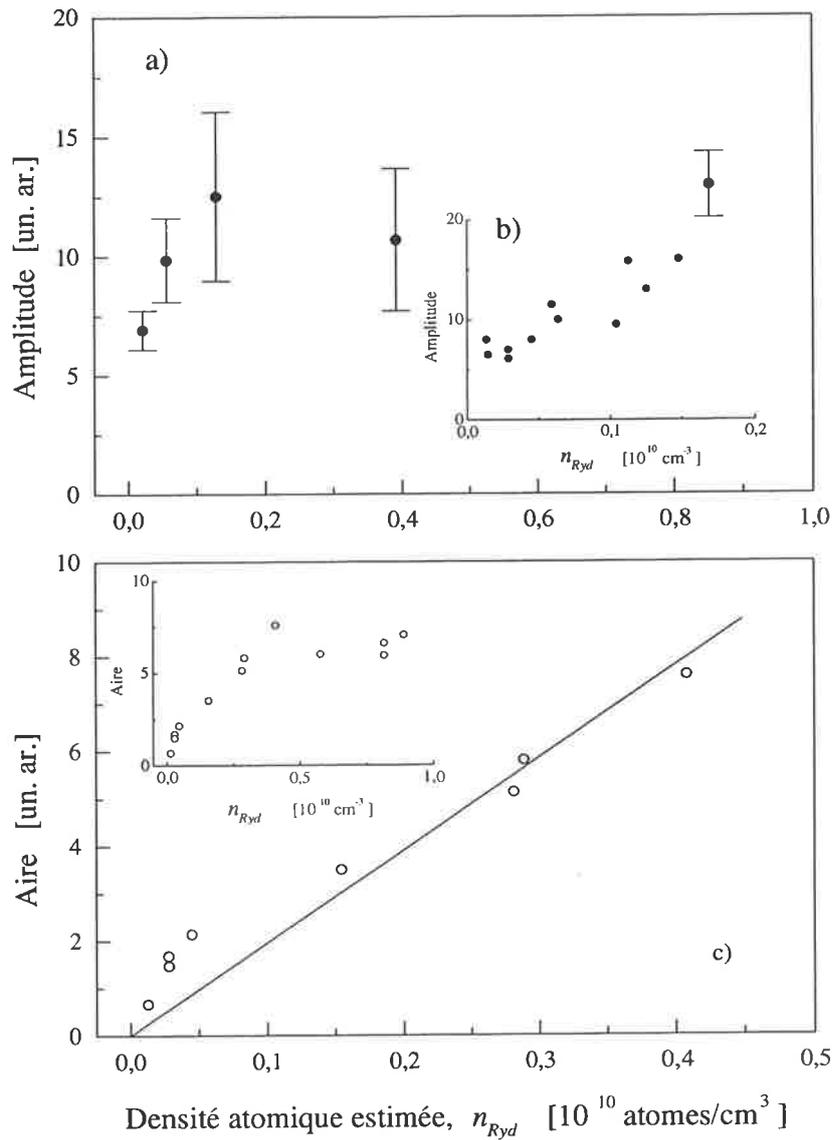


Figure 3-23: a) Dépendance du maximum absolu de transfert de population pour l'état initial $23p_{3/2} |m_j| = 1/2$ et temps d'évolution libre de $2 \mu s$ en fonction de la densité initiale. Figure b) montre une croissance du maximum pour les faibles densités. c) Aire des raies de résonance en fonction de la densité d'atomes dans l'état initial $23p_{3/2} |m_j| = 1/2$ pour le temps d'évolution libre de $2 \mu s$. La ligne continue est l'ajustement linéaire.

3.7.5 L'amplitude et l'aire des raies de résonance

Un autre aspect important est l'étude de l'évolution du nombre d'atomes transférés en fonction de la densité d'atomes de Rydberg. La figure 3-23 (a) présente l'évolution des maximums absolus des raies de résonance pour le niveau $23p_{3/2}$. La figure 3-23 (b) montre une croissance de maximums pour les faibles densités. Au delà d'un certain seuil $\sim 2 \times 10^9 \text{ cm}^{-3}$ (pour le niveau initial $23p_{3/2}$) on ne voit pas d'augmentation sensible du nombre d'ions détectés. Notons, qu'une grande dispersion des valeurs de l'amplitude est liée aux multiples sources d'erreurs expérimentales.

Un aspect particulier dans ce système est le comportement de l'aire des raies de résonance. Pour les densités d'atomes de Rydberg jusqu'au $0.5 \times 10^{10} \text{ cm}^{-3}$ la croissance est pratiquement linéaire (figure 3-23 (c)).

3.8 Discussion des résultats

Dans le paragraphe précédent nous avons décrit en détail les résultats expérimentaux obtenus pour le gaz de Rydberg gelé dans un processus d'échange résonnant d'énergie interne:

$$C_{s_A} n p_{3/2} + C_{s_B} n p_{3/2} \rightarrow C_{s_A} n s_{1/2} + C_{s_B} (n + 1) s_{1/2}. \quad (3.33)$$

Le premier résultat qu'on peut noter est une augmentation des largeurs des raies de résonance en fonction de la densité d'atomes de Rydberg. Un tel résultat est très différent des résultats qu'ont été obtenus dans l'étude des collisions résonnantes [10] où la largeur ne dépend pas de la densité atomique, mais de la vitesse relative de collision selon la loi: $v^{-3/2}$. Ce résultat n'est à proprement dit pas surprenant. En effet nous ne sommes plus ici en situation des collisions mais dans un gaz de Rydberg gelé où les atomes immobiles doivent interagir entre eux par interaction dipôle-dipôle, correspondant à potentiel $\sim R^{-3}$. On peut imaginer que les atomes plus proches voisins interagissent entre eux. Dans ces conditions on s'attendrait à une largeur caractéristique de résonance de l'ordre de μ^2/\bar{R}^3 , où \bar{R} est la distance moyenne entre plus proches voisins qui est de l'ordre de 5 – 20

μm pour des densités de 10^{10} à 10^8 atomes de Rydberg par cm^3 . Dans ces conditions les largeurs seront très inférieures, de l'ordre de 1 MHz c'est à dire deux ordres de grandeur inférieures aux largeurs observées.

Avant d'aller plus loin dans l'interprétation de ce résultat, il convient d'éliminer toutes les causes d'élargissement par artefacts pour notre système. Comme il a été dit plus haut l'élargissement dû à l'inhomogénéité du champ électrique donne un élargissement de l'ordre de 30 MHz. C'est la limite de résolution dans l'expérience. On peut exclure les causes d'élargissement dû à la présence du champ magnétique et du gradient du champ magnétique, qui produisent des élargissements négligeables. Le rayonnement du corps noir ne devrait influencer les largeurs, de plus ces effets doivent se produire sur des temps plus longs [53], [9]. La présence des photo-ions est probablement la source d'élargissement potentiel la plus importante. Il a été possible de voir leur effets qui induisent des formes de raies asymétriques. Cependant ces effets sont faibles pour des faibles taux d'excitations et ne sont sensibles que pour les excitations les plus intenses. En tout état de cause la présence des photo-ions n'explique pas les élargissements. On peut probablement discuter du phénomène de la superradiance qui pourrait se produire dans un tel système. Le système d'atomes de Rydberg froids semble être un cas idéal pour étudier la superradiance ou l'émission spontanée coopérative au sens de Dicke [63], où beaucoup d'atomes se trouvent contenus dans un volume petit devant longueur d'onde d'émission spontanée (typiquement $\lambda \sim 100 \mu\text{m}$ pour des transitions entre états de Rydberg autour de $n = 20$). Si la superradiance dans un volume cylindrique allongé parfois appelé superfluorescence a été observée, à notre connaissance aucune émission superradiante au sens de Dicke n'a été mise en évidence. Nous n'avons cependant pu mettre en évidence aucune émission spontanée coopérative dans notre système.

Pour comprendre les largeurs des raies observées il nous faut donc une nouvelle interprétation que celle proposé dans le modèle de plus proches voisins. Une interprétation en termes d'effet à plusieurs corps (ce qui a été une motivation principale de ce travail) semble s'imposer. Comment peut on décrire un tel système? L'interaction dipôle-dipôle

doit de toute manière favoriser l'interaction entre proches voisins. Pour comprendre par exemple les largeurs des raies beaucoup plus importantes (jusqu'à plus de deux ordres de grandeur) que la largeur correspondant à l'interaction plus proches voisins il nous faut considérer des paires d'atomes suffisamment proches. Les largeurs des résonances sont beaucoup plus importantes (deux ordres de grandeur) que la largeur correspondant à l'interaction typique entre proche voisin. Pour la densité d'atomes de Rydberg de 10^{10} cm^{-3} l'interaction typique V_{typ} est de l'ordre de 1.5 MHz. Les largeurs observées qui sont pour les densités maximales d'environ $R_\delta \sim 200 \text{ MHz}$ pourrait être expliquées en ne considérant que les atomes très proches dont les distances inter-atomiques sont:

$$R_\delta = \bar{R} \left(\frac{V_{typ}}{\delta} \right)^{1/3} \ll \bar{R}. \quad (3.34)$$

Le nombre de ces paires est donné par: $N_\delta = n_{Ryd} R_\delta^3$ et est de l'ordre de 1%. Si ces paires donnent effectivement une largeur de résonance qui correspond à la largeur observée, l'amplitude du signal dû à ces paires est trop faible, puisque 10 à 20% de transfert de population est observé expérimentalement. A ce point il est utile de se rappeler également les variations de largeur avec le temps d'évolution libre. On peut noter d'après la figure 3-17 que dans le cas de temps très courts $t_{exp} \ll t_{int}$ correspondant à des temps inférieurs au temps caractéristique t_{int} (inverse de l'interaction moyenne entre atomes proches voisins) le comportement du système est similaire à celui régi par l'interaction binaire, mais qu'avec des temps plus longs on observe des largeurs plus importantes que t_{int}^{-1} . Il faut distinguer l'élargissement dû à la densité et celle de "transform broadening", où un tel système (pour les petits temps et les faibles densités) a les caractéristiques d'un système correspondant à des situations à deux corps.

Nous n'irons pas plus loin dans ce chapitre pour ce qui concerne l'interprétation des résultats en termes d'effets à N-corps. On notera toutefois que de très nombreux aspects de nos expériences ne sont pas compris dans un modèle binaire. La dépendance avec la densité de la forme des raies de résonances est particulièrement très inattendue.

Element	n_{Ryd} cm^{-3}	T μK	\bar{R} μm	t_{exp} μs	ΔR μm	V_{typ} MHz	δ MHz	Reference
Cs ¹	$10^8 - 10^{10}$	$< 200^*$	$20 - 5$	2	0.2	1.5	$30 - 180$	[64]
Rb ²	$1.9 \cdot 10^8 - 10^9$	300	10^\dagger	3	1	0.24	$3.9 - 8.4$	[65]

Tableau 3.8: Valeurs expérimentales obtenues pour le gaz de Rydberg gelé.

¹– résonance $np_{3/2} + np_{3/2} \rightarrow ns_{1/2} + (n + 1) s_{1/2}$, $n = 23, 26$

²– résonance $25s_{1/2} + 33s_{1/2} \rightarrow 24p_{1/2} + 34p_{3/2}$

* – valeur estimée

† – valeur pour $n_{Ryd} = 10^9 \text{ cm}^{-3}$

On notera finalement que le phénomène observé n'est pas particulier à notre expérience car des résultats similaires sont obtenus dans le cas de Rubidium [65]. La comparaison de ces deux expériences est présentée dans le tableau 3.8. Il est intéressant de noter que la situation pour l'atome de césium est plus proche à l'approximation du gaz de Rydberg gelé car il s'agit d'un atome plus lourd que le rubidium, donc une condition d'immobilité d'atomes est plus facile à réaliser. Une expérience similaire donnerait probablement des résultats très différents avec un atome plus léger comme le lithium ou le sodium.

3.9 Conclusion

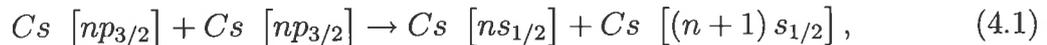
Avant d'aborder le chapitre suivant qui propose un traitement théorique pour l'interprétation de nos résultats nous rappelons les points que nous considérons comme les plus importants: à savoir que des effets à plusieurs atomes sont nécessaire pour comprendre nos résultats. Cependant le rôle des atomes très proches semblent devoir jouer un rôle essentiel. Pour relier ces deux considérations contradictoires nous allons proposer un modèle où les effets à deux corps entre atomes proches voisins sont fortement "perturbés" par la présence des autres atomes par des processus de diffusion d'excitation.

Chapitre 4

Diffusion d'excitation dans un ensemble d'atomes de Rydberg froids

4.1 Introduction

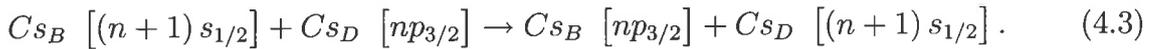
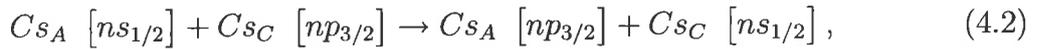
La dynamique de l'échange de l'énergie interne dans un ensemble d'atomes de Rydberg froids suivant la réaction



dont l'étude expérimentale est exposée dans le chapitre précédent présente en fonction de la densité d'atomes aussi bien qu'en fonction du désaccord avec la résonance (il s'agit des profils des raies des résonances), des caractères inattendus. Il est évident que ces effets ne peuvent pas être expliqués en ne considérant que des interactions à deux corps, c'est à dire l'approche habituellement utilisée pour des milieux dilués en phase gazeuse. L'explication de ce phénomène nécessite le développement d'un modèle prenant en considération des effets à plus de deux corps. Cependant le problème à plusieurs corps, en général, ne

peut être résolu qu'avec certaines simplifications. Une modélisation phénoménologique peut être une méthode assez efficace pour traiter un tel problème. Dans ce chapitre nous développons un tel modèle phénoménologique de type réaction-diffusion, qui présente une certaine analogie avec une réaction autocatalitique en chimie.

Pour résoudre ce problème on considère deux étapes d'évolution de ce système. La première étape est un problème à deux corps comme celui considéré par la réaction (4.1) donnée ci-dessus. On a vu que si on considère une paire de l'ensemble des atomes proches voisins à la distance moyenne \bar{R} on obtient pour cette paire une raie de résonance extrêmement étroite. Pour comprendre les largeurs observées on va être amené à ne considérer que les paires des atomes très proches ($R \ll \bar{R}$) qui vont être considérées comme les centres actifs où la réaction (4.1) se produit préférentiellement. Pour ces paires l'interaction dipôle-dipôle est en général plus forte que pour des paires d'atomes voisins pris statistiquement au hasard. En considérant ces paires on peut comprendre les largeurs des raies observées, mais le petit nombre de ces paires ne permet pas de rendre compte du taux de transfert de population observé. La deuxième étape est l'évacuation des produits de réaction (les états $ns, (n+1)s$) créés dans un centre actif considéré. En effet quelle que soit la condition de résonance pour la réaction (4.1) les produits de réaction ($ns, (n+1)s$) peuvent diffuser à travers d'ensemble des autres atomes de Rydberg dans l'état $np_{3/2}$ par échange d'excitation dû à l'interaction dipôle-dipôle suivant les réactions:



Ce processus de diffusion permet de réamorcer le centre actif et d'obtenir un deuxième couple d'états $ns, (n+1)s$ et ainsi de suite. Une paire d'atomes proches pourra de cette manière créer plusieurs paires d'états $ns, (n+1)s$.

En terme de quasi-particules ce dernier processus peut être compris comme la propagation des excitations $ns, (n+1)s$ dans le milieu constitué des atomes de Rydberg

immobiles dans le même état quantique $|np\rangle$. Un tel processus est un processus d'échange résonnant d'énergie, régi par l'interaction dipôle-dipôle, et est similaire à celui responsable de la création des états $|ns\rangle, |(n+1)s\rangle$. Du point de vue de l'analyse théorique le problème de la propagation des excitations peut être ramené au problème d'un niveau seul couplé avec une bande inhomogène de niveaux par des éléments de matrice d'interaction différents. L'aspect important de ce problème est le fait que dans le cas de l'interaction dipolaire en R^{-3} il est nécessaire de considérer tous les couplages: l'effet des atomes éloignés devient aussi important que celui des atomes proches. En effet, bien que la valeur d'interaction décroît comme R^{-3} , le nombre de partenaires possibles pour l'interaction croît comme R^2 . En somme, l'intégrale représentant l'interaction moyenne est: $\int R^{-1}dR$ et elle diverge sur une borne supérieure aussi bien que sur une borne inférieure. Dans une telle situation, la dynamique d'échange de population entre un niveau et une bande devient complexe: les départs de population vers la bande coexistent avec les retours de population depuis cette bande. Dans ce travail nous allons proposer une modélisation de ce processus d'évacuation des excitations depuis le centre actif en le considérant comme ayant un caractère de diffusion. Un tel processus est régi par l'interaction dipôle-dipôle entre les atomes avec la distance inter-atomique moyenne beaucoup plus grande que celle associée à la paire, qu'on considère comme le centre actif, et est beaucoup plus faible. Nous montrons comment ce processus de diffusion des excitations (réactions (4.2) et (4.3)), dont les constantes d'évolution sont plus lentes que celles associées à la réaction (4.1) dans un centre actif peut affecter la dynamique de l'échange d'énergie dans un ensemble d'atomes de Rydberg froids.

Le plan de ce chapitre est le suivant. D'abord, dans le premier paragraphe (4.2), nous discutons les processus élémentaires dans un ensemble d'atomes excités dans un état de Rydberg et nous discutons les aspects généraux du problème d'un niveau couplé avec une bande inhomogène. Ensuite dans le paragraphe suivant (4.3) nous montrons comment avec la seule hypothèse du caractère Markovien des actes successifs de création des excitations on peut obtenir l'expression pour le nombre total des couples d'excitations

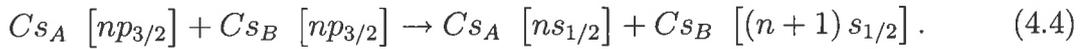
(états $|ns\rangle, |(n+1)s\rangle$) créés par un centre actif, ayant pour une base l'acte élémentaire qui est le transfert résonnant de l'énergie. Dans le paragraphe (4.4) nous décrivons le formalisme du problème en terme d'équation de Schrödinger pour un système à deux niveaux plus une bande. Les niveaux de cette bande pour le cas d'un Hamiltonien non-diagonalisé décrivent les différents atomes distribués dans le volume excité, constituant l'environnement du centre actif, sur lesquels les excitations sont localisées. Nous discutons le mécanisme d'évacuation d'excitations à partir du centre actif par l'introduction d'une fonction de Green permettant de décrire de manière phénoménologique la propagation des excitations dans l'ensemble des atomes immobiles. Dans le paragraphe (4.5) nous abordons le problème de diffusion de l'excitation à travers l'ensemble des atomes immobiles et définissons alors la fonction de Green pour le système considéré. A partir de l'expression pour la fonction de Green, nous obtenons l'expression pour la densité d'états dans une bande. Dans les paragraphes suivants nous passons à l'approximation aux temps grands (4.6), en ajoutant la condition de grande densité nous obtenons les expressions asymptotiques pour les fonctions de Green (4.7). Dans le dernier paragraphe (4.8) nous exposons les résultats de ce modèle et la comparaison avec les résultats expérimentaux.

4.2 Position du problème et remarques préliminaires

Considérons un ensemble d'atomes immobiles, excités dans un état de Rydberg $|np\rangle$. Supposons, que les atomes dans cet ensemble sont distribués spatialement de manière aléatoire. Les distances inter-atomiques sont distribuées aussi de manière aléatoire avec une distance moyenne $\bar{R} \sim n_{\text{at}}^{-1/3}$. Parmi ces atomes il existe une faible proportion de paires d'atomes, dont les distances relatives sont beaucoup plus petites que \bar{R} . Considérons le système idéalisé: deux atomes proches A et B avec une distance $R_{AB} \ll \bar{R}$, entourés par un ensemble d'atomes dont les distances inter-atomiques sont distribuées de manière aléatoire et sont beaucoup plus grandes que R_{AB} . Examinons donc les processus possibles dans un tel système.

4.2.1 Les processus élémentaires dans un ensemble d'atomes excités dans un état de Rydberg

Considérons un couple d'atomes, chacun dans l'état np (nous oublions dans la suite l'indice $3/2$). L'état initial du système étudié est donc $|1\rangle = |np, np\rangle$. Il correspond à une situation où les deux atomes A et B se trouvent dans l'état de Rydberg np , plongés dans un réservoir d'atomes de Rydberg dans le même état np . Par interaction dipôle-dipôle, les deux atomes A et B peuvent échanger de l'énergie interne suivant le schéma:



On peut interpréter ce processus de la manière suivante: un des deux atomes perd de l'énergie interne en émettant un photon virtuel et fait une transition dans l'état $|ns\rangle$, en même temps son partenaire en absorbant ce photon virtuel acquiert de l'énergie et effectue une transition dans l'état $|(n+1)s\rangle$. Ce processus correspond à une transition du système vers l'état $|2\rangle = |ns, (n+1)s\rangle$ où l'un des atomes A ou B se trouve dans l'état de Rydberg $|ns\rangle$ et l'autre dans l'état $|(n+1)s\rangle$, que nous dénotons pour la suite par $|n's\rangle$. Les états du système $|np, np\rangle$ et $|ns, n's\rangle$ sont couplés par l'élément de matrice d'interaction V_{12} . Dans le cas de l'interaction dipôle-dipôle l'élément de matrice d'interaction s'écrit:

$$V_{12} = \langle np, np | \widehat{V} | ns, n's \rangle = \frac{\mu_{np}^{ns} \mu_{np}^{n's}}{R_{AB}^3}. \quad (4.5)$$

Dans la suite, pour simplifier nous considérons, que les éléments de matrice dipolaire μ_{np}^{ns} et $\mu_{np}^{n's}$ sont égaux:

$$\mu_{np}^{n's} \simeq \mu_{np}^{ns} = \mu. \quad (4.6)$$

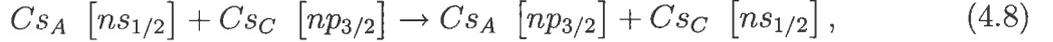
Cette condition est remplie pour le processus considéré de l'échange résonnant de l'énergie dans l'ensemble d'atomes de Rydberg (voir chapitre 2). Dû au grand moment dipolaire des atomes dans l'état de Rydberg et à la distance petite entre les atomes de la paire d'atomes $A - B$ on montre que la probabilité de cette transition est grande, ce qui

implique que le processus d'échange d'énergie peut avoir lieu pour des désaccords avec la résonance

$$\Delta_1 = (E_{n's} - E_{np}) - (E_{np} - E_{ns}) \quad (4.7)$$

assez grands.

Notons ensuite que cette paire d'atomes n'est pas un système fermé. L'environnement de cette paire constitué d'un grand nombre d'atomes dans l'état quantique $|np\rangle$ distribués spatialement de manière aléatoire avec les distances inter-atomiques supérieures à la distance R_{AB} , peut affecter la dynamique de l'échange d'énergie dans un tel système. Par interaction dipôle-dipôle chacun des atomes de la paire $A - B$ étant dans l'état $|ns\rangle$ ou $|(n+1)s\rangle$ peut échanger de l'énergie avec l'un des atomes dans l'état $|np\rangle$ de son environnement. Ces processus d'échange d'énergie suivent les schémas de réaction suivants:



Notons, que la condition de résonance est toujours remplie pour les processus de ce type. Les processus d'échange dans l'environnement peuvent se répéter un certain nombre de fois, défini par le temps d'évolution du système. Rappelons que dans l'expérience ce temps est le temps d'évolution libre et est défini par l'intervalle entre l'excitation dans l'état Rydberg np et la détection sélective de l'état ns . L'analyse des données expérimentales (voir le § 3.8 du chapitre précédent) permet de conclure que le nombre des paires responsables des largeurs des résonances observées est de l'ordre de quelques pour-cents pour une densité d'atomes de Rydberg de l'ordre de 10^{10} cm^{-3} , tandis que la distance moyenne pour la même densité est d'environ $5 \mu\text{m}$. Ceci signifie que l'interaction dipolaire entre un atome d'une paire $A - B$ et un des atomes de l'environnement est beaucoup plus faible et correspond à une évolution du système beaucoup plus lente du point de vue du temps d'interaction. Il est évident que l'effet de l'environnement dans ce cas se manifeste seulement sur une échelle de temps grand. Pour que l'environnement joue son rôle à travers le

processus de propagation d'excitation (ou éventuellement de la diffusion), il faut de plus que le temps d'évolution lié à la diffusion soit plus petit que le temps où le système est laissé libre d'évoluer. Car le maximum est la durée de vie des atomes de Rydberg, cette condition est bien remplie au moins pour les densités les plus fortes.

Dans un tel système il devient possible que l'excitation effectue plusieurs "déplacements" dans le milieu. Cependant il est possible d'arriver à une situation, où après avoir effectué un certain nombre d'échanges dans l'environnement une excitation retourne à son centre actif initial. Ceci conduit à l'inhibition du processus de création d'excitations. Pour montrer dans quelles conditions ces retours sont possibles nous allons examiner plus loin le problème d'un niveau simple couplé avec une bande inhomogène, mais d'abord présentons quelques résultats des simulations numériques de ce problème.

Remarque: dans notre modèle nous négligeons le possible mécanisme d'annihilation, lors de la rencontre des excitations ns et $n's$ dans le milieu, qui peut provoquer le processus inverse suivant:

$$Cs_X [ns_{1/2}] + Cs_Y [(n+1)s_{1/2}] \rightarrow Cs_X [np_{3/2}] + Cs_Y [np_{3/2}], \quad (4.10)$$

en supposant que nous avons un régime loin de la saturation.

4.2.2 Ensemble d'atomes de Rydberg froids. Les résultats des simulations numériques

Dans ce paragraphe nous allons donner le résumé des résultats de l'analyse numérique de problème concernant des interactions dans l'ensemble d'atomes de Rydberg froids. (Les simulations numériques ont été réalisées par F. de Tomasi et ne rentrent pas dans le plan de cette thèse. Les détails de ces simulations se trouvent dans la référence [66] présentée dans l'annexe E). Notons que dans cette analyse a été considéré seulement le processus d'échange d'excitation: un atome dans l'état s a été placé dans un réservoir d'atomes dans l'état p distribués de manière aléatoire dans une boîte à trois dimensions.

L'ensemble d'états $\{|k\rangle\}$, où chacun de ces états $|k\rangle$ correspond à une localisation d'état s sur le k -ième atome a été choisi comme une base d'états propres du système. Le Hamiltonien de ce système avec les éléments de matrice $H_{ij} = \mu^2 / (\vec{R}_i - \vec{R}_j)^3$ a été diagonalisé numériquement. Cette analyse numérique a montré, en particulier, que le système aléatoire avec interaction en R^{-3} est conforme à un modèle niveau-bande. Deux caractéristiques importantes dans un tel système sont la distribution des éléments de matrice d'interaction (les couplages V_k des niveaux de cette bande avec le niveau isolé) $g(V)$ et la distribution des positions en énergie des niveaux Δ_k dans une bande $g(\Delta)$ (ou la distribution de la densité d'états). L'analyse numérique a montré que ces deux caractéristiques sont statistiquement indépendantes. Il est important de noter que l'analyse numérique a montré aussi le caractère non-exponentiel de la probabilité de trouver ce système dans l'état initial.

Dans cette thèse nous allons utiliser ces aspects pour modéliser le processus de propagation d'excitation et en particulier pour modéliser une densité d'états dans une bande.

4.2.3 Problème d'interaction d'un niveau avec une bande inhomogène

Dénotons par V_{2k} et V_{k2} les éléments de matrice d'interaction entre l'état $|ns, n's\rangle$ (où l'un des atomes A et B se trouve dans l'état de Rydberg $|ns\rangle$ et l'autre dans l'état $|(n+1)s\rangle = |n's\rangle$) et l'état $|k\rangle$. Dans le cas du Hamiltonien non-diagonalisé l'état $|k\rangle$ correspond à une situation où l'excitation (l'état $|ns\rangle$ ou $|n's\rangle$) est localisée sur le k -ième atome. Pour la suite nous considérons que le Hamiltonien est déjà diagonalisé. L'ensemble des niveaux d'énergie, correspondant à ces états est équivalent à une bande de niveaux. Un tel système ne peut pas être analysé comme un problème connu d'interaction d'un état initial avec un continuum d'états. Dans cette approche on considère habituellement une bande homogène de grande densité d'états g couplés avec un niveau initial par les mêmes éléments de matrice d'interaction. La dynamique de population dans ce système a le caractère de désexcitation exponentielle irréversible du niveau initial dans la bande. Cependant cette

approche n'est pas universelle. Par exemple, dans le cas des spectres discrets des retours de population dans l'état initial du système [67] ou des retours fractionnels [68], [69] peuvent avoir lieu dans les périodes ultérieures d'évolution du système. Le temps caractéristique de retour est proportionnel à la densité d'états dans la bande. Dans le cas général il est nécessaire de considérer le système d'un niveau couplé à une bande inhomogène avec des éléments de matrice d'interaction V_i différents.

Revenons maintenant au système considéré: une paire d'atomes "très proches" $A - B$ dans un environnement de gaz de Rydberg gelé. Dans un tel ensemble nous avons un petit nombre d'atomes proches de la paire et qui sont en interaction relativement forte avec les atomes de cette paire. Dans le même temps, il existe un grand nombre d'atomes situés loin de cette paire en interaction dipôle-dipôle plus faible, mais dont le nombre est plus grand. L'interaction moyenne dans un tel système est une intégrale:

$$\bar{V} \sim \int \frac{dR}{R}. \quad (4.11)$$

Cette intégrale diverge pour les petites distances aussi bien que pour les grandes. Les atomes éloignés sont donc aussi importants que les proches voisins (en ce qui concerne la propagation ou éventuellement la diffusion). Dans cette situation il est nécessaire de prendre en compte tous les couplages. En ce qui concerne la divergence de l'intégrale (4.11) pour les grandes distances c'est un problème connu. L'interaction dipôle-dipôle entre atomes comme toute interaction électrostatique peut être comprise comme le processus d'échange de photon virtuel. (Nous avons utilisé déjà cette image pour interpréter le processus d'échange résonant d'énergie). Dans le cas des atomes de Rydberg la longueur d'onde de ce photon virtuel $\lambda = hc/(E_{n's} - E_{np})$ est assez grande ($\lambda \sim 900 \mu\text{m}$ pour $n = 25$). Il est intéressant de noter que dans le cas de gaz de Rydberg gelé créé dans le piège magnéto-optique cette longueur d'onde est de même ordre de grandeur que la taille typique du nuage atomique. Il est manifeste que dans un tel système pour l'estimation de l'interaction moyenne la distance maximale dans l'intégrale (4.11) peut être choisie égale à la taille du nuage d'atomes de Rydberg.

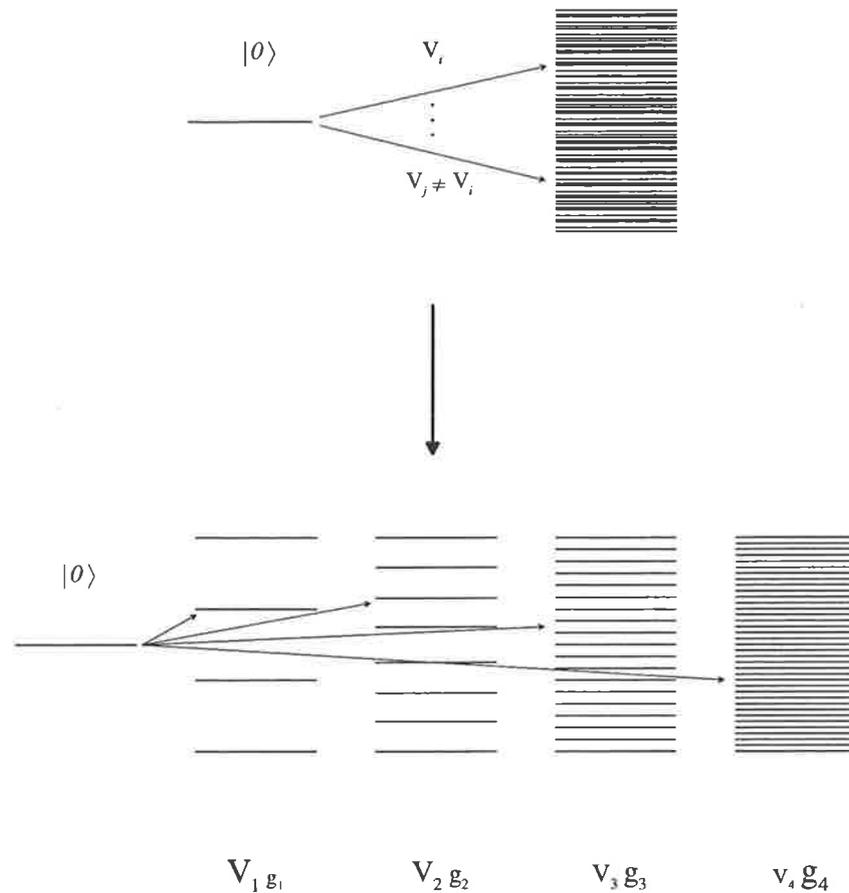


Figure 4-1: Un état quantique $|0\rangle$ couplé avec une bande inhomogène d'états. Un groupe d'états avec une petite densité d'états g_1 a un fort couplage V_1 avec l'état initial. D'autre part, un grand nombre de niveaux sont couplés avec un état initial par faible couplage V_4 , mais la densité de ce groupe est grande.

Examinons en détail le système: un niveau-une bande inhomogène. Cette bande peut être représentée comme un ensemble de groupes d'états (sous-bandes homogènes) avec une densité d'états g_i et le couplage V_i correspondant (figure 4-1). Si l'élément de matrice d'interaction V_i et la densité d'états g_i correspondante pour un groupe d'états donné varie d'un groupe à l'autre d'un ordre de grandeur, la dynamique de la population dans un tel système est forcément complexe. Les retours à partir d'un groupe (V_i, g_i) vers l'état initial peuvent coexister avec les départs de population de l'état initial vers un autre groupe des états (V_j, g_j) . Les retours de population ne peuvent pas être séparés du processus de

déexcitation du niveau initial et doivent être inclus dans l'analyse.

4.3 Mécanisme de création d'excitations dans un ensemble d'atomes immobiles

Comme résultat de l'échange des excitations ns , ns' entre les atomes de la paire $A - B$ (centre actif) et les atomes de l'environnement, les atomes de la paire $A - B$ reconstituent leurs états initiaux $|np\rangle$. Ils peuvent alors créer une nouvelle paire d'excitations ns , ns' . Le processus d'évacuation des excitations peut se reproduire à nouveau, ce qui conduit à la répétition du processus de création d'excitation et à l'évacuation à travers le milieu des atomes immobiles. Ce mécanisme est représenté schématiquement sur la figure 4-2. Considérons maintenant le processus de création d'excitations.

La probabilité de trouver le système dans un état initial $|1\rangle = |np, np\rangle$ est:

$$\rho_1(t) = \Psi_1(t) \Psi_1^*(t), \quad (4.12)$$

où $\Psi_1(t)$ est la fonction d'onde de cet état. Cette probabilité peut aussi être comprise comme la probabilité de ne créer aucun couple d'états $|ns\rangle$, $|n's\rangle$ à l'instant t . La probabilité de créer un couple d'états $|ns\rangle$, $|n's\rangle$ dans un intervalle de temps $(t_1, t_1 + dt_1)$ est la dérivée de la probabilité d'état initial $\rho_1(t)$ prise avec un signe négatif et multiplié par cet intervalle: $[-\dot{\rho}_1(t_1)dt_1]$. La probabilité de créer un couple d'états $|ns\rangle$, $|n's\rangle$ à l'instant t , que nous dénotons $\Lambda_1(t)$ est donnée par la convolution de la probabilité de créer un couple $[-\dot{\rho}_1(t_1)dt_1]$ dans un intervalle du temps $(t_1, t_1 + dt_1)$ et de la probabilité $\rho_1(t - t_1)$ de ne pas créer aucun couple après l'instant t_1 . Cette dernière probabilité est tout simplement la probabilité de trouver le système dans l'état initial $|np, np\rangle$. Donc

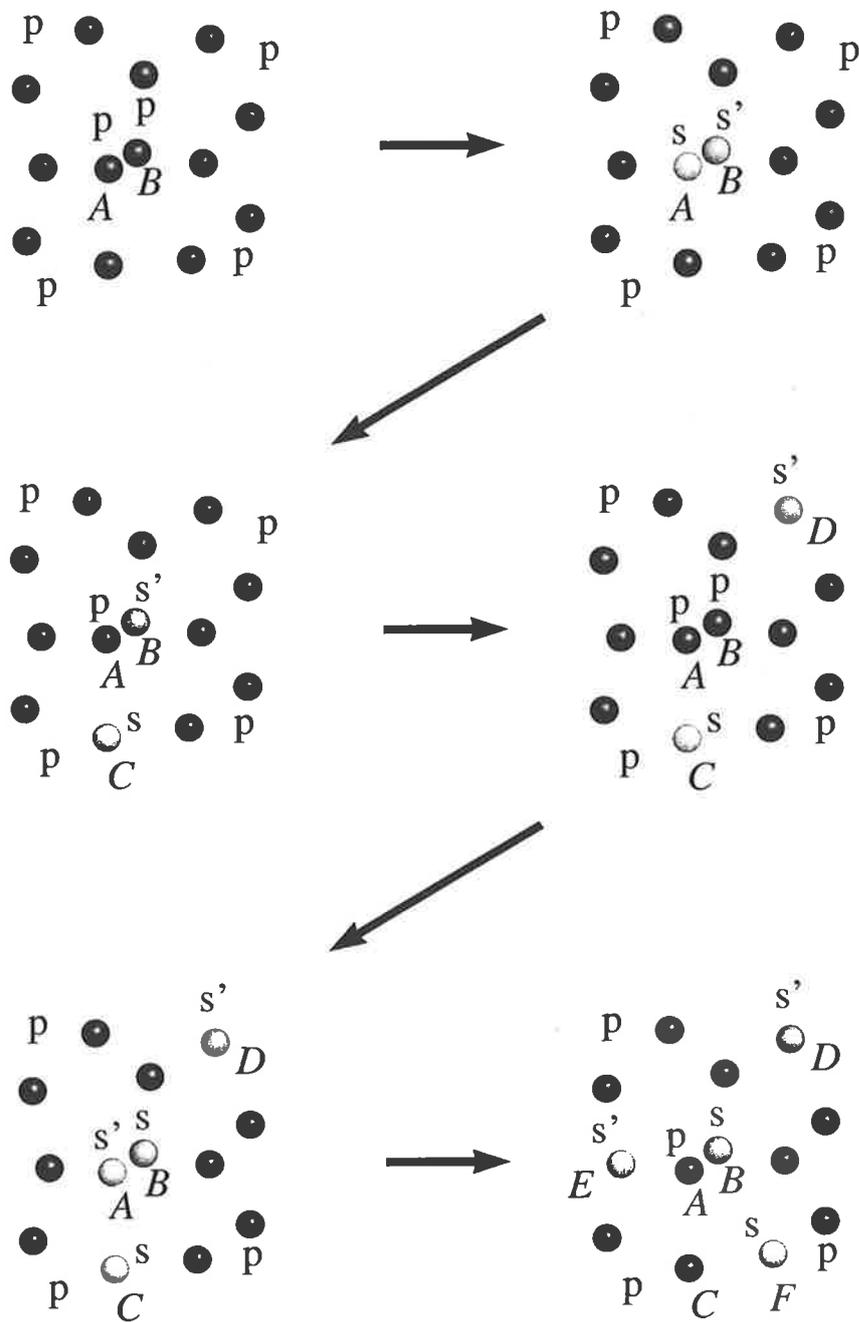


Figure 4-2: Représentation schématique d'un mécanisme d'échange d'excitation dans un ensemble d'atomes immobiles. Les excitations $|ns\rangle$, $|n's\rangle$ créées par un centre actif (une paire d'atomes "très proches" $A - B$) sont évacuées par processus d'échange résonnant d'énergie avec les atomes de l'environnement de ce centre actif. Lorsque deux excitations $|ns\rangle$, $|n's\rangle$ quittent le centre actif, la création d'un nouveau couple d'excitations se produit.

la probabilité de créer un seul couple jusqu'au moment du temps t est l'intégrale:

$$\Lambda_1(t) = - \int_0^t \dot{\rho}_1(t_1) \rho_1(t-t_1) dt_1. \quad (4.13)$$

La probabilité de créer deux couples d'états $|ns\rangle, |n's\rangle$, le premier dans l'intervalle de temps $(t_1, t_1 + dt_1)$ et le deuxième dans l'intervalle de temps $(t_2, t_2 + dt_2)$, en supposant l'indépendance statistique des deux actes successifs s'écrit:

$$\Lambda_2(t) = - \int_0^t \dot{\rho}_1(t_1) \Lambda_1(t-t_1) dt_1 = \int_0^t \int_0^{t-t_1} \dot{\rho}_1(t_1) \dot{\rho}_1(t_2) \rho_1(t-t_1-t_2) dt_1 dt_2, \quad (4.14)$$

où le dernier terme sous le signe d'intégrale du membre de droite $\rho_1(t-t_1-t_2)$ représente la probabilité de ne créer aucun couple après la création de deux couples. De manière analogue nous obtenons pour la probabilité de créer k couples d'excitations jusqu'au temps t l'expression suivante:

$$\Lambda_k(t) = (-1)^k \int_0^t \dots \int_0^{t-\sum_{m=1}^{(k-1)} t_m} \rho_1(t_1) \rho_1(t_2) \dots \dot{\rho}_1(t_k) \rho_1(t - \sum_{m=1}^k t_m) dt_1 \dots dt_k. \quad (4.15)$$

Le nombre total des couples créés par un centre actif à l'instant t dans ce cas est donné par une somme:

$$N(t) = \Lambda_1(t) + 2 \cdot \Lambda_2(t) + 3 \cdot \Lambda_3(t) + \dots + k \cdot \Lambda_k(t) + \dots = \sum_{k=1}^{\infty} k \Lambda_k(t). \quad (4.16)$$

On peut simplifier le traitement en faisant une transformation de Fourier. En prenant la définition standard de la transformation de Fourier, la transformée de Fourier pour une fonction d'onde $\Psi(t)$ s'écrit:

$$\Psi(\varepsilon) = \int_0^{\infty} \Psi(t) e^{i(\varepsilon+in)t} dt, \quad (4.17)$$

où $\eta = +0$ est un infinitésimal positif. Dans ce cas la transformation de Fourier inverse est donnée par l'expression:

$$\Psi(t) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} e^{-i(\varepsilon+i\eta)t} \psi(\varepsilon) d\varepsilon = \frac{1}{2\pi} \int_C e^{-i(\varepsilon+i\eta)t} \psi(\varepsilon) d\varepsilon, \quad (4.18)$$

où le lacet d'intégration C dans la dernière intégrale est constitué de l'axe réel et du demi-cercle dans le demi-plan inférieur du plan complexe. On obtient pour la probabilité de créer un seul couple l'expression suivante:

$$\Lambda_1(\varepsilon) = -\tilde{\rho}_1(\varepsilon)\rho_1(\varepsilon). \quad (4.19)$$

Ici $\tilde{\rho}_1(\varepsilon)$ dénote la transformée de Fourier de la dérivée de la probabilité $\rho_1(t)$:

$$\tilde{\rho}_1(\varepsilon) = \int_0^{\infty} e^{i(\varepsilon+i\eta)t} \dot{\rho}_1(t) dt = -1 - i\varepsilon\rho_1(\varepsilon). \quad (4.20)$$

On calcule facilement cette dernière intégrale en utilisant l'intégration par partie et la condition initiale $\rho_1(0) = 1$. Il résulte que la probabilité de créer k couples (Eq. (4.15)) après transformation de Fourier est:

$$\Lambda_k(\varepsilon) = \left[-\tilde{\rho}_1(\varepsilon) \right]^k \rho_1(\varepsilon). \quad (4.21)$$

Finalement le nombre total de couples créés à l'instant t (Eq. (4.16)) après transformation de Fourier prend une forme suivante:

$$N(\varepsilon) = \sum_{k=1}^{\infty} k \Lambda_k(\varepsilon) = \rho_1(\varepsilon) \sum_{k=1}^{\infty} k \left[-\tilde{\rho}_1(\varepsilon) \right]^k. \quad (4.22)$$

La série dans la partie droite de cette expression peut être sommée de manière suivante: posons $\left[-\tilde{\rho}_1(\varepsilon) \right] \equiv R$ pour simplifier le traitement et utilisons les relations

i): d'une part:

$$\sum_{k=1}^{\infty} kR^k = R \frac{\partial}{\partial R} \left[\sum_{k=1}^{\infty} R^k \right], \quad (4.23)$$

ii): d'autre part puisque la probabilité de transition est inférieure à l'unité ($R < 1$), nous pouvons utiliser le développement suivant:

$$\sum_{k=1}^{\infty} R^k = \frac{1}{1-R}. \quad (4.24)$$

Nous obtenons alors en substituant cette relation dans l'équation (4.23) l'expression:

$$\sum_{k=1}^{\infty} kR^k = R \frac{\partial}{\partial R} \left(\frac{1}{1-R} \right) = \frac{R}{(1-R)^2}. \quad (4.25)$$

L'expression (4.22) pour le nombre total de couples créés prend dans ce cas une forme:

$$N(\varepsilon) = \rho_1(\varepsilon) \frac{-\tilde{\rho}_1(\varepsilon)}{\left(1 + \tilde{\rho}_1(\varepsilon)\right)^2}. \quad (4.26)$$

Après la substitution $\tilde{\rho}_1(\varepsilon) = -1 - i\varepsilon\rho_1(\varepsilon)$, cette dernière équation devient:

$$N(\varepsilon) = \rho_1(\varepsilon) \frac{1 + i\varepsilon\rho_1(\varepsilon)}{[-i\varepsilon\rho_1(\varepsilon)]^2} = \frac{1 + i\varepsilon\rho_1(\varepsilon)}{(-i\varepsilon)^2 \rho_1(\varepsilon)}. \quad (4.27)$$

Après la transformation de Fourier inverse on obtient pour le nombre total de couples créés par le centre actif à l'instant t :

$$\begin{aligned} N(t) &= \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} e^{-i(\varepsilon+i\eta)t} \frac{1}{i\varepsilon} \left(\frac{1}{i\varepsilon\rho_1(\varepsilon)} + 1 \right) d\varepsilon \\ &= \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} e^{-i(\varepsilon+i\eta)t} \frac{d\varepsilon}{(i\varepsilon)^2 \rho_1(\varepsilon)} + \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} e^{-i(\varepsilon+i\eta)t} \frac{d\varepsilon}{i\varepsilon}. \end{aligned} \quad (4.28)$$

On peut remarquer que le deuxième terme dans cette expression est:

$$\frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} e^{-i(\varepsilon+i\eta)t} \frac{d\varepsilon}{i\varepsilon} = -1, \quad (4.29)$$

et est une constante égale à l'unité, et elle peut être négligée. Donc finalement le nombre de couples d'états $|ns\rangle, |n's\rangle$ créés par un centre actif à l'instant t s'écrit:

$$N(t) \simeq \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} e^{-i(\varepsilon+i\eta)t} \frac{d\varepsilon}{(i\varepsilon)^2 \rho_1(\varepsilon)}. \quad (4.30)$$

Pour trouver l'expression pour la probabilité $\rho_1(t)$ et par conséquent celle de la transformée de Fourier $\rho_1(\varepsilon)$ nous allons considérer l'équation de Schrödinger du système à un niveau+un niveau+une bande.

4.4 Equation de Schrödinger du système niveau-bande

Considérons un système dont $|np, np\rangle = |1\rangle$ est l'état initial, $|ns, (n+1)s\rangle = |2\rangle$ l'état intermédiaire et $\{|k\rangle\}$ l'ensemble des états finals (figure 4-3). Comme nous l'avons déjà mentionné l'état $|k\rangle$ est un état décrivant l'excitation localisée sur un k -ième atome dans le cas du Hamiltonien non-diagonalisé. Pour la suite nous supposons pour simplifier le problème que le Hamiltonien d'interaction entre les états de bande est déjà diagonalisé et nous dénotons ses valeurs propres par Δ_k . Dans ce cas les états $|k\rangle$ n'ont pas le même sens et correspondent à une situation où les excitations sont délocalisées dans l'ensemble d'atomes. L'équation de Schrödinger correspondante dans ce cas est:

$$\begin{aligned} i\hbar \dot{\Psi}_1(t) &= \Delta_1 \Psi_1(t) + V_{12} \Psi_2(t), \\ i\hbar \dot{\Psi}_2(t) &= \Delta_2 \Psi_2(t) + V_{21} \Psi_1(t) + \sum_k V_{2k} \Psi_k(t), \end{aligned} \quad (4.31)$$

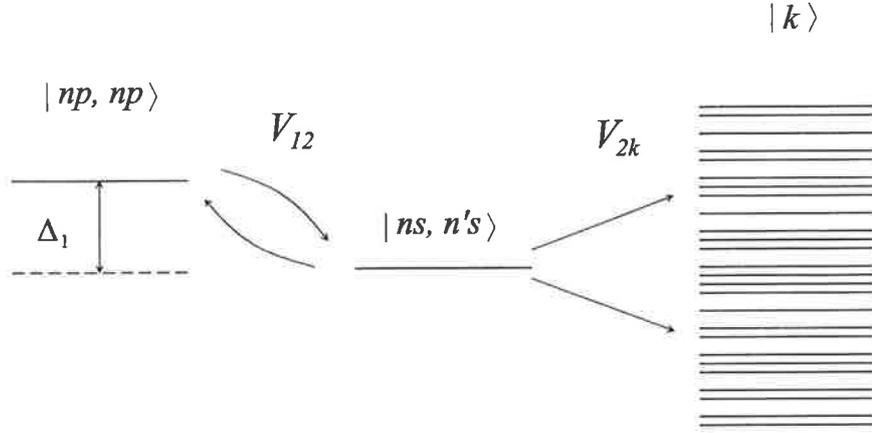


Figure 4-3: Schéma des niveaux d'énergie du système. L'état initial $|np, np\rangle$ est couplé par interaction dipôle-dipôle, dont l'élément de matrice d'interaction est V_{12} avec l'état $|ns, n's\rangle$ correspondant à une situation où un atome de la paire d'atomes $A - B$ se trouve dans un état $|ns\rangle$ et l'autre dans un état $|n's\rangle = |(n + 1)s\rangle$. Les transitions dans une bande d'états $\{|k\rangle\}$ dues à l'échange d'énergie par interaction dipôle-dipôle avec les éléments de matrice d'interaction V_{2k} représentent l'évacuation des excitations du centre actif.

$$i\hbar \dot{\Psi}_k(t) = \Delta_k \Psi_k(t) + V_{k2} \Psi_2(t).$$

La transformation de Fourier du système d'équations (4.31) conduit aux expressions suivantes:

$$\begin{aligned} i\hbar(-i\varepsilon\psi_1(\varepsilon) - \Psi_1(0)) &= \Delta_1\psi_1(\varepsilon) + V_{12}\psi_2(\varepsilon), \\ i\hbar(-i\varepsilon\psi_2(\varepsilon) - \Psi_2(0)) &= \Delta_2\psi_2(\varepsilon) + V_{21}\psi_1(\varepsilon) + \sum_k V_{2k}\psi_k(\varepsilon), \\ i\hbar(-i\varepsilon\psi_k(\varepsilon) - \Psi_k(0)) &= \Delta_k\psi_k(\varepsilon) + V_{k2}\psi_2(\varepsilon). \end{aligned} \quad (4.32)$$

A l'instant $t = 0$ tous les atomes dans le système étudié se trouvent dans l'état $|1\rangle = |np, np\rangle$, ce qui correspond aux conditions initiales suivantes pour ce système:

$$\Psi_1(0) = 1, \quad \Psi_2(0) = \Psi_k(0) = 0. \quad (4.33)$$

Dans le système considéré le niveau énergétique correspondant à l'état propre $|ns, n's\rangle$ est fixé, donc Δ_2 est constant et nous posons $\Delta_2 = 0$ en prenant cet état comme origine

des énergies. Pour alléger les expressions posons également $\hbar = 1$. Dans ce cas le système d'équations (4.32) avec les conditions initiales (4.33) s'écrit:

$$\varepsilon\psi_1(\varepsilon) - i = \Delta_1\psi_1(\varepsilon) + V_{12}\psi_2(\varepsilon), \quad (4.34)$$

$$\varepsilon\psi_2(\varepsilon) = V_{21}\psi_1(\varepsilon) + \sum_k V_{2k}\psi_k(\varepsilon), \quad (4.35)$$

$$\varepsilon\psi_k(\varepsilon) = \Delta_k\psi_k(\varepsilon) + V_{k2}\psi_2(\varepsilon). \quad (4.36)$$

De la dernière équation (4.36) nous obtenons immédiatement l'expression:

$$\psi_k(\varepsilon) = \frac{V_{k2}}{\varepsilon - \Delta_k + i\eta}\psi_2(\varepsilon). \quad (4.37)$$

En la substituant dans l'équation (4.35) nous obtenons après la transformation:

$$\psi_2(\varepsilon) = \frac{V_{21}}{\varepsilon - \sum_k [V_{2k}V_{k2}/(\varepsilon - \Delta_k + i\eta)]}\psi_1(\varepsilon). \quad (4.38)$$

En substituant (4.38) dans (4.34) nous obtenons l'équation suivante:

$$\varepsilon\psi_1(\varepsilon) - i = \Delta_1\psi_1(\varepsilon) + \frac{V_{12}V_{21}}{\varepsilon - \sum_k [V_{2k}V_{k2}/(\varepsilon - \Delta_k + i\eta)]}\psi_1(\varepsilon). \quad (4.39)$$

La solution de cette équation algébrique est finalement:

$$\psi_1(\varepsilon) = i \left(\varepsilon - \Delta_1 - \frac{V_{12}V_{21}}{\varepsilon - \sum_k [V_{2k}V_{k2}/(\varepsilon - \Delta_k + i\eta)]} \right)^{-1}. \quad (4.40)$$

La méthode de calcul exact de $\psi_1(\varepsilon)$ implique la connaissance et la prise en compte de la structure interne de la bande $\{k\}$ et tous les éléments de matrice d'interaction V_{2k} . Si le problème se pose de manière formelle simple, sa résolution est compliquée et doit être réalisée pour chaque choix de paire ainsi que l'environnement de cette paire.

Une autre approche possible est la modélisation phénoménologique de la bande $\{k\}$. Plus précisément nous avons besoin d'interpréter la somme dans l'équation (4.40). Pour cela examinons un scénario possible pour la dynamique de population entre un état $|ns, (n+1)s\rangle$ et une bande d'états $\{|k\rangle\}$.

4.4.1 Fonction de Green

Nous avons déjà mentionné que dans le cas de l'interaction dipolaire, les atomes situés loin de la paire $A - B$ sont en faible interaction avec les atomes de cette paire mais peuvent néanmoins avoir un effet aussi important, vu leur grand nombre, que les atomes proches voisins de cette paire. Dans ce cas le système après avoir effectué la transition dans un état $|ns, (n+1)s\rangle$ se trouve dans une situation, où les atomes de paire $A - B$ sont en interaction avec tout un ensemble d'atomes dans l'état $|np\rangle$ constituant son environnement, sans qu'il existe de réelle préférence pour les proches voisins. Supposons dans ce cas que le système effectue d'abord une transition dans un état intermédiaire qui n'est pas un état énergétique propre de la bande, mais une superposition $|c\rangle$ des états de la bande. Nous pouvons donc construire cet état de la manière suivante:

$$|c\rangle = \sum_k \frac{V_{2k}}{\bar{V}} |k\rangle, \quad (4.41)$$

où \bar{V} est l'interaction moyenne dans l'ensemble des atomes de Rydberg. Il s'agit de la valeur moyenne sur toutes les distances inter-atomiques. Nous allons définir ce paramètre plus loin. On obtient pour la transformée de Fourier de la fonction d'onde $\psi_c(\varepsilon)$ l'expression:

$$\psi_c(\varepsilon) = \sum_k \frac{V_{2k}}{\bar{V}} \psi_k(\varepsilon). \quad (4.42)$$

En portant l'équation (4.37) dans cette expression nous pouvons écrire:

$$\bar{V} \psi_c(\varepsilon) = \sum_k \frac{V_{2k} V_{k2}}{\varepsilon - \Delta_k + i\eta} \psi_2(\varepsilon). \quad (4.43)$$

L'équation (4.35) peut être transformée à l'aide de cette dernière expression (4.43) et de l'équation (4.37). Elle prend la forme suivante:

$$\varepsilon\psi_2(\varepsilon) = V_{21}\psi_1(\varepsilon) + \bar{V}\psi_c(\varepsilon). \quad (4.44)$$

Après transformation de Fourier inverse on obtient:

$$i\hbar \dot{\Psi}_2(t) = V_{21}\Psi_1(t) + \bar{V}\Psi_c(t), \quad (4.45)$$

où le dernier terme du membre de droite décrit le flux de population de l'état $|c\rangle$ (superposition des états de la bande) vers l'état $|ns, n's\rangle$. Maintenant pour interpréter physiquement la somme présentée dans l'équation (4.40), nous écrivons à l'aide des équations(4.43) et (4.44), l'expression suivante:

$$\varepsilon\psi_2(\varepsilon) = V_{21}\psi_1(\varepsilon) + \sum_k \frac{V_{2k}V_{k2}}{\varepsilon - \Delta_k + i\eta}\psi_2(\varepsilon). \quad (4.46)$$

La somme dans la partie droite de cette expression peut être écrite de manière suivante:

$$\sum_k \frac{V_{2k}V_{k2}}{\varepsilon - \Delta_k + i\eta} = |\bar{V}|^2 \sum_k \frac{V_{2k}V_{k2}}{|\bar{V}|^2} \frac{1}{\varepsilon - \Delta_k + i\eta} = |\bar{V}|^2 G(\varepsilon). \quad (4.47)$$

A l'aide de cette dernière équation nous obtenons:

$$\varepsilon\psi_2(\varepsilon) = V_{21}\psi_1(\varepsilon) + |\bar{V}|^2 G(\varepsilon)\psi_2(\varepsilon). \quad (4.48)$$

Finalement après transformation de Fourier inverse l'équation de Schrödinger du système prend une forme suivante:

$$i\hbar \dot{\Psi}_1(t) = \Delta_1\Psi_1(t) + V_{12}\Psi_2(t), \quad (4.49)$$

$$i\hbar \dot{\Psi}_2(t) = V_{21}\Psi_1(t) + |\bar{V}|^2 \int_0^t G(t-t_1)\Psi_2(t_1) dt_1. \quad (4.50)$$

Cette forme révèle le sens physique du terme $G(t-t_1)$ à savoir l'amplitude de probabilité pour une seule excitation de retourner dans l'état $|c\rangle$ à l'instant t après avoir quitté cet état au moment du temps t_1 . Le deuxième terme du membre de droite d'équation (4.50) décrit le flux de population depuis la bande vers l'état $|2\rangle$ du système. On voit maintenant qu'une telle hypothèse de la dynamique de population permet de prendre en compte les retours de population depuis la bande vers l'état $|ns, n's\rangle$, autrement dit de prendre en compte le processus lorsque l'excitation retourne sur le centre actif. Examinons en détail la transformée de Fourier de cette probabilité:

$$G(\varepsilon) = G_{cc}(\varepsilon) = \frac{1}{|\bar{V}|^2} \sum_k \frac{V_{2k}V_{k2}}{\varepsilon - \Delta_k + i\eta}. \quad (4.51)$$

On remarque que $G(\varepsilon)$ est la projection de l'opérateur de Green $(\varepsilon - H)^{-1}$ sur la superposition des états de la bande (ou la transformation de Fourier de la fonction de Green à une seule particule de la bande $\{|k\rangle\}$, qui décrit la propagation d'excitation dans l'environnement d'une paire $A - B$). En utilisant la définition de l'état $|c\rangle$ (Eq. (4.41)) nous pouvons écrire¹:

$$G_{cc}(\varepsilon) = \left\langle c \left| \frac{1}{\varepsilon - H} \right| c \right\rangle = \frac{1}{|\bar{V}|^2} \sum_{k,k'} V_{2k}V_{2k'} \left\langle k \left| \frac{1}{\varepsilon - H} \right| k' \right\rangle. \quad (4.52)$$

La somme dans le membre de droite est:

$$\sum_{k,k'} V_{2k}V_{2k'} \left\langle k \left| \frac{1}{\varepsilon - H} \right| k' \right\rangle = \sum_{k,k'} V_{2k}V_{2k'} \frac{1}{\varepsilon - \Delta_k + i\eta} \delta_{kk'} \quad (4.53)$$

¹La fonction de Green à une seule particule dans une base d'états propres $|k\rangle$ et d'énergies propres Δ_k de Hamiltonien H est donnée par l'expression:

$$G_{kk}(\varepsilon) = \left\langle k \left| (\varepsilon - H)^{-1} \right| k \right\rangle = (\varepsilon - \Delta_k + i\eta)^{-1}.$$

$$= \sum_k |V_{2k}|^2 \frac{1}{\varepsilon - \Delta_k + i\eta},$$

et nous arrivons à la définition (4.51). Plus précisément $G_{cc}(\varepsilon)$ est la transformée de Fourier de la fonction de Green retardée, ce que l'on peut montrer en effectuant la transformation de Fourier inverse de l'équation (4.51):

$$\begin{aligned} G_{cc}(t) &= \frac{1}{2\pi} \sum_k \frac{V_{2k}V_{k2}}{|\bar{V}|^2} \int_{-\infty}^{\infty} e^{-i\varepsilon t} \frac{d\varepsilon}{\varepsilon - \Delta_k + i\eta} \\ &= \frac{1}{2\pi} \sum_k \frac{V_{2k}V_{k2}}{|\bar{V}|^2} \int_C e^{-i\varepsilon t} \frac{d\varepsilon}{\varepsilon - \Delta_k + i\eta}. \end{aligned} \quad (4.54)$$

L'intégrale dans la partie droite de cette expression est l'intégrale sur le lacet C constitué de l'axe réel et du demi-cercle dans le plan inférieur du plan complexe. Selon le théorème du résidu cette intégrale est $-2\pi i$ (car le lacet est parcouru dans le sens négatif) fois le résidu d'intégrant dans un pôle $\varepsilon = \Delta_k - i\eta$, d'où:

$$G_{cc}(t) = -i \sum_k \frac{|V_{2k}|^2}{|\bar{V}|^2} e^{-i\Delta_k t}. \quad (4.55)$$

Cette expression est équivalente à la définition de la fonction de Green retardée. Pour aller plus loin nous utilisons les résultats de l'analyse numérique de ce problème (voir § 4.2.2). Cette analyse numérique a montré, en particulier, que la distribution des positions en énergie des niveaux Δ_k dans une bande et la distribution des couplages V_{2k} des niveaux de cette bande avec le niveau isolé ($|2\rangle$) sont statistiquement indépendantes. Cette importante conclusion de l'analyse numérique permet de transformer les expressions (4.55) et (4.51) de la manière suivante. On peut emporter dans ce cas le terme $|V_{2k}/\bar{V}|^2$ en dehors du signe de sommation dans les équations (4.55) et (4.51), et le considérer égal à unité. Dans ce cas les expressions (4.55) et (4.51) deviennent:

$$G_{cc}(\varepsilon) = \sum_k \frac{1}{\varepsilon - \Delta_k + i\eta}, \quad (4.56)$$

$$G_{cc}(t) = -i \sum_k e^{-i\Delta_k t}, \quad (4.57)$$

et présentent alors la définition d'une fonction de Green retardée. Finalement l'analyse que nous avons effectué dans ce paragraphe conduit à l'expression recherchée pour l'amplitude de probabilité de l'état initial du système suivante:

$$\psi_1(\varepsilon) = i \left(\varepsilon - \Delta_1 - \frac{V_{12}V_{21}}{\varepsilon - |\bar{V}|^2 G(\varepsilon)} \right)^{-1}. \quad (4.58)$$

Cependant la fonction de Green $G_{cc}(t)$ de bande $\{|k\rangle\}$ et celle $G(\varepsilon) = G_{cc}(\varepsilon)$ restent inconnues dans le système étudié. Nous allons à partir des considérations physiques définir cette fonction de Green.

4.5 Diffusion d'excitation dans un gaz de Rydberg gelé

Du fait que l'ensemble des atomes qui constitue l'environnement de la paire d'atomes $A-B$, est constitué d'un grand nombre d'atomes, nous pouvons supposer que les positions spatiales des atomes de l'environnement sont distribuées de manière quasi-continue. Pour un tel système, il est légitime de faire la supposition suivante: toutes les distances relatives entre atomes sont représentées. En raison de la propagation des excitations qui s'effectue à travers le processus d'interaction dipôle-dipôle ($\sim R^{-3}$), nous pouvons dire, que nous traitons un quasi-continuum de canaux de propagation avec des amplitudes de probabilité de transition comparables. Cependant ce raisonnement logique ne permet pas de conclure quel est le caractère de cette propagation. Nous avons donc besoin d'une hypothèse concernant ce caractère. Rappelons que dans le système considéré la désexcitation non-exponentielle de l'état initial (ce qui a été confirmé par une simulation numérique, voir annexe E) et l'importance de prendre en considération les retours de population dans l'état initial sont les aspects essentiels. L'une des façons de prendre en compte ces deux

aspects consiste à une modélisation du processus de propagation des excitations par la diffusion. C'est à dire nous supposons ici que la propagation des excitations peut avoir un caractère de marche aléatoire et peut être modélisée comme une diffusion des excitations.

Pour aller plus loin nous allons identifier la fonction $G_{cc}(t)$ qui est reliée à la probabilité de trouver le système dans l'état $|c\rangle$, avec la probabilité de trouver une excitation sur le centre actif pour un problème de diffusion. On est alors amené à poser:

$$|G_{cc}(t)|^2 = W(t, d), \quad (4.59)$$

où $W(t, d)$ est la probabilité de trouver l'excitation "sur" le centre actif dans le cas de diffusion dans d dimensions. Nous allons la définir dans le paragraphe suivant. De cette relation nous obtenons immédiatement une expression pour la transformée de Fourier de la fonction de Green, que nous dénotons pour la suite $G(\varepsilon) = G_{cc}(\varepsilon)$:

$$G(\varepsilon) = e^{i\varphi} \int_0^{\infty} e^{i(\varepsilon+i\eta)t} [W(t, d)]^{1/2} dt, \quad (4.60)$$

où la facteur de phase reste à définir. En général la phase φ est dépendante du temps. Cependant pour simplifier nous considérerons ici cette phase indépendante du temps. Nous utilisons alors la relation entre la densité d'états dans une bande et la partie imaginaire de la fonction de Green. La partie imaginaire de la fonction de Green retardée prise avec le signe négatif est proportionnelle à la densité d'états dans une bande $g(\varepsilon)$ et a une valeur positive pour toutes les ε ⁽²⁾:

$$g(\varepsilon) = \sum_k \delta(\varepsilon - \Delta_k) = -\frac{1}{\pi} \text{Im} \sum_k G_{kk}(\varepsilon) \geq 0. \quad (4.61)$$

²Cette expression est obtenue en utilisant la relation:

$$\frac{1}{x + i\eta} = \mathcal{P} \frac{1}{x} - i\pi\delta(x),$$

ou \mathcal{P} dénote la partie principale.

Nous allons voir plus loin que pour remplir cette condition (4.61) la phase φ dans l'équation (4.60) doit être choisie égale à $-\pi/2$. Avant d'aborder le problème de la diffusion, faisons quelques remarques sur la dimension de la diffusion.

4.5.1 Dimension de la diffusion

Pour définir les dimensions possibles pour le processus de diffusion dans le système considéré rappelons, que nous avons deux types d'excitations: ns et $n's$; donc deux types d'excitation peuvent diffuser. Le problème de la diffusion est ici complexe. En effet il existe plusieurs types d'états $np_{3/2}$: $m = \pm 1/2$ et $m = \pm 3/2$. De même on doit tenir compte des états $m = \pm 1/2$ des états $ns_{1/2}$ et $(n+1)s_{1/2}$. De plus selon la distribution spatiale des atomes de l'environnement de la paire d'atomes $A - B$ chacune de ces excitations ns et $n's$ peut diffuser dans une dimension ($d = 1$), deux dimensions (plan ou une courbe quelconque dans deux dimensions, $d = 2$) ou trois dimensions ($d = 3$). La dimension de la diffusion peut également être fractale. Comme nous l'avons dit il existe deux excitations, qui peuvent diffuser de manière plus ou moins corrélée. Dans la cas d'une diffusion de ces deux excitations totalement corrélée la dimension est équivalente à celle de la diffusion d'une seule excitation, et est donc comprise entre 1 et 3. Si par contre les excitations diffusent indépendamment, chacune dans une dimension entre 1 et 3, nous obtenons les dimensions: $d = 1 \times 1$ (équivalent $d = 2$), $d = 1 \times 2$ (équivalent $d = 3$), jusqu'à $d = 3 \times 3$ (équivalent $d = 6$). A cela il faut ajouter encore toutes les combinaisons des dimensions fractales et entières. Nous arrivons finalement à un spectre des dimensions compris entre $d = 1$ et $d = 6$.

4.5.2 Amplitude de probabilité de présence sur un centre actif dans le cas d'une diffusion d'excitation

Pour la suite considérons les excitations ns et $n's$ (les état $|ns\rangle$, $|(n+1)s\rangle$ de la paire) comme des quasi-particules. Supposons qu'à l'instant $t = 0$ l'excitation a été créée à

l'origine $r = 0$ (c'est à dire au centre actif ou paire d'atomes $A - B$). Alors dans le cas d'une diffusion dans d dimensions la probabilité de trouver l'excitation à l'instant t à une distance comprise entre r_d et $r_d + dr_d$ de l'origine s'écrit³:

$$w(r_d, t) dr_d = \frac{dv_d}{[4\pi Dt]^{d/2}} \exp\left[-\frac{r_d^2}{4Dt}\right], \quad (4.62)$$

où D est le coefficient de diffusion, r_d est une distance en d dimensions, dv_d est l'élément de volume en d dimensions. En dimension d le volume d'une sphère de rayon r_d est égal à⁴:

$$v_d = \frac{(r_d \sqrt{\pi})^d}{\Gamma(d/2 + 1)}, \quad (4.63)$$

où Γ est la fonction gamma d'Euler. La probabilité de trouver une excitation "sur" le centre actif à l'instant t après la création de celle-ci à l'instant $t = 0$ est donnée dans ce cas par l'intégrale:

$$W(a, t) = \int_0^a w(r, t) dr, \quad (4.64)$$

où a est le rayon du volume occupé par un centre actif et il est de même ordre de grandeur que la moitié de la distance inter-atomique des atomes de la paire: $a \simeq R_{AB}/2$.

Remarque: bien que nous remplaçons la probabilité $|G_{cc}(t)|^2$ qui est la probabilité de trouver le système dans une superposition des états d'une bande à l'instant t par $W(a, t)$ - la probabilité de trouver une excitation dans le volume occupé par une paire d'atomes $A - B$, il faut noter que cet état $|c\rangle$ ne correspond pas à une réalisation spatiale quelconque des positions d'excitations dans l'ensemble des atomes. Pour cette raison la taille a dans l'intégrale (4.64) doit être choisie comme la taille du centre actif.

En utilisant l'expression (4.62), la probabilité $W(a, t)$, où la taille géométrique a de centre actif est arbitraire⁵, s'écrit:

³C'est une simple généralisation de solution d'équation de diffusion dans trois dimensions (voir par exemple [70] §§ 50-51, 57-59).

⁴Voir par exemple la référence [71], les paragraphes (25-17) et (29-5).

⁵Dans un cas d'un système réel les paires d'atomes avec des différentes distances inter-atomiques, non

$$W(a, t) = \frac{d\pi^{d/2}}{\Gamma(d/2 + 1) [4\pi Dt]^{d/2}} \int_0^a \exp\left[-\frac{r_d^2}{4Dt}\right] r^{d-1} dr. \quad (4.65)$$

Ici nous avons utilisé l'équation (4.63) pour l'élément de volume en d dimensions, soit l'expression:

$$dv = d \frac{r^{d-1} \pi^{d/2}}{\Gamma(d/2 + 1)}. \quad (4.66)$$

Après le changement de variable $r^2 = u$, l'expression (4.65) prend une forme suivante:

$$W(a, t) = \frac{d/2}{\Gamma(d/2 + 1) [4Dt]^{d/2}} \int_0^{a^2} \exp\left[-\frac{u}{4Dt}\right] u^{d/2-1} du. \quad (4.67)$$

En utilisant le deuxième changement de variable $u/4Dt = u'$ nous arrivons à l'expression:

$$W(a, t) = \frac{d/2}{\Gamma(d/2 + 1)} \int_0^{a^2/4Dt} e^{-u'} (u')^{d/2-1} du'. \quad (4.68)$$

L'intégrale dans la partie droite de cette expression est la définition de la fonction gamma incomplète γ de variable $a^2/4Dt$ ([72], [73]):

$$W(a, t) = \frac{d/2}{\Gamma(d/2 + 1)} \gamma\left(d/2, \frac{a^2}{4Dt}\right). \quad (4.69)$$

La suite de ce calcul, plus précisément la recherche de l'expression pour l'amplitude de probabilité $[W(a, t)]^{1/2}$ est relativement technique et elle est exposée dans l'annexe B. On montre que l'amplitude de probabilité $[W(\tau)]^{1/2}$ dans le cas de la variable $\tau = 4Dt/a^2$ peut être écrit sous la forme:

$$[W(\tau)]^{1/2} = \left[\frac{1}{\Gamma(d/2)} \gamma\left(d/2, \frac{1}{\tau}\right) \right]^{1/2} = \frac{1}{\Gamma(d/4)} \gamma\left(d/4, \frac{\delta}{\tau}\right) + f(d, \tau), \quad (4.70)$$

où le choix du paramètre δ donné ci-dessous (4.74) permet de réduire l'excès à une

seulement infiniment petites, peuvent participer au processus de création de couples d'excitations.

fonction bornée $f(d, \tau)$ qui remplit les conditions suivantes:

$$\max f(d=1, \tau) \ll \max f(d=2, \tau) \ll \dots \ll \max f(d=6, \tau), \quad (4.71)$$

$$\max f(d=6, \tau) < 2.5 \times 10^{-2}. \quad (4.72)$$

Finalement l'expression pour l'amplitude de probabilité prend la forme suivante:

$$[W(\tau)]^{1/2} \simeq \frac{1}{\Gamma(d/4)} \gamma\left(d/4, \delta \frac{a^2}{4Dt}\right), \quad (4.73)$$

avec le coefficient δ égal à:

$$\delta = \left\{ \frac{[\Gamma(d/4 + 1)]^2}{\Gamma(d/2 + 1)} \right\}^{2/d}. \quad (4.74)$$

Dans la dernière expression de l'équation (4.73) nous avons utilisé l'expression de la fonction hypergéométrique en terme de la fonction de gamma incomplète et nous avons remplacé: $\tau = 4Dt/a^2$.

4.5.3 Coefficient de diffusion

Le coefficient de diffusion D qui apparaît dans ce modèle (Eq. (4.73)) reste inconnu. Son calcul est un problème en lui-même. Néanmoins remarquons que ce coefficient est toujours introduit en combinaison D/a^2 , qui a la dimension d'une fréquence. Plus précisément, nous définissons l'inverse du temps caractéristique de la diffusion sur une distance de l'ordre de la taille d'une paire $A - B$, ou le coefficient de diffusion d'échelle D_E :

$$D_E = \frac{D}{v_a^{2/d}}, \quad (4.75)$$

où v_a est le volume du centre actif en d dimensions avec le rayon a :

$$v_a = \frac{(a\sqrt{\pi})^d}{\Gamma(d/2 + 1)}. \quad (4.76)$$

D'autre part le coefficient de diffusion d'échelle D_E est lié à l'interaction moyenne dans l'ensemble des atomes de Rydberg de l'environnement de la paire $A - B$ constituant le centre actif considéré. En supposant que la distribution des atomes dans cet environnement est statistiquement homogène, nous obtenons pour l'interaction moyenne l'expression:

$$\bar{V} = \left\langle N \frac{\mu_{np}^{ns} \mu_{np}^{n's}}{R^3} \right\rangle_R = \int n_{Ryd} \frac{\mu_{np}^{ns} \mu_{np}^{n's}}{R^3} 4\pi R^2 dR, \quad (4.77)$$

où n_{Ryd} est la densité d'atomes de Rydberg dans l'ensemble et le symbole $\langle \dots \rangle_R$ dénote la valeur moyenne sur les distances inter-atomiques. Dans le cas général l'intégration doit être réalisée entre zéro et l'infini. Cette intégrale est divergente logarithmiquement en ces deux limites. Cette faible divergence permet d'estimer l'interaction moyenne en choisissant la borne inférieure égale à une distance inter-atomique dans une paire d'atomes $A - B$: R_{AB} . Pour la limite supérieure on prendra la taille maximale du nuage d'atomes excités dans un état de Rydberg: R_n (Ce choix pour la limite supérieure a été discuté dans le § 4.2.3 de ce chapitre). Dans ces conditions l'interaction moyenne égal à:

$$\bar{V} \simeq 4\pi n_{Ryd} \mu_{np}^{ns} \mu_{np}^{n's} \int_{R_{AB}}^{R_n} \frac{dR}{R} = 4\pi n_{Ryd} \mu_{np}^{ns} \mu_{np}^{n's} \ln \left(\frac{R_n}{R_{AB}} \right). \quad (4.78)$$

Remarque: le choix de ces limites n'est pas très crucial dans la mesure où elles agissent sous une forme logarithmique. Un traitement de la diffusion seule (ou dans le cas de la taille de centre actif infiniment petite) nous conduirait à prendre naturellement comme limite inférieure la taille de l'atome. C'est ce que nous avons considéré dans la référence [64]. Ces différents choix ne changent pas les résultats de manière significative.

Car le sens physique du paramètre D_E est la vitesse de départ de l'excitation du centre actif, pour l'estimation de ce paramètre on peut utiliser l'expression de la fréquence de Rabi moyenne dans l'ensemble d'atomes, qui est l'interaction moyenne divisée par la

constante de Planck:

$$D_E = \frac{\bar{V}}{\hbar} = \frac{4\pi}{\hbar} n_{Ryd} \mu_{np}^{ns} \mu_{np}^{n's} \ln \left(\frac{R_n}{R_{AB}} \right). \quad (4.79)$$

Il faut cependant noter que dans le cas réel la vitesse de désexcitation D_E peut dépendre de la densité d'états en résonance dans une bande, qui à son tour est liée au nombre d'atomes dans un ensemble. Ceci implique que le coefficient D_E peut dépendre non seulement de la densité d'atomes de Rydberg qui caractérise l'interaction moyenne, mais aussi du nombre d'atomes dans l'ensemble. Il est évident que le problème de définition de la vitesse de désexcitation D_E et par conséquent du coefficient de diffusion exige une étude complémentaire. Dans ce travail nous nous limitons à la définition du coefficient de diffusion d'échelle D_E donnée par l'expression (4.79).

4.5.4 Densité d'états dans une bande

Nous avons défini la fonction de Green retardée dans le cas de la diffusion d'excitation de la manière suivante:

$$G(t - t_1) = -i\theta(t - t_1) [W(a, t - t_1)]^{1/2}, \quad (4.80)$$

où le facteur $-i = e^{-i\pi/2}$ est choisi pour remplir la condition (4.61) et la fonction $\theta(t - t_1)$ est la fonction d'Heaviside:

$$\begin{aligned} \theta(t - t_1) &\equiv 1, & t - t_1 > 0 \\ &\equiv 0, & t - t_1 < 0. \end{aligned} \quad (4.81)$$

La densité d'états dans une bande est donnée par la partie imaginaire de la fonction de Green $G(\varepsilon)$, dont la transformée de Fourier est définie de la manière suivante:

$$G(\varepsilon) = \int_{-\infty}^{\infty} G(t) e^{i(\varepsilon+i\eta)t} dt = \int_0^{\infty} G(t) e^{i(\varepsilon+i\eta)t} dt, \quad (4.82)$$

où $\eta = +0$ est un infinitésimal positif. Dans la dernière expression (4.82) il a été utilisé la propriété de la fonction de Green retardée. En utilisant l'expression (4.73) pour l'amplitude de probabilité nous avons pour la transformée de Fourier de la fonction de Green l'expression suivante:

$$G(\varepsilon) = -i \int_0^{\infty} [W(d, t)]^{1/2} e^{i(\varepsilon+i\eta)t} dt = -i \frac{1}{\Gamma(d/4)} \int_0^{\infty} \gamma\left(d/4, \frac{\beta}{t}\right) e^{i(\varepsilon+i\eta)t} dt. \quad (4.83)$$

Dans cette expression le paramètre β est:

$$\beta = \frac{a^2}{4D} \delta. \quad (4.84)$$

La fonction gamma incomplète incluse dans l'intégrale dans la partie droite de cette expression peut être présentée de la manière suivante:

$$\gamma\left(d/4, \frac{\beta}{t}\right) = \Gamma(d/4) - \Gamma\left(d/4, \frac{\beta}{t}\right). \quad (4.85)$$

Donc l'expression pour la transformée de Fourier de la fonction de Green est une somme des deux intégrales:

$$\begin{aligned} G(\varepsilon) &= -i \left[\int_0^{\infty} e^{i(\varepsilon+i\eta)t} dt - \frac{1}{\Gamma(d/4)} \int_0^{\infty} \Gamma\left(d/4, \frac{\beta}{t}\right) e^{i(\varepsilon+i\eta)t} dt \right] \\ &= -i \left[I_1 - \frac{1}{\Gamma(d/4)} I_2 \right], \end{aligned} \quad (4.86)$$

où la première intégrale est:

$$I_1 = \int_0^{\infty} e^{i(\varepsilon+i\eta)t} dt = \frac{1}{\eta - i\varepsilon}. \quad (4.87)$$

La deuxième intégrale peut être calculée en utilisant une intégration par partie:

$$\begin{aligned} I_2 &= \int_0^{\infty} e^{i(\varepsilon+i\eta)t} \Gamma\left(\frac{d}{4}, \frac{\beta}{t}\right) dt \\ &= -\frac{e^{i(\varepsilon+i\eta)t}}{\eta - i\varepsilon} \Gamma\left(\frac{d}{4}, \frac{\beta}{t}\right) \Big|_{t=0}^{\infty} + \frac{1}{\eta - i\varepsilon} \int_0^{\infty} e^{i(\varepsilon+i\eta)t} \frac{d}{dt} \left[\Gamma\left(\frac{d}{4}, \frac{\beta}{t}\right) \right] dt. \end{aligned} \quad (4.88)$$

On peut voir facilement que l'expression

$$-\frac{e^{i(\varepsilon+i\eta)t}}{\eta - i\varepsilon} \Gamma\left(\frac{d}{4}, \frac{\beta}{t}\right) \Big|_{t=0}^{\infty} = 0 \quad (4.89)$$

est zéro sur les deux limites car nous avons $\Gamma(d/4, 0) = \Gamma(d/4)$ et $\Gamma(d/4, \infty) = 0$. Pour calculer la dérivée de la fonction gamma incomplète, nous utilisons la représentation intégrale de cette fonction. Egalement pour alléger le calcul on effectue le changement de variable $x = t/\beta$:

$$\Gamma\left(\frac{d}{4}, \frac{1}{x}\right) = \int_0^x e^{-1/y} y^{-1-d/4} dy. \quad (4.90)$$

Donc en utilisant la relation $\frac{d}{dt} = \beta^{-1} \frac{d}{dx}$ la dérivée de cette fonction est:

$$\beta^{-1} \frac{d}{dx} \Gamma\left(\frac{d}{4}, \frac{1}{x}\right) = \beta^{-1} \frac{d}{dx} \int_0^x e^{-1/y} y^{-1-d/4} dy = \beta^{-1} e^{-1/x} x^{-1-d/4}. \quad (4.91)$$

A l'aide de cette expression nous obtenons finalement l'expression suivante pour la deuxième intégrale I_2 dans l'expression (4.86):

$$I_2 = \frac{1}{\beta(\eta - i\varepsilon)} \int_0^\infty e^{i(\varepsilon+i\eta)t} e^{-\beta/t} \left(\frac{\beta}{t}\right)^{1+d/4} dt. \quad (4.92)$$

Pour calculer l'intégrale dans la partie droite de la dernière expression nous utilisons le changement de variable $u = (\eta - i\varepsilon)t$ et dénotons $z = \beta(\eta - i\varepsilon)$. Avec ces changements nous obtenons:

$$I_2 = \frac{1}{\beta(\eta - i\varepsilon)^2} \int_0^\infty e^{-u} e^{-z/u} \left(\frac{z}{u}\right)^{1+d/4} du = \beta z^{d/4-1} \int_0^\infty \frac{\exp(-u - \frac{z}{u})}{u^{d/4+1}} du. \quad (4.93)$$

L'intégrale dans la partie droite de dernière expression (4.93) est la définition de la fonction de Bessel K (voir par exemple [72], [73]):

$$\int_0^\infty \frac{\exp(-u - \frac{z}{u})}{u^{d/4+1}} du = 2z^{-d/8} K_{d/4}(2\sqrt{z}). \quad (4.94)$$

Donc finalement nous obtenons une expression suivante pour l'intégrale I_2 :

$$I_2 = \beta z^{d/4-1} 2z^{-d/8} K_{d/4}(2\sqrt{z}) = 2\beta z^{d/8-1} K_{d/4}(2\sqrt{z}). \quad (4.95)$$

En utilisant l'expression pour une variable $z = \beta(\eta - i\varepsilon)$ nous obtenons:

$$I_2 = 2\beta [(\eta - i\varepsilon)\beta]^{d/8-1} K_{d/4}\left(2\sqrt{(\eta - i\varepsilon)\beta}\right). \quad (4.96)$$

La transformée Fourier de la fonction de Green donnée par une équation (4.86) avec les équations (4.87) et (4.96) est:

$$G(\varepsilon) = -i \frac{\beta}{\Gamma(d/4)} \left[\frac{\Gamma(d/4)}{(\eta - i\varepsilon)\beta} - 2 [(\eta - i\varepsilon)\beta]^{d/8-1} K_{d/4}\left(2\sqrt{(\eta - i\varepsilon)\beta}\right) \right]. \quad (4.97)$$

Le paramètre β défini par l'expression (4.84) est lié avec le coefficient de diffusion d'échelle (Eq. (4.75)) de la manière suivante:

$$\beta = \frac{a^2}{4D} \delta = \frac{[\Gamma(d/2 + 1)]^{2/d} v_a^{2/d}}{4\pi D} \delta = \frac{[\Gamma(d/2 + 1)]^{2/d}}{4\pi D_E} \delta = \frac{[\Gamma(d/4 + 1)]^{4/d}}{4\pi D_E}. \quad (4.98)$$

Pour la suite, il est commode d'utiliser la variable sans dimension $\zeta = D_E^{-1}(\varepsilon + i\eta)$. Dans ce cas la combinaison $(\varepsilon + i\eta)\beta$ introduite comme la variable dans l'expression (4.97) prend une forme suivante:

$$(\varepsilon + i\eta)\beta = \zeta \frac{[\Gamma(d/4 + 1)]^{4/d}}{4\pi} = \zeta \lambda(d), \quad (4.99)$$

où le paramètre $\lambda(d)$:

$$\lambda(d) = \frac{[\Gamma(d/4 + 1)]^{4/d}}{4\pi} \quad (4.100)$$

ne dépend que de la dimension de la diffusion. Nous obtenons finalement pour la transformée de Fourier de la fonction de Green l'expression:

$$G(\zeta) = \frac{1}{\zeta D_E} \left[1 - \frac{2}{\Gamma(d/4)} (-i\zeta \lambda(d))^{d/8} K_{d/4} \left(2\sqrt{-i\zeta \lambda(d)} \right) \right]. \quad (4.101)$$

En utilisant la dernière équation pour la transformée de Fourier de la fonction de Green (4.101), on obtient une expression pour la densité d'états dans une bande $g(\zeta)$ de variable sans dimension $\zeta = \varepsilon/D_E$:

$$g(\zeta) = -\frac{1}{\pi} \text{Im} G(\zeta). \quad (4.102)$$

La figure 4-4 présente la partie réelle et la partie imaginaire de la fonction de Green (4.101) et la densité d'états dans une bande (4-4 (c)) pour différentes dimensions de diffusion.

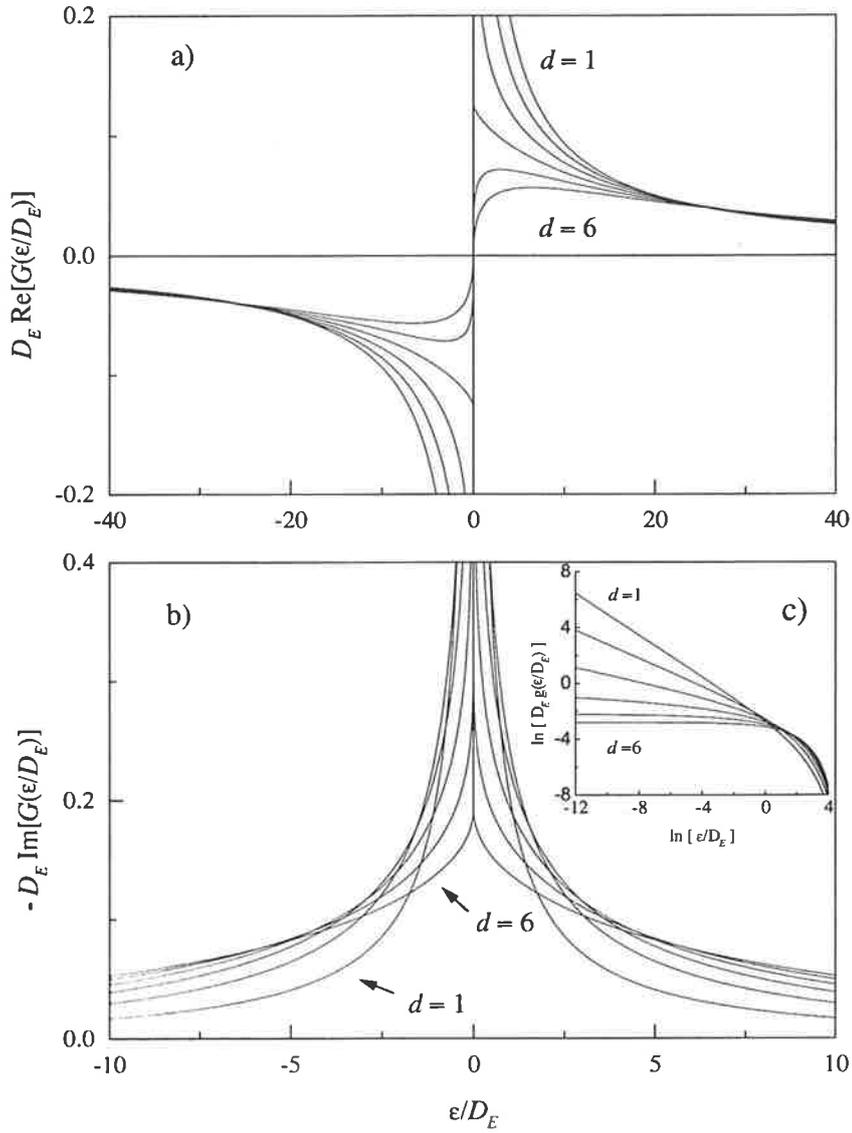


Figure 4-4: Partie réelle a) et partie imaginaire b) de la fonction de Green (4.102). La densité d'états dans une bande en échelle double logarithmique c).

4.6 Approximation aux temps grands

Pour trouver l'expression pour le nombre de paires créées par le centre actif (Eq. (4.30)) nous avons besoin de la transformée de Fourier de la probabilité $\rho_1(\varepsilon)$ de l'état initial du système. En utilisant l'expression (4.58) et la définition (4.18) nous écrivons la transformée de Fourier inverse de l'amplitude de probabilité de l'état initial comme:

$$\Psi_1(t) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} e^{-i(\varepsilon+i\eta)t} \left(\varepsilon - \Delta_1 - \frac{V_{12}V_{21}}{\varepsilon - |\bar{V}|^2 G(\varepsilon)} \right)^{-1} d\varepsilon. \quad (4.103)$$

Pour la fonction d'onde conjuguée nous obtenons respectivement l'expression suivante:

$$\Psi_1^*(t) = \frac{1}{2\pi} \left[\int_{-\infty}^{\infty} e^{-i(\varepsilon+i\eta)t} \left(\varepsilon - \Delta_1 - \frac{V_{12}V_{21}}{\varepsilon - |\bar{V}|^2 G(\varepsilon)} \right)^{-1} d\varepsilon \right]^*. \quad (4.104)$$

Dans ce cas la transformée de Fourier de probabilité $\rho_1(\varepsilon)$ peut être écrite de la manière suivante:

$$\rho_1(\xi) = \int_0^{\infty} e^{i(\xi+i\delta)t} \Psi_1(t) \Psi_1^*(t) dt. \quad (4.105)$$

Après la substitution des équations (4.103) et (4.104) dans cette dernière expression nous obtenons:

$$\begin{aligned} \rho_1(\xi) &= \frac{1}{4\pi^2} \int_0^{\infty} dt e^{i(\xi+i\delta)t} \\ &\times \int_{-\infty}^{\infty} e^{-i(\varepsilon+i\eta)t} \left(\varepsilon - \Delta_1 - \frac{V_{12}V_{21}}{\varepsilon - |\bar{V}|^2 G(\varepsilon)} \right)^{-1} d\varepsilon \\ &\times \left[\int_{-\infty}^{\infty} e^{-i(\varepsilon'+i\eta')t} \left(\varepsilon' - \Delta_1 - \frac{V_{12}V_{21}}{\varepsilon' - |\bar{V}|^2 G(\varepsilon')} \right)^{-1} d\varepsilon' \right]^*. \end{aligned} \quad (4.106)$$

Après quelques transformations, démontrées dans l'annexe C, cette expression prend la forme suivante:

$$\rho_1(\xi) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty+i0}^{\infty+i0} \left(\varepsilon - \Delta_1 - \frac{V_{12}V_{21}}{\varepsilon - |\bar{V}|^2 G(\varepsilon)} \right)^{-1} \quad (4.107)$$

$$\times \left[\left(\varepsilon - \xi - \Delta_1 - \frac{V_{12}V_{21}}{\varepsilon - \xi - |\bar{V}|^2 G(\varepsilon - \xi)} \right)^{-1} \right]^* d\varepsilon.$$

Cette expression pour la transformée de Fourier de la probabilité peut être simplifiée car nous sommes intéressés au comportement du système pour les temps grands. Dans ce cas l'expression asymptotique de $\rho_1(\xi)$ correspondant aux temps grands, s'obtient en utilisant dans l'équation (4.107) $\xi = 0$, ce qui correspond à une condition $t \rightarrow \infty$:

$$\rho_1(\xi = 0) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty+i0}^{+\infty+i0} \left(\left| \varepsilon - \Delta_1 - \frac{V_{12}V_{21}}{\varepsilon - |\bar{V}|^2 G(\varepsilon)} \right|^2 \right)^{-1} d\varepsilon. \quad (4.108)$$

Cette expression est tout simplement une des formes de l'égalité de Parseval:

$$\int_0^{\infty} |\Psi_1(t)|^2 dt = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} |\psi_1(\varepsilon)|^2 d\varepsilon. \quad (4.109)$$

Donc finalement l'expression asymptotique pour le nombre total de couples d'excitations créés par un centre actif dans le cas des grands temps peut être obtenue en remplaçant $\rho_1(\xi)$ par $\rho_1(\xi = 0)$ et prend une forme suivante:

$$N(t) \simeq \frac{1}{2\pi\rho_1(\xi = 0)} \int_{-\infty}^{\infty} e^{-i(\xi+i\delta)t} \frac{1}{(i\xi)^2} d\xi = \frac{t}{\rho_1(\xi = 0)}. \quad (4.110)$$

Finalement le nombre d'excitations créées par un centre actif à l'instant t , en fonction du désaccord avec la résonance Δ_1 est donné par l'expression:

$$N(t, \Delta_1) \simeq \frac{t}{T(0, \Delta_1)}, \quad (4.111)$$

et en utilisant l'expression (4.108) pour la probabilité $\rho_1(\xi = 0)$ nous obtenons:

$$T(0, \Delta_1) = \rho_1(\xi = 0) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty+i0}^{\infty+i0} \left(\left| \varepsilon - \Delta_1 - \frac{V_{12}V_{21}}{\varepsilon - |\bar{V}|^2 G(\varepsilon)} \right|^2 \right)^{-1} d\varepsilon. \quad (4.112)$$

Ce paramètre $T(0, \Delta_1)$ dépendant du désaccord avec la résonance et de la densité des atomes (l'interaction moyenne dans un ensemble \bar{V} est proportionnelle à la densité d'atomes) peut être compris comme le temps de vie de l'état initial du système $|np, np\rangle$.

4.7 Expressions asymptotiques pour la fonction de Green

Dans l'expression asymptotique pour le nombre de couples d'excitations créés par le centre actif obtenue dans le paragraphe précédent (Eqs. (4.111) et (4.112)), il est commode d'utiliser la variable sans dimension $\zeta = \varepsilon/D_E$. En introduisant également les variables sans dimension $\delta_1 = \Delta_1/D_E$ et $v_{12}^2 = |V_{12}|^2/D_E^2$, nous obtenons l'expression pour le temps de vie de l'état initial:

$$T(0, \delta_1) = \frac{1}{2\pi D_E} \int_{-\infty+i0}^{\infty+i0} \left(\left| \zeta - \delta_1 - \frac{v_{12}^2}{\zeta - \tilde{G}(\zeta)} \right|^2 \right)^{-1} d\zeta, \quad (4.113)$$

où la fonction $\tilde{G}(\zeta)$ est donnée par l'expression suivante:

$$\tilde{G}(\zeta) = \zeta^{-1} \left[1 - \frac{2}{\Gamma(d/4)} (-i\zeta\lambda(d))^{d/8} K_{d/4} \left(2\sqrt{-i\zeta\lambda(d)} \right) \right], \quad (4.114)$$

avec le paramètre $\lambda(d)$ donné par l'expression (4.100). Cette expression est obtenue en utilisant la définition du coefficient de diffusion d'échelle D_E (Eq. (4.79)) et en tenant compte de la constante de Planck \hbar que nous avons posé égale à l'unité en calculant l'expression pour la transformation de Fourier de l'amplitude de probabilité $\psi_1(\varepsilon)$ (voir § 4.4).

L'intégration de l'expression (4.113) avec une fonction $\tilde{G}(\zeta)$ donnée par l'équation (4.114) est difficile. Cependant on peut examiner le comportement du système étudié en considérant le cas asymptotique aux grands temps et aux grandes densités atomiques. Pour les dimensions de la diffusion $d \leq 4$ on peut obtenir des formules asymptotiques simples. Pour obtenir les expressions asymptotiques pour la fonction de Green, utilisons l'expression pour la probabilité de trouver l'excitation sur le centre actif (4.65). Remarquons que le terme exponentiel dans l'équation (4.62) et par conséquent dans (4.65) est important seulement dans le cas d'une grande taille de paire et pour les temps courts et de faibles densités ($D \sim n_{Ryd}$). Dans notre cas la taille de paire a est petite ($R_{AB} \ll \bar{R}$) et d'autre part nous sommes intéressés par le comportement du système seulement aux temps grands et aux densités d'atomes grandes ($Dt \rightarrow \infty$). Cette condition: $a^2/4Dt \ll 1$ nous permet d'écrire l'équation pour la probabilité de trouver l'excitation sur une paire $A - B$ suivante:

$$W(a, t) = \int_0^a \frac{dv_d}{[4\pi Dt]^{d/2}} \exp\left[-\frac{r_d^2}{4Dt}\right] dr \stackrel{Dt \rightarrow \infty}{\simeq} \int_0^a \frac{dv_d}{[4\pi Dt]^{d/2}} dr = \frac{v_a}{[4\pi Dt]^{d/2}}, \quad (4.115)$$

où a est le rayon de volume occupé par une paire et v_a est le volume de cette paire dans d dimensions. Cette probabilité est l'expression recherchée pour la probabilité de trouver les excitations à l'instant t sur le centre actif:

$$W(a, t) \simeq \frac{v_a}{[4\pi Dt]^{d/2}} = \frac{1}{[4\pi D_E t]^{d/2}}, \quad (4.116)$$

où nous avons utilisé la définition (4.75) pour le coefficient de diffusion d'échelle D_E .

Par conséquent nous obtenons pour la fonction de Green une expression suivante (voir Eq.(4.80)):

$$G(t - t_1) = -i [W(a, t - t_1)]^{1/2} = -\frac{i}{[4\pi D_E (t - t_1)]^{d/4}}. \quad (4.117)$$

Après la transformation de Fourier on obtient:

$$G(\varepsilon) = -\frac{i}{[4\pi D_E]^{d/4}} \int_0^\infty \frac{e^{i(\varepsilon+i\eta)t}}{t^{d/4}} dt = -\frac{i}{[4\pi D_E]^{d/4}} \int_0^\infty \frac{e^{-(\eta-i\varepsilon)t}}{t^{d/4}} dt. \quad (4.118)$$

En utilisant le changement de variable $z = (\eta - i\varepsilon)t$ cette expression prend une forme suivante:

$$G(\varepsilon) = -\frac{i}{[4\pi D_E]^{d/4}} (\eta - i\varepsilon)^{d/4-1} \int_0^\infty \frac{e^{-z}}{z^{d/4}} dz. \quad (4.119)$$

L'intégrale dans le membre de droite est la définition de la fonction Gamma d'Euler et pour $d < 4$ est:

$$G(\varepsilon) = -\frac{i}{[4\pi D_E]^{d/4}} (\eta - i\varepsilon)^{d/4-1} \Gamma(1 - d/4). \quad (4.120)$$

Ensuite utilisons une variable sans dimension $\zeta = (\varepsilon + i\eta)/D_E$ dans cette dernière expression. La transformée de Fourier de la fonction de Green devient:

$$G(\zeta) = -i \frac{\Gamma(1 - d/4)}{D_E [4\pi]^{d/4}} (-i\zeta)^{d/4-1}. \quad (4.121)$$

Considérons le cas de dimension $d = 4$. L'intégrale du membre de droite de l'équation (4.118) après une substitution $\tau = D_E t$ prend une forme suivante:

$$G(\varepsilon) = -i \int_0^\infty \frac{e^{-(\eta-i\varepsilon)t}}{4\pi D_E t} dt = -\frac{i}{4\pi D_E} \int_0^\infty \frac{e^{-z\tau}}{\tau} d\tau, \quad (4.122)$$

où $z = (\eta - i\varepsilon)/D_E$. Notons ensuite que pour estimer la fonction de Green qui correspond à l'évolution du système aux grands temps, supérieurs au temps caractéristique donné par

l'inverse du coefficient de diffusion d'échelle $t \gg D_E^{-1}$, la borne inférieure dans l'intégrale (4.122) peut être choisie $\tau = D_E t = 1$. Dans ce cas nous obtenons une expression:

$$G(\varepsilon) \sim -\frac{i}{4\pi D_E} \int_1^{\infty} \frac{e^{-z\tau}}{\tau} d\tau. \quad (4.123)$$

L'intégrale dans la partie droite de cette équation pour $\text{Re } z = (\eta - i\varepsilon)/D_E > 0$ est une définition de la fonction de l'intégrale exponentielle $\text{Ei}(z)$ [73]. Finalement la fonction de Green pour la dimension $d = 4$ devient:

$$G(\varepsilon) = -\frac{i}{4\pi D_E} \text{Ei}\left(\frac{\eta - i\varepsilon}{D_E}\right). \quad (4.124)$$

On peut simplifier cette expression en utilisant le développement asymptotique de la fonction d'intégrale exponentielle pour $\varepsilon/D_E \ll 1$ [72]. En utilisant également une variable sans dimension $\zeta = (\varepsilon + i\eta)/D_E$, nous arrivons à l'expression:

$$G(\zeta) = -\frac{i}{4\pi D_E} \text{Ei}(-i\zeta) \simeq -\frac{i}{4\pi D_E} [-\ln(-i\zeta) - \gamma]. \quad (4.125)$$

Ici $\gamma = 0.577\dots$ est la constante d'Euler. Notons que la condition de grand temps et de forte densité qui est plus précisément:

$$Dt \gg \frac{a^2}{4}, \quad (4.126)$$

a un sens physique simple. Utilisons le carré moyen de la distance parcourue par l'excitation pendant le temps t dans le cas d'une marche aléatoire dans d dimensions avec le coefficient de diffusion D , qui est $\overline{r^2} = 2dDt$. Dans ce cas la condition (4.126) prend une

⁶Le carré moyen de la distance parcourue par l'excitation pendant l'intervalle de temps t avec le coefficient de diffusion D dans d dimensions est l'intégrale:

$$\overline{r^2} = \int_0^{\infty} r^2 w(r_d, t) dr_d = \int_0^{\infty} r^2 \frac{1}{(4\pi Dt)^{d/2}} \exp\left(-\frac{r^2}{4Dt}\right) d \frac{\pi^{d/2}}{\Gamma(d/2 + 1)} r^{d-1} dr.$$

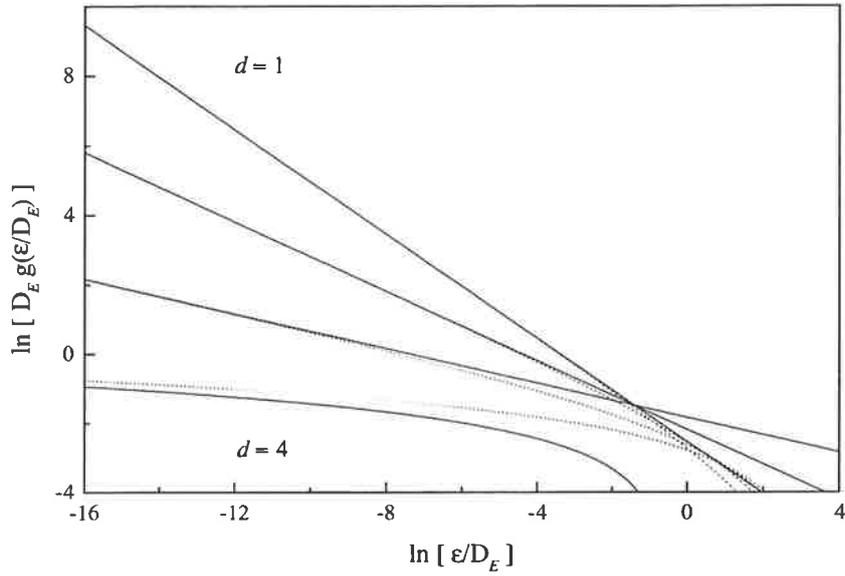


Figure 4-5: Comparaison des densités d'états obtenues à partir des fonctions asymptotiques (4.122), (4.126) (lignes continues) et des fonctions (4.102) (lignes pointillées) en échelle double logarithmique.

forme suivante ($a = R_{AB}/2$):

$$\bar{r}^2 \gg \frac{d}{8} R_{AB}^2. \quad (4.127)$$

La figure 4-5 montre la comparaison de la densité d'états dans une bande obtenue à partir des fonctions de Green asymptotiques avec celle donnée par les fonctions (4.101).

Avec le changement de variable $u = r^2$ cette expression devient:

$$\bar{r}^2 = \frac{d}{2\Gamma(d/2 + 1)} \frac{1}{(4Dt)^{d/2}} \int_0^\infty u^{d/2} \exp\left(-\frac{u}{4Dt}\right) du = 2dDt.$$

Dans la dernière intégrale nous avons utilisé la définition de la fonction gamma d'Euler.

4.8 Résultats et comparaison avec l'expérience

Le nombre de paires créées par un centre actif dans l'approximation des grands temps est proportionnel au temps et inversement proportionnel à la durée de vie de l'état initial:

$$N(t, \Delta_1) \simeq \frac{t}{T(0, \Delta_1)}. \quad (4.128)$$

La durée de vie de l'état initial dépend du coefficient de diffusion d'échelle D_E proportionnel à la densité d'atomes dans l'état de Rydberg np et du désaccord avec la résonance Δ_1 . Dans le cas des variables sans dimension $\zeta = \varepsilon/D_E$, $\delta_1 = \Delta_1/D_E$ et $v_{12}^2 = |V_{12}|^2/D_E^2$ l'expression pour la durée de vie d'état initial est:

$$T(0, \delta_1) = \frac{1}{2\pi D_E} \int_{-\infty+i0}^{\infty+i0} \left(\left| \zeta - \delta_1 - \frac{v_{12}^2}{\zeta - \tilde{G}(\zeta)} \right|^2 \right)^{-1} d\zeta, \quad (4.129)$$

où les fonctions asymptotiques $\tilde{G}(\zeta)$ dépendent de la dimension de diffusion d et sont données par les expressions (voir Eqs. (4.121), (4.125)):

$$\tilde{G}(\zeta)_{d<4} = -i \frac{\Gamma(1-d/4)}{[4\pi]^{d/4}} (-i\zeta)^{d/4-1}, \quad (4.130)$$

$$\tilde{G}(\zeta)_{d=4} = -\frac{i}{4\pi} [-\ln(-i\zeta) - \gamma]. \quad (4.131)$$

L'équation (4.128) détermine le nombre total de couples d'excitations créés par un centre actif, ou le profil de transfert de population $N(t, \Delta_1)$ en fonction du désaccord avec la résonance (le désaccord entre les états $|np, np\rangle$ et $|ns, (n+1)s\rangle$). Les raies de résonance théorique $N(t, \Delta_1)$ sont obtenues par l'intégration numérique de l'intégrale dans l'expression (4.129). Les figures 4-6 et 4-7 présentent l'évolution du nombre total de couples d'excitations créés par un centre actif en fonction du désaccord avec la résonance d'échelle Δ_1/V_{12} et en fonction de la densité caractérisée par la fraction D_E/V_{12} pour les dimensions de diffusion entre $d = 1$ et $d = 4$. Pour comparer ces résultats avec les résultats

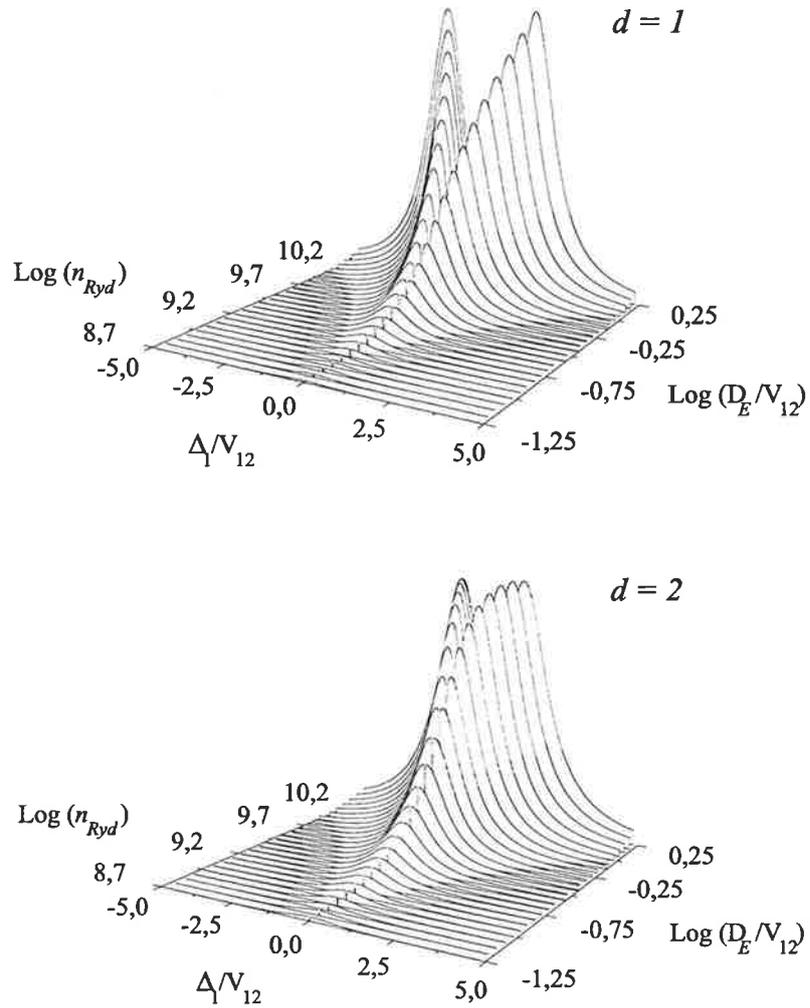


Figure 4-6: Les profils des résonances exprimés en fonction du logarithme de la densité d'échelle D_E/V_{12} et du logarithme de la densité atomique n_{Ryd} (voir texte) pour les dimensions de diffusion $d = 1$ et $d = 2$.

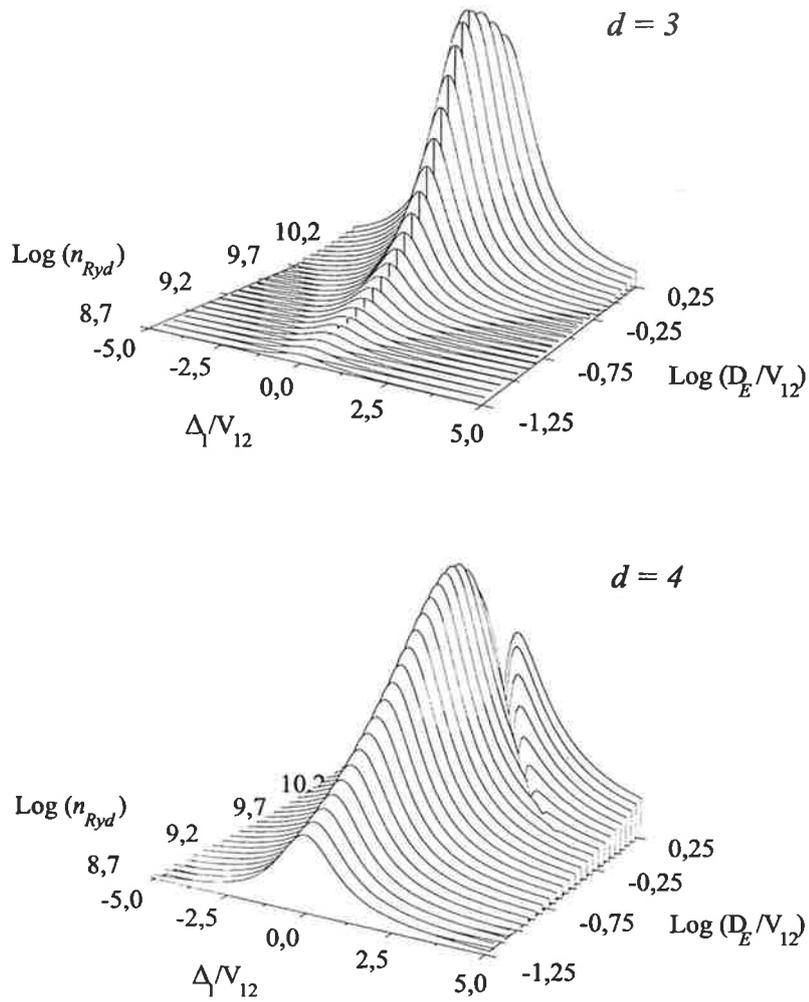


Figure 4-7: Les profils des résonances exprimés en fonction du logarithme de la densité d'échelle D_E/V_{12} et du logarithme de la densité atomique n_{Ryd} (voir texte) pour les dimensions de diffusion $d = 3$ et $d = 4$.

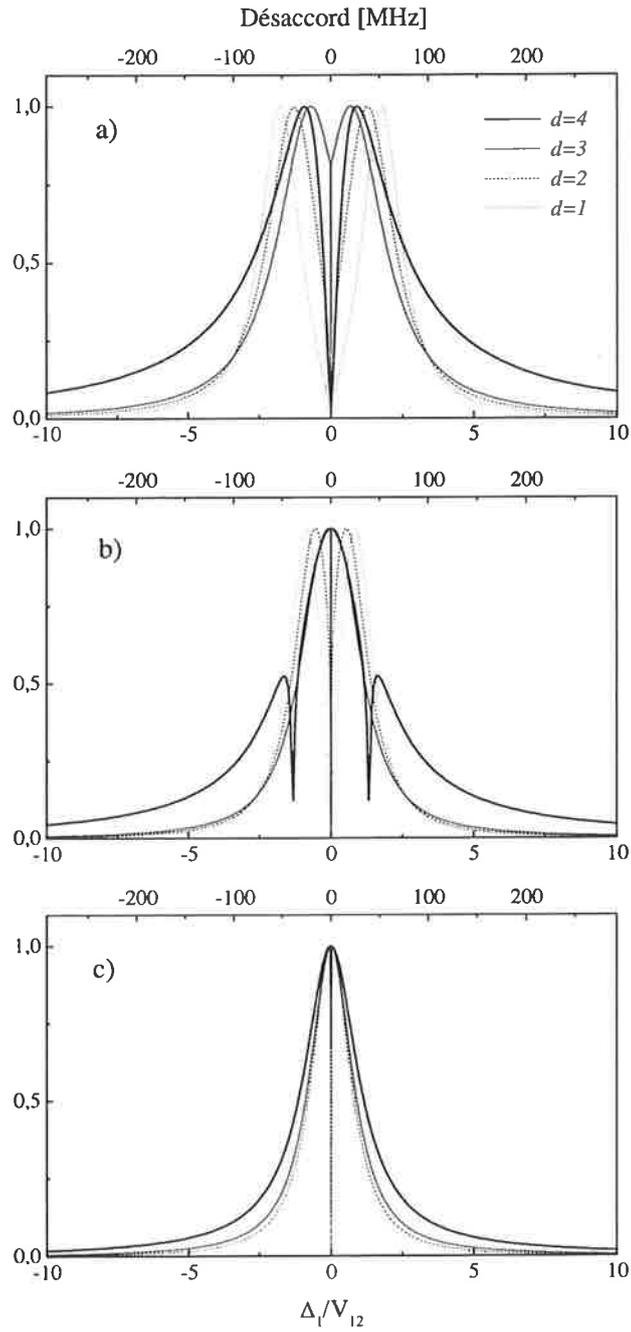


Figure 4-8: Comparaison des raies de résonance normalisées pour les densités d'échelles D_E/V_{12} : a) 2, b) 1.1 et c) 0.087 correspondant à des densités d'atomes de Rydberg n_{Ryd} pour la taille d'une paire $R_{AB} = 1.1 \mu m$: a) $1.8 \times 10^{10} \text{ cm}^{-3}$, b) $9.8 \times 10^9 \text{ cm}^{-3}$, c) $7.6 \times 10^8 \text{ cm}^{-3}$.

expérimentaux nous utilisons la définition du coefficient de diffusion d'échelle (4.79) ce qui donne (pour $\mu_{np}^{ns} = \mu_{np}^{n's} = \mu$):

$$\frac{D_E}{V_{12}} = \frac{4\pi}{V_{12}} n_{Ryd} \mu^2 \ln \left(\frac{R_n}{R_{AB}} \right), \quad (4.132)$$

où $V_{12} = \mu^2/R_{AB}^3$. En choisissant pour la taille du centre actif $R_{AB} = 1.1 \mu\text{m}$ et pour l'élément de matrice dipolaire la valeur $\mu = 200$ u. a. (voir tableau 3.4 du chapitre précédent) on obtient $V_{12} = \mu^2/R_{AB}^3 \simeq 29$ MHz. Notons que la fraction des paires d'atomes avec une distance inter-atomique choisie ($1.1 \mu\text{m}$) présente une valeur de l'ordre de $N \sim n_{Ryd} R_{AB}^3 \simeq 1.5\%$ pour une densité atomique de $n_{Ryd} = 10^{10} \text{ cm}^{-3}$ (rappelons que la distance moyenne entre proches voisins dans un ensemble avec une telle densité est d'environ $5 \mu\text{m}$). La deuxième échelle sur les figures 4-6 et 4-7 donne les valeurs de la densité d'atomes dans l'état de Rydberg np n_{Ryd} pour les paramètres choisis (pour la taille maximale du nuage d'atomes de Rydberg a été choisi $R_n = 1 \text{ mm}$ ce qui correspond dans l'expérience à la taille du piège suivant la direction du laser d'excitation Rydberg). Les figures montrent une claire dépendance des profils des résonances avec la dimension de diffusion d . On remarque également que le caractère de croissance des maximums de transfert de population en fonction de la densité atomique est différent pour les différentes dimensions de diffusion. La comparaison des profils des résonances normalisés pour les différentes dimensions de diffusion avec des densités d'atomes fixées est présentée sur la figure 4-8. Pour une taille de centre actif de $1.1 \mu\text{m}$ les largeurs des résonances sont en accord quantitatif avec celle obtenue expérimentalement. Les profils des résonances sont en accord qualitatif avec les raies expérimentales (en particulier pour une dimension de diffusion $d = 4$). Pour les faibles densités (figure 4-8 (c)) lorsque la diffusion est très faible ou absente les profils pour toutes les dimensions considérées sont des lorentziens. Dans le cas de grande densité les retours diffusifs d'excitations sur le centre actif commencent à jouer un rôle important. Ces retours conduisent à l'inhibition du processus de création de couples d'excitations pour les petits désaccords Δ_1 . Cet effet se manifeste par un

creux au centre des raies de résonances (figure 4-8 (a)) pour toutes les dimensions d . La démonstration des résultats obtenus en utilisant les fonctions de Green asymptotiques (Eqs. (4.121), (4.125)) permet de comprendre le comportement du système, mais il est important de noter que l'évolution des raies de résonances dans le cas d'utilisation des fonctions exactes pour la fonction de Green (4.101) peut être plus complexe.

4.9 Conclusion

L'ensemble d'atomes froids à "deux niveaux" en interaction mutuelle dipolaire en R^{-3} est présenté comme un système d'un niveau couplé avec une bande inhomogène avec les éléments de matrice d'interaction différents, dont les valeurs changent de plusieurs ordres de grandeur. La dynamique d'échange d'énergie dans un tel système montre le caractère très différent par rapport à une désexcitation exponentielle, caractéristique pour un système d'un niveau couplé à un continuum. Les retours de population dans l'état initial du système affectent sensiblement la dynamique d'échange d'énergie. Le taux de transfert de population dépend du désaccord avec la résonance. Cette dépendance devient complexe avec la croissance de la densité d'atomes: les raies des résonances pour les fortes densités présentent les profils complexes non lorentziens. Le modèle phénoménologique proposé ne reproduit pas en détail l'évolution des raies de résonance obtenues expérimentalement. Cependant ce modèle montre clairement le rôle important d'évolution non-exponentielle de la population dans l'état initial et des retours de population depuis une bande vers l'état initial du système.

Chapitre 5

Conclusion et perspectives

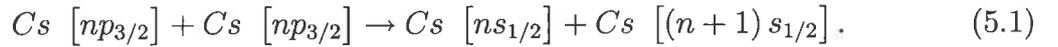
Dans ce mémoire, il a été présenté une étude expérimentale et théorique des effets à N corps dans un gaz d'atomes de Rydberg ultra-froids ou *gaz de Rydberg gelé* de césium. Du point de vue collisionnel on s'attend pour les atomes de Rydberg froids à des sections efficaces de plus de $1000 \mu\text{m}^2$ favorisant les effets à N corps. Cependant le comportement d'un gaz d'atomes de Rydberg à très basse température ne présente plus de caractère collisionnel car à l'échelle de la durée de vie des atomes de Rydberg ceux-ci peuvent être considérés comme pratiquement immobiles. Ils constituent le gaz de Rydberg gelé dont l'image physique s'apparente davantage à celle d'un solide, et même du solide amorphe du fait de la répartition stochastique des atomes de Rydberg dans le milieu. Le choix d'un tel système (atomes de Rydberg froids) a permis de créer une situation physique nouvelle: ensemble d'atomes quasi-immobiles couplés mutuellement par interaction dipôle-dipôle résonnante. On a démontré que l'évolution d'un tel système n'est pas simplement régie par des interactions binaires entre les atomes plus proches voisins conformément à un modèle d'un gaz d'atomes peu dense, mais que des phénomènes à N corps apparaissent. On a réalisé un système mésoscopique contenant de mille à un million d'atomes de Rydberg froids aux propriétés très originales.

Les principaux résultats du travail exposé dans cette thèse sont les suivants:

- i) Un dispositif initial de piège magnéto-optique de césium en cellule a été étendu au

dispositif du piège sombre (ou "dark-SPOT") dé pompé. Cette source d'atomes froids a été optimisée en terme de densité atomique. Il a été démontré que pour un piège sombre de césium réalisé à partir du piège magnéto-optique en cellule (dans des conditions de pression de la vapeur de césium modérée $\sim 10^{-9}$ Torr) le nombre d'atomes piégés avec une fraction d'atomes dans l'état sombre de $\sim 90\%$ atteint quelques 10^8 , ce qui représente une augmentation d'un facteur ~ 2 par rapport au nombre d'atomes dans un piège brillant. Le piège sombre n'a pas été utilisé pour les expériences avec les atomes de Rydberg mais dans les expériences de photoassociation où il permet de considérer les collisions entre atomes dans les niveaux hyperfins de plus basse énergie ($F = 3$ pour le césium).

ii) Expérimentalement a été étudié le processus d'échange d'énergie interne dans un ensemble d'atomes de Rydberg froids, obtenu après excitation par impulsion laser des atomes d'un piège magnéto-optique, donné par la réaction:



On a mis en évidence les propriétés spécifiques suivantes pour un gaz de Rydberg gelé:

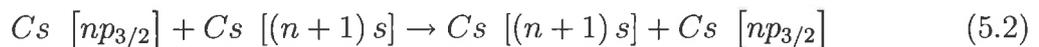
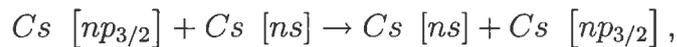
- La dépendance de la largeur des résonances avec la densité d'atomes de Rydberg a été étudiée pour les états initiaux $23p_{3/2}$ et $26p_{3/2}$. Il a été observé une croissance des largeurs de 25 – 30 MHz pour les faibles densités (ces valeurs sont proches à la limite de résolution dans nos expériences) à 180 – 200 MHz pour les densités maximales dans nos expériences (10^{10} atomes de Rydberg par cm^3). Ces largeurs observées sont beaucoup plus grandes que celles correspondant aux interactions typiques entre atomes de Rydberg plus proches voisins avec des distances inter-atomiques égales à la distance moyenne. Elles ne peuvent être simplement expliquées en considérant une évolution en terme d'interaction binaires et ce résultat correspond en effet à la mise en évidence d'effets à N corps dans un gaz de Rydberg gelé.

- La dépendance des profils de résonance avec la densité d'atomes de Rydberg a été analysée dans le cas d'état initial $23p_{3/2}$. Il a été montré, en particulier, que le profil lorentzien de la résonance pour les faibles densités évolue vers un profil présentant un

clivage en deux raies pour les densité maximales (10^{10} cm^{-3}). Ce résultat est interprété comme l'inhibition de la réaction (5.1) pour les faibles désaccords avec la résonance.

- L'évolution des largeurs des résonances a été également étudiée en fonction du temps d'évolution libre du système. Il a été démontré que pour les temps courts d'évolution libre et pour les faibles densités le comportement du système est similaire à celui obtenu dans le cas des collisions résonnantes, qui présente un élargissement des résonances pour des temps d'évolution libre très courts ("transform broadening").

iii) Pour comprendre le comportement à N corps de gaz de Rydberg gelé un modèle original phénoménologique de type réaction-diffusion d'excitation a été développé. Il simule le comportement d'un ensemble d'atomes de Rydberg immobiles. Dans ce modèle on a proposé une évolution du système "*gaz de Rydberg gelé*" suivant deux mécanismes. Le premier mécanisme correspond à un problème à deux corps comme celui considéré par la réaction (5.1) conduisant à la création "d'excitations élémentaires": les états de Rydberg ns et $(n + 1) s$. Pour comprendre les largeurs observées il est nécessaire de considérer des paires peu nombreuses d'atomes très proches (dues aux fluctuations de la densité) définies comme les centres actifs où la réaction (5.1) se produit préférentiellement. En supposant l'indépendance statistique des actes successifs de création des excitations (approximation markovienne) on a établi le formalisme de base pour une expression du nombre total de couples d'excitation (ns et $(n + 1) s$) créés par un centre actif. Le deuxième mécanisme correspond aux processus d'échange résonnant d'excitation:



entre les atomes de la paire considérée et les atomes constituant son environnement. Cet effet à N corps conduisant à la migration de ces "excitations" ns et $(n + 1) s$ à travers le "bain" des autres atomes de Rydberg représente l'évacuation des excitations ns et $(n + 1) s$ depuis le centre actif. Ce processus d'évacuation des excitations depuis

le centre actif à travers l'ensemble d'atomes "à deux niveaux" couplés par l'interaction dipôle-dipôle a été représenté formellement par un système formé d'un niveau couplé avec une bande inhomogène d'états par des éléments de matrice d'interaction pouvant varier de plusieurs ordres de grandeur. Dans un tel système les retours de population vers le niveau initial depuis la bande coexistent avec les départs vers la bande et ne peuvent pas être négligés. En effet, le système à considérer est celui d'une bande inhomogène, avec des statistiques indépendantes des positions en énergie des niveaux et des couplages des niveaux de cette bande avec un niveau isolé. Il a été montré que dans une telle situation le problème de la dynamique d'échange de population entre ce niveau et la bande se ramène à la détermination d'une fonction de Green décrivant la propagation des excitations dans l'ensemble des atomes immobiles.

Dans le cadre de ce modèle les résultats suivants ont été obtenus:

- On a modélisé de manière phénoménologique l'évacuation des excitations depuis le centre actif par le processus de diffusion d'excitations. De cette manière on tient compte du caractère non-exponentiel de la désexcitation d'un état initial vers la bande inhomogène d'états et des retours de population vers l'états initial depuis la bande. Dans le cadre de ce modèle on a donné des expressions pour la fonction de Green (dépendant de la dimension du processus de diffusion, considérée dans ce modèle entre 1 et 6) et on a déduit les expressions pour la densité d'états dans une bande.

- En utilisant les expressions asymptotiques pour les fonctions de Green, correspondant aux temps longs et aux grandes densités d'atomes de Rydberg, on a obtenu des profils de raie de résonance théoriques (pour des dimensions de diffusion entre 1 et 4). Une correspondance quantitative avec l'expérience a été obtenue pour les largeurs des résonances pour un choix d'une paire d'atomes constituant un centre actif avec une distance inter-atomique, qui revient à considérer que ces centres actifs correspondent à une fraction de l'ordre de 2 % des atomes.

- Il a été montré une correspondance théorie et expérience qualitative des profils des raies de résonances, où on obtient pour les fortes densités un clivage en deux pics de la

résonance que l'on interprète comme une inhibition de la réaction due au retour diffusif d'excitation vers le centre actif.

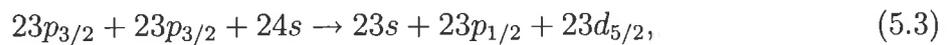
En conclusion, le rôle de la migration de l'excitation Rydberg s dans un bain d'excitation p est probablement un mécanisme important pour expliquer le phénomène à N corps dans un gaz de Rydberg gelé. Le modèle développé donne une explication possible et raisonnable des effets à N corps dans un gaz de Rydberg gelé. Des expériences futures permettront de la préciser.

En ce qui concerne le prolongement de ce travail différentes voies peuvent être explorées.

- Une mise en évidence directe de l'effet de migration des excitations à travers le milieu peut être envisagée pour tester l'effet de diffusion d'excitation. On peut aussi modifier cet effet de migration par l'addition d'atomes dans l'états $np_{1/2}$ par exemple (la migration des excitations peut également se produire par l'échange $s + p_{1/2} \rightarrow p_{1/2} + s$).

- L'utilisation d'un réseau ou une matrice optique pour créer un "gaz" de Rydberg gelé "ordonné" serait sans doute très intéressant dans la mesure où on se rapprocherait d'une structure régulière "cristalline" de gaz de Rydberg gelé.

- Le modèle de gaz de Rydberg gelé n'est qu'une approximation, relativement bien vérifiée pour le césium, et elle est moins bonne pour des atomes plus légers. Il serait très intéressant d'étudier un gaz des atomes Rydberg froids en régime de collisions où les collisions à plusieurs corps pourraient apparaître. Finalement un gaz de Rydberg gelé est un système très favorable pour étudier des réactions à trois, quatre corps ou davantage. On peut par exemple considérer la réaction:



qui correspond au passage d'un état $23p_{3/2}$ dans l'état $23d_{5/2}$ avec "absorption des deux photons virtuels" émis par les atomes dans les états $23p_{3/2}$ et $24s$ qui font une transition dans les états $23s$ et $23p_{1/2}$ respectivement. Cette étude est en cours. Elle devrait per-

mettre d'analyser si des effets à trois atomes sont possibles où si au contraire les effets à deux corps perturbés par le "bain" d'atomes de Rydberg prédominent.

- Récemment un aspect particulier du gaz de Rydberg gelé a été analysé [74]. Il s'agit de l'effet d'interaction dipôle-dipôle sur la dynamique des atomes froids. Plus précisément les interactions dipôle-dipôle résonnantes peuvent produire un effet visible à savoir une force attractive ou répulsive entre les atomes en interaction. On montre que ces effets sont sensibles pour des atomes à une distance de l'ordre de $1 \mu\text{m}$. Ce résultat confirme le rôle particulier joué par des paires d'atomes proches, mais montre aussi la complexité du comportement d'un gaz de Rydberg gelé. Les processus d'ionisation spontanée par avalanche jouent aussi un rôle pour des densités importantes.

- Le modèle théorique développé peut aussi être étendu à d'autres systèmes que le gaz de Rydberg gelé. Par exemple, un régime similaire peut être présent dans un ensemble d'atomes de Rydberg très excités dans le cas de la spectroscopie ZEKE [75] ou dans les expériences de piégeage d'atomes de Rydberg dans des pièges électrostatiques [76].

Annexe A

Calcul des fréquences de Rabi

Dans le cas général la fréquence de Rabi associée a une transition $F, m_F \rightarrow F', m'_F$ est:

$$\Omega_{F, m_F; F', m'_F} = -\frac{E}{\hbar} \langle 6s_{1/2}, F, m_F \| \mathbf{D} \mathbf{e}_q \| 6p_{3/2}, F', m'_F \rangle. \quad (\text{A.1})$$

En utilisant le théorème de Wigner-Eckart l'expression (A.1) s'écrite:

$$\Omega_{F, m_F; F', m'_F} = -\frac{E}{\hbar} (-1)^{F-m_F} \begin{pmatrix} F & 1 & F' \\ -m_F & q & m'_F \end{pmatrix} \langle 6s_{1/2}, F \| D \| 6p_{3/2}, F' \rangle. \quad (\text{A.2})$$

L'expression pour le carré de fréquence de Rabi dans ce cas est:

$$\begin{aligned} \Omega_{F, m_F; F', m'_F}^2 &= \frac{E^2}{\hbar^2} \begin{pmatrix} F & 1 & F' \\ -m_F & q & m'_F \end{pmatrix}^2 |\langle 6s_{1/2}, F \| D \| 6p_{3/2}, F' \rangle|^2 \\ &= \frac{E^2}{\hbar^2} \begin{pmatrix} F & 1 & F' \\ -m_F & q & m'_F \end{pmatrix}^2 \Omega_{F, F'}^2, \end{aligned} \quad (\text{A.3})$$

où la fréquence de Rabi au carré $\Omega_{F, F'}^2$ est donnée par une expression:

$$\Omega_{F, F'}^2 = \frac{E^2}{\hbar^2} (2F+1)(2F'+1) \left\{ \begin{matrix} 1/2 & F & 7/2 \\ F' & 3/2 & 1 \end{matrix} \right\}^2 |\langle 6s_{1/2} \| D \| 6p_{3/2} \rangle|^2. \quad (\text{A.4})$$

A l'aide de la dernière équation (A.4) on obtient pour le rapport des fréquences de Rabi au carré associées aux transitions entre les états hyperfins $F \rightarrow F'$ et $F'' \rightarrow F'''$ de même transition $6s_{1/2} \rightarrow 6p_{3/2}$ l'expression:

$$\frac{\Omega_{F,F'}^2}{\Omega_{F'',F'''}^2} = \frac{(2F+1)(2F'+1)}{(2F''+1)(2F''' +1)} \begin{Bmatrix} 1/2 & F & 7/2 \\ F' & 3/2 & 1 \end{Bmatrix}^2 \times \begin{Bmatrix} 1/2 & F'' & 7/2 \\ F''' & 3/2 & 1 \end{Bmatrix}^{-2}. \quad (\text{A.5})$$

Le terme du membre de droite de cette expression est le rapport des intensités des transitions entre ces états. L'intensité d'une transition dipolaire entre les états hyperfins F , F' de deux niveaux différents γJ et $\gamma' J'$ peut être présenté sous la forme [77]:

$$\begin{aligned} S(\gamma, J, I, F m_F; \gamma' J' I F' m'_F) &= \sum_{m_F, m'_F} |\langle \gamma J, F, m_F \| \mathbf{D} \mathbf{e}_q \| \gamma' J', F', m'_F \rangle|^2 \\ &= (2I+1) Q(IJF; IJ'F') S(\gamma J; \gamma' J'), \end{aligned} \quad (\text{A.6})$$

où le facteur $Q(IJF; IJ'F')$ est donné par une expression:

$$Q(IJF; IJ'F') = \frac{(2F+1)(2F'+1)}{2I+1} \begin{Bmatrix} J & F & I \\ F' & J' & 1 \end{Bmatrix}^2. \quad (\text{A.7})$$

Dans le cas du césium $I = 7/2$ et pour une transition entre les niveaux $6s_{1/2}$ et $6p_{3/2}$ nous obtenons:

$$S(6s_{1/2} 7/2 F; 6p_{3/2} 7/2 F') = (2F+1)(2F'+1) \begin{Bmatrix} 1/2 & F & 7/2 \\ F' & 3/2 & 1 \end{Bmatrix}^2 S(6s_{1/2}; 6p_{3/2}). \quad (\text{A.8})$$

En comparant cette expression avec l'expression (A.5) on obtient pour le rapport des fréquences de Rabi au carré entre les états hyperfins $F \rightarrow F'$ et $F'' \rightarrow F'''$:

$$\frac{\Omega_{F,F'}^2}{\Omega_{F'',F'''}^2} = \frac{S_{F,F'}}{S_{F'',F'''}}. \quad (\text{A.9})$$

Les intensités pour les transitions entre les niveaux hyperfins sont présentées dans le tableau (A.1). On trouve les méthodes de calcul des symboles $3j$ ainsi que des symboles $6j$ dans la référence [78].

F	F'	2	3	4	5
3		5/4	21/16	15/16	0
4		0	7/16	21/16	11/4

Tableau A.1: Les intensités des transitions entre les niveaux hyperfins.

Pour le rapport des fréquences de Rabi au carré correspondant aux transitions entre les composantes Zeeman à l'aide des équations (A.3) et (A.9) on obtient:

$$\begin{aligned} \frac{\Omega_{F,m_F;F',m'_F}^2}{\Omega_{F'',m_{F''};F''',m'''_F}^2} &= \left(\begin{array}{ccc} F & 1 & F' \\ -m_F & q & m'_F \end{array} \right)^2 \left(\begin{array}{ccc} F'' & 1 & F''' \\ -m''_F & q & m'''_F \end{array} \right)^{-2} \frac{\Omega_{F;F'}^2}{\Omega_{F'';F'''}^2} \quad (\text{A.10}) \\ &= \left(\begin{array}{ccc} F & 1 & F' \\ -m_F & q & m'_F \end{array} \right)^2 \left(\begin{array}{ccc} F'' & 1 & F''' \\ -m''_F & q & m'''_F \end{array} \right)^{-2} \frac{S_{F;F'}}{S_{F'';F'''}}. \end{aligned}$$

Dans certains cas il est commode d'utiliser les coefficients de Clebsch-Gordan qui sont liés avec les symboles $3j$ par la relation [78]:

$$C_{Fm_F1q}^{F'm'_F} = (-1)^{F-1+m'_F} \sqrt{2F'+1} \left(\begin{array}{ccc} F & 1 & F' \\ m_F & q & -m'_F \end{array} \right). \quad (\text{A.11})$$

Les coefficients de Clebsch-Gordan au carré pour les transitions entre les niveau hyperfins $F = 3 \rightarrow F' = 2$ et $F = 4 \rightarrow F' = 5$ sont présentés sur la figure A-1. Le coefficient de Clebsch-Gordan pour une transition de $F = 4, m_F = \pm 4$ vers $F' = 5, m'_F = \pm 5$ de la raie D_2 ($6s_{1/2} \rightarrow 6p_{3/2}$), celle pour laquelle est définie l'intensité de saturation, est unité.

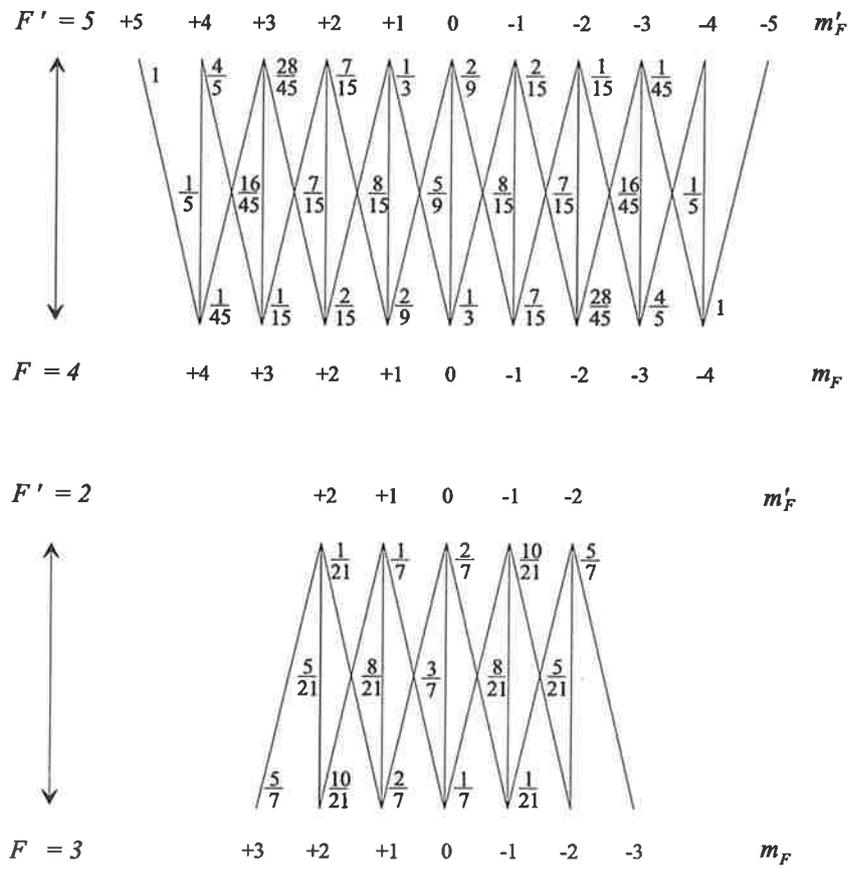


Figure A-1: Le schéma des transitions entre les niveaux hyperfins $F = 4 \rightarrow F' = 5$ et $F = 3 \rightarrow F' = 2$ de raie D_2 de césium. Les chiffres dénotent les coefficients de Clebsch-Gordan au carré.

Annexe B

Démonstration de l'expression (4.71)

Pour trouver le paramètre recherché, à savoir l'amplitude de probabilité $[W(a, t)]^{1/2}$, utilisons une représentation de la fonction de gamma incomplète (voir Eq. (4.69)) par la fonction hypergéométrique dégénérée ${}_1F_1$:

$$W(\tau) = \frac{d/2}{\Gamma(d/2 + 1)} \gamma\left(d/2, \frac{1}{\tau}\right) = \frac{1}{\Gamma(d/2 + 1)} \tau^{-d/2} {}_1F_1\left(d/2, d/2 + 1; -\frac{1}{\tau}\right), \quad (\text{B.1})$$

où nous avons posé la variable $a^2/4Dt = \tau^{-1}$ pour alléger. Dans ce cas l'amplitude de probabilité s'exprime par:

$$[W(\tau)]^{1/2} = \frac{1}{\sqrt{\Gamma(d/2 + 1)}} \tau^{-d/4} \left[{}_1F_1\left(d/2, d/2 + 1; -\frac{1}{\tau}\right) \right]^{1/2}. \quad (\text{B.2})$$

La fonction hypergéométrique dégénérée ${}_1F_1$ peut être présentée sous la forme d'une série:

$${}_1F_1\left(d/2, d/2 + 1, -\frac{1}{\tau}\right) = 1 - \frac{d}{d+2} \frac{1}{\tau} + \frac{d}{d+4} \frac{1}{2\tau^2} - \frac{d}{d+6} \frac{1}{3!\tau^3} + \dots \quad (\text{B.3})$$

De manière analogue nous obtenons:

$${}_1F_1\left(d/4, d/4 + 1, -\frac{\delta}{\tau}\right) = 1 - \frac{d}{d+4} \frac{\delta}{\tau} + \frac{d}{d+8} \frac{\delta^2}{2\tau^2} - \frac{d}{d+12} \frac{\delta^3}{3!\tau^3} + \dots \quad (\text{B.4})$$

En utilisant les règles de multiplication des séries de puissances nous obtenons pour le carré de la fonction donnée par une série (B.4) une expression dont les quatre premiers termes sont:

$$\begin{aligned} \left[{}_1F_1\left(d/4, d/4 + 1; -\frac{\delta}{\tau}\right)\right]^2 &= 1 - 2\frac{d}{d+4} \frac{\delta}{\tau} + \left[\frac{d^2}{(d+4)^2} + \frac{d}{d+8}\right] \frac{\delta^2}{\tau^2} \\ &\quad - \left[\frac{d}{(d+12)3} + \frac{d^2}{(d+4)(d+8)}\right] \frac{\delta^3}{\tau^3} + \dots \end{aligned} \quad (\text{B.5})$$

Après les transformation des coefficients de cette série nous arrivons à une expression:

$$\begin{aligned} \left[{}_1F_1\left(d/4, d/4 + 1; -\frac{\delta}{\tau}\right)\right]^2 &= 1 - 2\frac{d}{d+4} \frac{\delta}{\tau} + 2\frac{d^2(d+8) + 8d}{(d+4)^2(d+8)} \frac{\delta^2}{\tau^2} \\ &\quad - \frac{4}{3} \frac{d^2(d+12) + 8d}{(d+4)(d+8)(d+12)} \frac{\delta^3}{\tau^3} + \dots \end{aligned} \quad (\text{B.6})$$

En comparant cette dernière expression avec une expression (B.3) on peut voir que dans le cas de paramètre δ égal à:

$$\delta = \frac{1}{2} \frac{d+4}{d+2}, \quad (\text{B.7})$$

les termes linéaires de variable τ dans les séries (B.3) et (B.6) se coïncident. En plus le choix de paramètre δ donné par (B.7) permet d'écrire une équation:

$${}_1F_1\left(d/2, d/2 + 1; -\frac{1}{\tau}\right) = \left[{}_1F_1\left(d/4, d/4 + 1; -\frac{\delta}{\tau}\right)\right]^2 + g(d, \tau), \quad (\text{B.8})$$

où l'excès est une fonction bornée $g(d, \tau)$ donnée par la séries suivante:

$$g(d, \tau) = \frac{2d}{(d+2)^2(d+4)(d+8)} \frac{1}{\tau^2} - \frac{2d^2(3d^2 + 38d + 88)}{3(d+2)^3(d+6)(d+8)(d+12)} \frac{1}{\tau^3} + \dots \quad (\text{B.9})$$

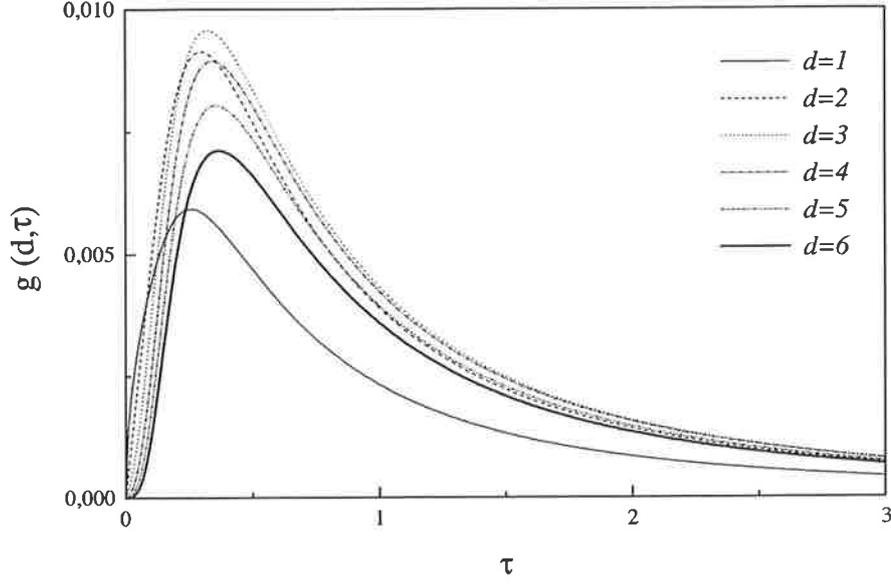


Figure B-1: Fonction $g(d, \tau)$ pour les différentes dimensions d .

On peut montrer que cette fonction remplit la condition suivante:

$$\max g(d, \tau) < 10^{-2}, \quad (\text{B.10})$$

pour toutes les dimensions d et nous obtenons alors l'expression approximative suivante:

$${}_1F_1\left(d/2, d/2 + 1; -\frac{1}{\tau}\right) \simeq \left[{}_1F_1\left(d/4, d/4 + 1; -\frac{\delta}{\tau}\right)\right]^2. \quad (\text{B.11})$$

Nous nous limitons ici à une démonstration graphique de cette condition (figure (B-1)). Il est facile de voir que pour les temps grands $\tau \gg 1$ cette fonction se réduit à une petite valeur de l'ordre de τ^{-2} :

$$g(d, \tau) = \frac{2d}{(d+2)^2} \frac{1}{(d+4)(d+8)\tau^2} - \frac{2d^2(3d^2 + 38d + 88)}{3(d+2)^3(d+6)(d+8)(d+12)} \frac{1}{\tau^3} + \dots. \quad (\text{B.12})$$

Cependant l'expression approximative (B.11) décrit "suffisamment bien" le comportement de l'amplitude de probabilité également pour les petits τ . Pour montrer cela écrivons une expression asymptotique pour les petits $\tau \ll 1$ de la fonction hypergéométrique ${}_1F_1$ [72], [73]:

$${}_1F_1\left(d/2, d/2 + 1, -\frac{1}{\tau}\right) \propto \Gamma(d/2 + 1) \tau^{d/2}. \quad (\text{B.13})$$

De même le carré de la fonction hypergéométrique de la partie droite de l'expression (B.11) est:

$$\left[{}_1F_1\left(d/4, d/4 + 1, -\frac{\delta'}{\tau}\right)\right]^2 \propto [\Gamma(d/4 + 1)]^2 \delta'^{-d/2} \tau^{d/2}. \quad (\text{B.14})$$

Pour le paramètre δ' égal à:

$$\delta' = \{[\Gamma(d/4 + 1)]^2 / \Gamma(d/2 + 1)\}^{2/d}, \quad (\text{B.15})$$

le comportement asymptotique pour $\tau \rightarrow 0$ de ces deux fonctions est identique. On peut montrer¹ que pour toutes les dimensions (d est une valeur positive) la différence $\delta' - \delta \ll 1$. En plus on peut montrer que dans l'expression pour l'amplitude de probabilité:

$$\begin{aligned} [W(\tau)]^{1/2} &= \frac{1}{\sqrt{\Gamma(d/2 + 1)}} \tau^{-d/4} \left[{}_1F_1\left(d/2, d/2 + 1; -\frac{1}{\tau}\right)\right]^{1/2} \\ &\simeq \frac{1}{\sqrt{\Gamma(d/2 + 1)}} \tau^{-d/4} {}_1F_1\left(d/4, d/4 + 1; -\frac{\delta'}{\tau}\right) + f(d, \tau) \end{aligned} \quad (\text{B.16})$$

un tel choix de paramètre $\delta' = \{[\Gamma(d/4 + 1)]^2 / \Gamma(d/2 + 1)\}^{2/d}$ permet de réduire l'excès $f(d, \tau)$ à une fonction bornée dont le maximum est plus petit que dans le cas de choix de paramètre donné par (B.7). La fonction $f(d, \tau)$ dans ce cas remplit les conditions

¹Par exemple pour $d = 2$

$$\delta = \frac{3}{4}, \quad \delta' = [\Gamma(3/2)]^2 = \frac{\pi}{4}.$$

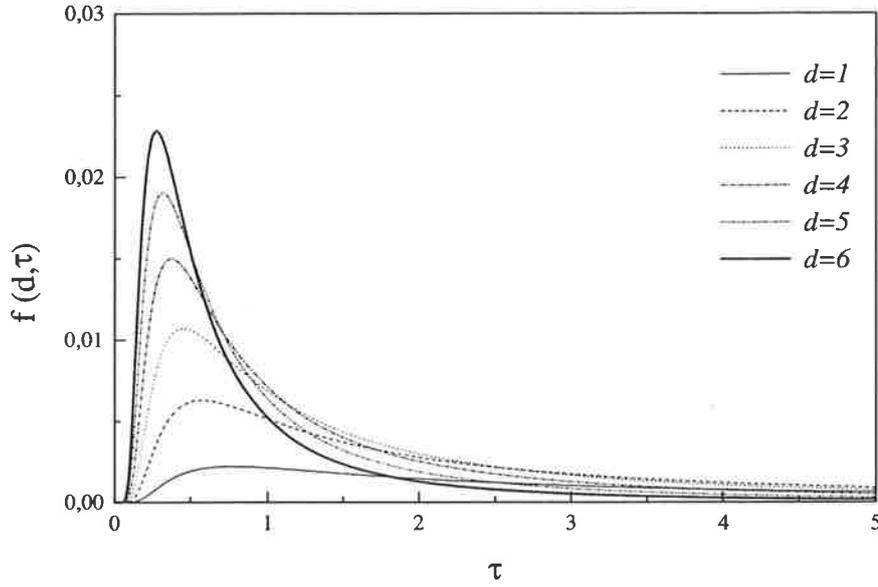


Figure B-2: Fonction $f(d, \tau)$ pour les différentes dimensions d .

suivantes:

$$\max f(d=1, \tau) \ll \max f(d=2, \tau) \ll \dots \ll \max f(d=6, \tau), \quad (\text{B.17})$$

$$\max f(d=6, \tau) < 2.5 \times 10^{-2}. \quad (\text{B.18})$$

La démonstration graphique de ces conditions est présentée sur la figure (B-2). Finalement l'expression approximative pour l'amplitude de probabilité prend la forme suivante:

$$\begin{aligned} [W(\tau)]^{1/2} &\simeq \frac{1}{\sqrt{\Gamma(d/2+1)}} \tau^{-d/4} {}_1F_1\left(d/4, d/4+1; -\frac{\delta}{\tau}\right) \\ &= \frac{1}{\Gamma(d/4)} \gamma\left(d/4, \delta \frac{a^2}{4Dt}\right), \end{aligned} \quad (\text{B.19})$$

où le coefficient δ est:

$$\delta = \left\{ \frac{[\Gamma(d/4+1)]^2}{\Gamma(d/2+1)} \right\}^{2/d}. \quad (\text{B.20})$$

Dans la dernière expression de l'équation (B.19) nous avons utilisé l'expression de la

fonction hypergéométrique en terme de la fonction de gamma incomplète et nous avons remplacé: $\tau = 4Dt/a^2$.

Annexe C

Démonstration de l'expression (4.108)

L'expression pour la transformée de Fourier de la probabilité $\rho_1(\xi)$ de l'état initial a une forme suivante:

$$\rho_1(\xi) = \frac{1}{4\pi^2} \int_0^{\infty} dt e^{i(\xi+i\delta)t} \int_{-\infty}^{\infty} e^{-i(\varepsilon+i\eta)t} \left(\varepsilon - \Delta_1 - \frac{V_{12}V_{21}}{\varepsilon - |\bar{V}|^2 G(\varepsilon)} \right)^{-1} d\varepsilon \quad (\text{C.1})$$

$$\times \left[\int_{-\infty}^{\infty} e^{-i(\varepsilon'+i\eta')t} \left(\varepsilon' - \Delta_1 - \frac{V_{12}V_{21}}{\varepsilon' - |\bar{V}|^2 G(\varepsilon')} \right)^{-1} d\varepsilon' \right]^*$$

avec l'infinitésimal positif $\delta > \eta + \eta'$. Après le changement de l'ordre d'intégration dans cette équation nous obtenons:

$$\rho_1(\xi) = \frac{1}{4\pi^2} \quad (\text{C.2})$$

$$\times \int_{-\infty}^{\infty} \left(\varepsilon - \Delta_1 - \frac{V_{12}V_{21}}{\varepsilon - |\bar{V}|^2 G(\varepsilon)} \right)^{-1} d\varepsilon \int_0^{\infty} dt e^{i(\xi+i\delta)t - i(\varepsilon+i\eta)t}$$

$$\times \left[\int_{-\infty}^{\infty} e^{-i(\varepsilon'+i\eta')t} \left(\varepsilon' - \Delta_1 - \frac{V_{12}V_{21}}{\varepsilon' - |\bar{V}|^2 G(\varepsilon')} \right)^{-1} d\varepsilon' \right]^*$$

D'abord calculons l'intégrale sur la variable t dans la partie droite de la dernière expression:

$$\begin{aligned}
I_1 &= \int_0^{\infty} dt e^{i(\xi+i\delta)t-i(\varepsilon+i\eta)t} \left[\int_{-\infty}^{\infty} e^{-i(\varepsilon'+i\eta')t} \left(\varepsilon' - \Delta_1 - \frac{V_{12}V_{21}}{\varepsilon' - |\bar{V}|^2 G(\varepsilon')} \right)^{-1} d\varepsilon' \right]^* \quad (\text{C.3}) \\
&= \left[\left(\int_0^{\infty} dt e^{i(\xi+i\delta)t-i(\varepsilon+i\eta)t} \right)^* \int_{-\infty}^{\infty} e^{-i(\varepsilon'+i\eta')t} \left(\varepsilon' - \Delta_1 - \frac{V_{12}V_{21}}{\varepsilon' - |\bar{V}|^2 G(\varepsilon')} \right)^{-1} d\varepsilon' \right]^*.
\end{aligned}$$

En utilisant la relation évidente:

$$\left(\int_0^{\infty} dt e^{i(\xi+i\delta)t-i(\varepsilon+i\eta)t} \right)^* = \int_0^{\infty} dt e^{-i(\xi-i\delta)t+i(\varepsilon-i\eta)t}, \quad (\text{C.4})$$

et une transformation $-i(\xi - i\delta)t + i(\varepsilon - i\eta)t = i(\varepsilon - \xi + i(\delta - \eta))t$ nous obtenons pour l'intégrale I_1 :

$$\begin{aligned}
I_1 &= \left[\int_0^{\infty} dt e^{i(\varepsilon-\xi+i(\delta-\eta))t} \int_{-\infty}^{\infty} e^{-i(\varepsilon'+i\eta')t} \left(\varepsilon' - \Delta_1 - \frac{V_{12}V_{21}}{\varepsilon' - |\bar{V}|^2 G(\varepsilon')} \right)^{-1} d\varepsilon' \right]^* \quad (\text{C.5}) \\
&= (I_2)^*.
\end{aligned}$$

L'intégrale dans la partie droite de cette expression I_2 après le changement de l'ordre d'intégration prend une forme suivante:

$$\begin{aligned}
I_2 &= \int_0^{\infty} dt e^{i(\varepsilon-\xi+i(\delta-\eta))t} \int_{-\infty}^{\infty} e^{-i(\varepsilon'+i\eta')t} \left(\varepsilon' - \Delta_1 - \frac{V_{12}V_{21}}{\varepsilon' - |\bar{V}|^2 G(\varepsilon')} \right)^{-1} d\varepsilon' \quad (\text{C.6}) \\
&= \int_{-\infty}^{\infty} \left(\varepsilon' - \Delta_1 - \frac{V_{12}V_{21}}{\varepsilon' - |\bar{V}|^2 G(\varepsilon')} \right)^{-1} d\varepsilon' \int_0^{\infty} dt e^{i(\varepsilon-\xi+i(\delta-\eta))t-i(\varepsilon'+i\eta')t}.
\end{aligned}$$

L'intégrale sur la variable t dans cette expression est:

$$\int_0^{\infty} dt e^{i(\varepsilon - \varepsilon' - \xi + i(\delta - \eta - \eta'))t} = \frac{i}{\varepsilon - \varepsilon' - \xi + i(\delta - \eta - \eta')}, \quad (\text{C.7})$$

et nous obtenons pour l'intégrale I_2 une expression:

$$I_2 = -i \int_C \left(\varepsilon' - \Delta_1 - \frac{V_{12}V_{21}}{\varepsilon' - |\bar{V}|^2 G(\varepsilon')} \right)^{-1} \frac{1}{\varepsilon' - (\varepsilon - \xi + i(\delta - \eta - \eta'))} d\varepsilon'. \quad (\text{C.8})$$

Dans la dernière expression nous avons remplacé l'intégration sur la variable ε' par l'intégration sur le lacet, ou le lacet C est constitué de l'axe réel et le demi-cercle dans le plan supérieur du plan complexe. Le pôle de fonction $[\varepsilon' - (\varepsilon - \xi + i(\delta - \eta - \eta'))]^{-1}$ se trouve dans le demi-plan supérieur car $\delta - \eta - \eta' > 0$. La fonction

$$f(\varepsilon') = \left[\varepsilon' - \Delta_1 - \frac{V_{12}V_{21}}{\varepsilon' - |\bar{V}|^2 G(\varepsilon')} \right]^{-1} \quad (\text{C.9})$$

a des singularités dans le demi-plan inférieur du plan complexe et elle est analytique dans le demi-plan supérieur. Donc l'intégral (C.8) sur le lacet C selon le théorème de résidu, est $2\pi i$ fois le résidu d'intégrant dans le pôle $\varepsilon' = \varepsilon - \xi + i(\delta - \eta - \eta')$:

$$I_2 = -i2\pi i f(\varepsilon - \xi + i(\delta - \eta - \eta')). \quad (\text{C.10})$$

En utilisant $i(\delta - \eta - \eta') = +i0$ pour simplifier nous obtenons finalement une expression suivante:

$$I_2 = -i2\pi i \left(\varepsilon - \xi + i0 - \Delta_1 - \frac{V_{12}V_{21}}{\varepsilon - \xi + i0 - \varepsilon' - \Delta_1 - |\bar{V}|^2 G(\varepsilon - \xi + i0)} \right)^{-1}, \quad (\text{C.11})$$

et respectivement:

$$I_1 = (I_2)^* = 2\pi \left[\left(\varepsilon - \xi + i0 - \Delta_1 - \frac{V_{12}V_{21}}{\varepsilon - \xi + i0 - |\bar{V}|^2 G(\varepsilon - \xi + i0)} \right)^{-1} \right]^* \quad (\text{C.12})$$

Après la substitution de cette dernière expression dans l'équation (C.2) nous obtenons finalement l'expression recherchée sous la forme suivante:

$$\begin{aligned} \rho_1(\xi) = & \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty+i0}^{\infty+i0} \left(\varepsilon - \Delta_1 - \frac{V_{12}V_{21}}{\varepsilon - |\bar{V}|^2 G(\varepsilon)} \right)^{-1} \\ & \times \left[\left(\varepsilon - \xi - \Delta_1 - \frac{V_{12}V_{21}}{\varepsilon - \xi - |\bar{V}|^2 G(\varepsilon - \xi)} \right)^{-1} \right]^* d\varepsilon. \end{aligned} \quad (\text{C.13})$$

Annexe D

Article ”*Many-Body Effects in a Frozen Rydberg Gas*”

Many-Body Effects in a Frozen Rydberg Gas

I. Mourachko, D. Comparat, F. de Tomasi, A. Fioretti, P. Nosbaum,* V. M. Akulin,[†] and P. Pillet

Laboratoire Aimé Cotton, CNRS II, Bât. 505, Campus d'Orsay, 91405 Orsay Cedex, France

(Received 4 August 1997)

We studied the properties of a cold ($\sim 100 \mu\text{K}$) and dense ($\sim 10^8\text{--}10^{10} \text{ cm}^{-3}$) atomic Rydberg Cs gas, and found that the observed widths and shapes of resonances in population transfers cannot be explained in the framework of a usual gas model. We propose a "frozen Rydberg gas" model, where the interplay between two-body and many-body phenomena affects in an unexpected way the width and the shape of spectral lines. [S0031-9007(97)04903-X]

PACS numbers: 32.80.Rm, 32.80.Pj, 34.60.+z

Recent demonstrations of Bose-Einstein condensation have pointed out the role of collisional processes in the evaporative cooling method [1–3]. Relatively dense cold atomic samples have revealed, in turn, a rich variety of new phenomena in atomic collision [4], and in particular a strong excitation exchange effect. Usually one expands the physical characteristics of a gas in the power series in density that corresponds to one-, two-, three-, etc., body phenomena. The excitation exchange is governed by the two-body interactions, whereas the many-body effects in sparse systems are usually considered as small. But does such a gas at low temperature and density remain a sparse system? In this Letter we show that the situation may change completely for an ensemble of ultracold atoms when the typical collision time considerably exceeds the time corresponding to the inverse of typical interaction energy between two neighboring atoms. In this regime the many-body phenomena play an equally important role. Observation of such phenomena becomes possible due to the recent development of a laser cooling technique, which brings new tools for atomic and molecular physics.

We report the first results of experiments performed with cold cesium atoms in Rydberg states along with a theoretical model and show how the interplay between two-body and many-body processes affects, in an unexpected way, the width and the shape of the resonances in the population transfer induced by the energy exchange. The fact that the excited Cs atoms obtained by pulsed laser irradiation are slow and are excited to high Rydberg states plays the crucial role: the large size, the large dipole moment, and the long lifetime of the Rydberg atoms allow one to reach experimental conditions where many-body phenomena become important.

The atomic sample contains $N_d \sim 10^8\text{--}10^{10}$ highly excited Cs atoms per cm^3 at a temperature $T \sim 100 \mu\text{K}$ in a chosen Rydberg p -state with the principal quantum number $n = 20\text{--}30$. The typical displacement $\Delta R = v\tau \sim 10\text{--}300 \text{ nm}$ of atoms moving at an average velocity $v \sim 10 \text{ cm/s}$ during the experiment time of $\tau \sim 0.1\text{--}3 \mu\text{s}$ is much less than the average distance $\bar{R} \sim (3/4\pi N_d)^{1/3} = 5\text{--}20 \mu\text{m}$ between neighboring atoms. It is of the same order of magnitude as the size of the Rydberg orbits $R_0 = 4n^2 \text{ a.u.} \sim 80 \text{ nm}$ (for $n \sim 20$), whereas the nuclear

de Broglie wavelength is about $\lambda_{dB} \sim 30 \text{ nm}$. It means that one can ignore completely the motion of atoms and consider the atomic ensemble as a "frozen Rydberg gas" [5].

We trace the number of atoms in s states created in the energy exchange process [7]

$$\text{Cs}_A[n p_{3/2}] + \text{Cs}_B[n p_{3/2}] \rightarrow \text{Cs}_A[ns] + \text{Cs}_B[(n+1)s], \quad (1)$$

when one of the atoms (A) makes a downward transition from the Rydberg state $|n p_{3/2}\rangle$ to a lower Rydberg state $|ns_{1/2}\rangle$, whereas the other atom (B) makes an upward transition $|n p_{3/2}\rangle \rightarrow |(n+1)s_{1/2}\rangle$. For each of the atoms it corresponds to an allowed dipole transition, and hence the typical interaction $V_{AB} = \mu_A \mu_B / R_{AB}^3$ depends on the matrix elements μ_A and μ_B of the dipole moment and the distance R_{AB} between the atoms. The reaction of Eq. (1) is tuned into resonance by a Stark shift of the $p_{3/2}$ state in the static electric field \mathcal{E} , as is shown in the level scheme in Fig. 1(a). Aside from the creation of ss' couple, that is, two s states in Eq. (1), the processes of excitation exchange with other atoms (C, D , etc.)

$$\begin{aligned} \text{Cs}_C[n p_{3/2}] + \text{Cs}_A[ns] &\rightarrow \text{Cs}_C[ns] + \text{Cs}_A[n p_{3/2}] \\ \text{Cs}_D[n p_{3/2}] + \text{Cs}_B[(n+1)s] &\rightarrow \text{Cs}_D[(n+1)s] \\ &+ \text{Cs}_B[n p_{3/2}] \end{aligned} \quad (2)$$

are also possible. They are always resonant and have the same order of magnitude as the process in Eq. (1) but do not create new ss' couples. They allow for the migration of s states over the "frozen" atoms. We therefore have to consider a novel quantum system of Rydberg atoms at rest, which evolves in the course of the energy exchange processes Eqs. (1) and (2). One can say in the spirit of the concept of quasiparticles that the ss' couples are created and that each of the s states independently moves over a media of a frozen Rydberg gas. This system resembles an amorphous glass, where the centers are randomly distributed over the sample.

The basic scheme of the experiment is as follows. The cold Cs atoms are produced in a vapor-loaded MOT cell [8] created at the intersection of three pairs of mutually orthogonal, counterpropagating $\sigma^+ - \sigma^-$ -laser

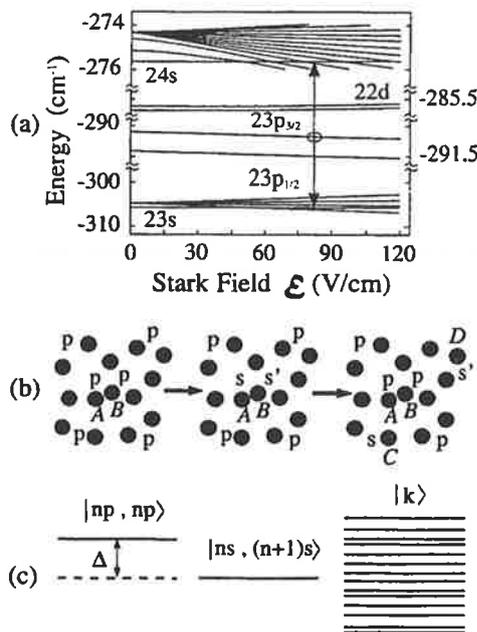


FIG. 1. Level diagram (a) for an isolated Cs atom in an electric field \mathcal{E} for the principal quantum number $n = 23$. Rydberg states s , p , and d are shown along with the adjacent Stark manifold. The avoided crossings of the levels and manifolds are located far enough from the resonances to exclude any influence (for details see Ref. [6]). The splitting of the $|m| = 1/2$ and $|m| = 3/2$ states of the $np_{3/2}$ level, which is of the order of 1.2 GHz, is not shown. Illustration (b) of the elementary act of excitation exchange process which includes creation of an ss' couple at a pair of closely spaced Rydberg atoms ($A + B$) and subsequent evacuation of these states to atoms C , D , etc. at longer distances, and the corresponding level scheme (c) for the pair ($A + B$) embedded in the system of other atoms (OA). We denote the eigenstate of OA projected to the Hilbert subspace of a single ss' couple by the symbol $|k\rangle$. Quantum transitions to this band models the diffusion of s states (compare to Ref. [11]).

beams (4 mW/cm^2), at the zero magnetic field point of anti-Helmholtz coils device. The residual pressure is 2×10^{-9} Torr. The cooling laser beams are split from a single mode laser beam (SDL 5412-H1, 100 mW, $\lambda \sim 852 \text{ nm}$) injection locked to a master diode laser. The master laser (SDL 5412-H1, 100 mW) is stabilized by optical feedback from an extended grating-ended cavity. Long-term stabilization is ensured by locking the laser frequency to a saturated absorption line in a cesium vapor cell. The laser frequency is tuned about 1.5 natural linewidths below the $6^2S_{1/2}(F = 4) \rightarrow 6^2P_{3/2}(F' = 5)$ transition. A repumping laser beam (SDL 5712-H1, 100 mW) tuned to the $6^2S_{1/2}(F = 3) \rightarrow 6^2P_{3/2}(F' = 4)$ transition is superimposed on two of the cooling laser beams. Under these conditions, the FWHM dimension of the cold sample is in the range of 600–1000 μm , and the number of atoms in the trap is between 1×10^7 and 5×10^7 , leading thus to a density of up to 10^{11} cm^{-3} .

254

At the trap position, a static electric field $\mathcal{E} = 30\text{--}100 \text{ V/cm}$ and a pulsed high voltage field can be applied by means of a pair of electric field grids spaced by 15 mm. The $6P_{3/2}$ atoms are excited in the presence of static field by a pulsed (7 ns, $< 1 \text{ mJ}$) dye laser running at 10 Hz repetition rate, which is pumped by the third harmonic of a Nd-YAG laser and tuned to the transition $6P_{3/2} \rightarrow np_{3/2}$ ($n = 22\text{--}26$, $\lambda \sim 518 \text{ nm}$). This excitation does not significantly change the atomic velocity. After the excitation the atoms evolve during about 2 μs , and when a quasi-steady-state regime attains, we apply a high voltage pulse of a 300 ns risetime and selectively ionize the upper s state. The ions are expelled out of the interaction region and detected by a pair of microchannel plates. The signal from the ion detector is recorded with a gated integrator. By slowly sweeping the field \mathcal{E} we chirp the detuning of the reaction in Eq. (1) and observe ion peaks corresponding to resonances of different magnetic components m of the initial $np_{3/2}$ state—either $|m| = 1/2$ or $|m| = 3/2$. Control of the Rydberg atom density is performed by attenuating the dye laser.

In Fig. 2 we show typical resonance lines for the transition of Eq. (1). One sees that the linewidth and the line shape changes with the density of Rydberg atoms. Indeed, in Fig. 2(a) one sees a narrow peak with a linewidth of 35 MHz FWHM, which is close to the resolution limit of $\sim 20 \text{ MHz}$. At higher densities Figs. 2(b)–2(d), a progressive broadening of the lines up to 200 MHz is evident. One clearly sees the transformation of the line shape with

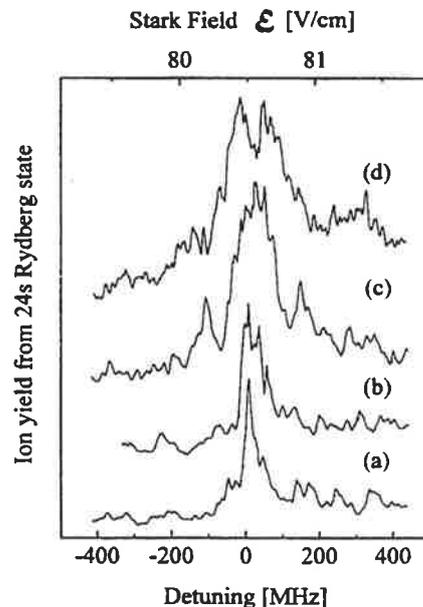


FIG. 2. Energy transfer resonance Eq. (1) for $23p_{3/2}$ state with $|m| = 1/2$. The ionic yield for the $24s_{1/2}$ state is shown as a function of the detuning controlled by \mathcal{E} field. Estimated densities of $\text{Cs}[23p_{3/2}, |m| = 1/2]$ atoms: (a) $4 \times 10^8 \text{ cm}^{-3}$, (b) $7 \times 10^8 \text{ cm}^{-3}$, (c) $4 \times 10^9 \text{ cm}^{-3}$, and (d) 10^{10} cm^{-3} .

the density: At the highest densities the resonance is split in two peaks and at intermediate densities small side bands around the resonance peak can be seen. This result is totally different from the case of two-body resonant collisions in a dilute gas for the regime with mean free time exceeding the time of observation, where the linewidth and the line shape do not depend on the atomic density N_d and the peak maximum grows as N_d^2 . Hence, the observed density dependence of the lines is a signature of many-body effects.

There is another interesting feature: one may expect the linewidth to be of the order of typical size of the interaction $V = \mu_A \mu_B \bar{R}^{-3}$, where $\bar{R} = n^{-1/3}$ is the mean distance between neighboring Rydberg atoms. However, the observed lines are much larger. In Fig. 2(d) one sees that at the density $N_d = 10^{10} \text{ cm}^{-3}$ the observed linewidth $\delta \sim 200 \text{ MHz}$ while the mean interaction $V = 1.5 \text{ MHz}$ is 2 orders of magnitude smaller. One could assume that such broad lines result from the rare fluctuations corresponding to pairs of atoms at small separations $R_\delta \sim \bar{R}(V/\delta)^{1/3} \ll \bar{R}$. The estimate $N_d R_\delta^3$ shows that such pairs represent at most 1% of the ensemble. Although this assumption may give the correct linewidth, it will explain neither the observed ionic yield $\sim 10\%$ nor the transformation of the line shape. Analysis of other phenomena, such as the inhomogeneity of the electric or magnetic fields, the presence of photoions [9], and black body radiation, shows that they do not give any line broadening effects larger than 20 MHz, and no significant population transfer due to the Dicke superradiance has been detected [10]. We thus have encountered a novel situation where the line shapes of the frozen Rydberg gas depend on the density, while the linewidth is much larger than that suggested by the mean distance. Note that this situation is not typical of just our particular system, since similar phenomena have been observed for rubidium atoms by Anderson *et al.* [11].

The interpretation of the results relies on the following model. We assume that the observed broad lines indeed appear due to a relatively small number of pairs of close atoms that perform the rapid excitation exchange of Eq. (1). However, each pair is an open system embedded in a larger system of other Rydberg atoms [see Fig. 1(b)], and the slow processes in Eq. (2) allow for the diffusion of ss' couple out of the closely spaced pair of atoms. Each of these pairs may therefore undergo the reaction several times. The process has some analogy to autocatalytic processes in chemistry: the fluctuations are responsible for the ignition of the reaction and the diffusion evacuates the reaction products. Although the diffusion is a slow process in comparison to the interaction between the atoms of the pair, its contribution to the evolution of system is crucial since it acts as a "bottle neck" for the evacuation of s states out of the pairs, thus affecting the width and the line shape of the resonance energy exchange, Eq. (1).

A consistent description of the open system can rely neither on the Schrödinger equation nor on the standard density matrix approach with exponential relaxation, since

the diffusive evacuation is nonexponential: the probability $p(t)$ for the ss' couple to remain at the pair of close atoms after time t in the course of a d -dimensional diffusion has a power-law character $p(t) \sim (Dt)^{-d/2}$, with the diffusion coefficient D dependent on the density of Rydberg atoms. However, one still can assume the Markovian character of the process and separate the problem into two parts, first, by considering the unitary evolution of a single ss' couple and finding the probability of the elementary act of its creation followed by the diffusive evacuation, and, second, by describing the result of multiple repetition of this elementary act which yields many ss' couples.

The level scheme in Fig. 1(c) illustrates the elementary act. The energy exchange in the pair of atoms $A + B$ leads to an interaction of the initial state $|np, np\rangle$ with the state $|ns, (n+1)s\rangle$, whereas the diffusion of ss' couple is described as a transition to a band. As the only essential variable which describes the diffusion, we take the probability amplitude $G(t-t_1) = [p(t-t_1)]^{1/2} = D^2[D(t-t_1)]^{-d/4}$ for the ss' couple to return at the pair at time t , after it has left this pair at the time t_1 [12]. The corresponding Schrödinger equations reads

$$i\hbar\dot{\psi}_{pp}(t) = \Delta\psi_{pp}(t) + \frac{\mu_A\mu_B}{R_{AB}^3}\psi_{ss'}(t), \quad (3)$$

$$i\hbar\dot{\psi}_{ss'}(t) = \frac{\mu_A\mu_B}{R_{AB}^3}\psi_{pp}(t) + \int_{-\infty}^t G(t-t_1)\psi_{ss'}(t_1)dt_1,$$

where ψ_{pp} and $\psi_{ss'}$ are the amplitudes of states $|np, np\rangle$ and $|ns, (n+1)s\rangle$, respectively, and Δ is \mathcal{E} -field controlled detuning between these states. Equation (3) can be solved by the standard Fourier-transform method, which yields the probability $\rho(t, \Delta) = |\psi_{pp}(t, \Delta)|^2$ for atoms A and B to remain at their initial states after the time t .

At the next step one finds from the probability $\rho(t, \Delta)$ the number of elementary acts $N(t, \Delta)$ that took place during the time t . Indeed, the probability to have no s states up to the time t , given by $\rho(t)$, does not contribute to the total yield $N(t, \Delta)$. The probability $-\dot{\rho}(t_1)dt_1$ to create one ss' couple at time t_1 during the time interval dt_1 multiplied by the probability to have no ss' couples generated later on gives after the integration over dt_1 the probability $P_1(t) = -\int dt_1 \dot{\rho}(t_1)\rho(t-t_1)$ to have at time t only one ss' couple. Analogous expressions, $P_k(t) = (-1)^k \int dt_1 \dots dt_k \dot{\rho}(t_1) \dots \dot{\rho}(t_k)\rho(t - \sum_{m=1}^k t_m)$, can be written for the probabilities of creation of k ss' couples. One finds the total number of ss' couples $N(t, \Delta) = \sum_k kP_k(t)$ by Fourier transform of $P_k(t)$ and summation of the algebraic series. For asymptotically long times it yields

$$N(t, \Delta) \approx \frac{1}{T(\Delta)} t, \quad (4)$$

where $T(\Delta) = \int_{-\infty}^{\infty} \rho(t, \Delta) dt$ represents the lifetime of the initial state.

For further calculations one needs to choose the spatial dimension d of the diffusion process Eq. (2). It is a

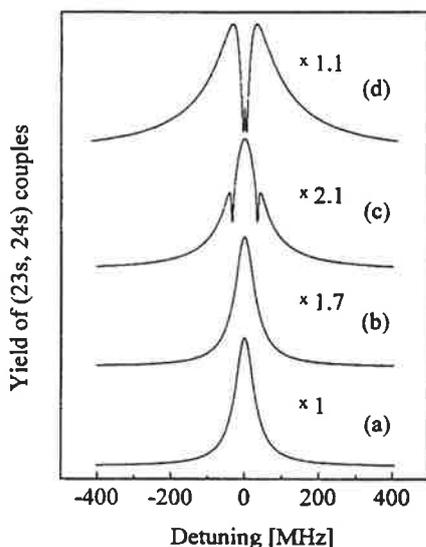


FIG. 3. Theoretical ionic yield rate given by $1/T(\Delta)$ in Eq. (4) at densities (a) $3.8 \times 10^8 \text{ cm}^{-3}$, (b) $7 \times 10^8 \text{ cm}^{-3}$, (c) $3.6 \times 10^9 \text{ cm}^{-3}$, and (d) 10^{10} cm^{-3} .

delicate question which seems to be an interesting physical problem by itself. On the one hand, it is not evident *a priori* that this diffusion is three-dimensional since for the long-range interaction $\sim 1/R^3$ the close and the far neighbors are equally important [12]. On the other hand, for a random atomic distribution the sets of closest atoms may be arranged along random complex-shaped curves or surfaces in $3 - D$ space, given the diffusion occurs among the closest atoms. In the more general situation the dimensionality of these manifolds may even be fractal. To be specific, in this Letter we have chosen $d = 4$. Thereby the $2 \times 2 - D$ diffusion is assumed, which implies that each of the two s states created in the elementary act of Eq. (1) moves independently over a $2 - D$ manifold. There is an excuse for such a random choice: the results are qualitatively similar for other d . In Fig. 3, we show the profiles calculated for different densities of Rydberg atoms for $R_{AB} = 0.9 \mu\text{m}$. One sees the variation of the linewidth with the density, which agrees with the experiment. Moreover, at high densities the calculated spectra show features similar to the experimental ones.

We conclude by summarizing the main results. Coherent evolution of a mesoscopic system of $10^3 - 10^6$ cold Rydberg atoms does not conform to the usual gas model. Peculiarities of the energy exchange in such a system find their explanation in the framework of a frozen gas model, where rare fluctuations of the interatomic distances are responsible for the linewidth, whereas a weak many-body effect of the diffusion of quantum states governs the line shape. Future experiments should check directly the role of the diffusion process and trace the crossover from the collisional regime to the frozen gas regime. Demonstration of such phenomena would be of great importance

for the spectroscopy of ultracold plasmas, metrology, and trapping experiments [13]. One can also note that similar regimes could be of importance in other Rydberg systems, as ZEKE spectroscopy [14], for instance.

We thank T. F. Gallagher for helpful discussions and collaboration in the frame of a CNRS-NSF grant. One of the authors (P.P.) also thanks A. Bleton, A. Crubellier, O. Dulieu, T. Jolicoeur, P. Lett, F. Masnou-Seeuws, J. Pinard, and L. Pruvost for stimulating exchanges. European Grants No. HCM ERBCHBGCT940688 of F. d. T.), and No. TMR ERBFMBICT961218 of A. F. are gratefully acknowledged.

*Present address: IBM Luxembourg, 1, Ceinture Um Schloss, L-5880 Hesperange, France.

†Also at University of Marne la Vallée, Noisy le Grand, France.

- [1] M. H. Anderson, J. R. Ensher, M. R. Matthews, C. E. Wieman, and E. A. Cornell, *Science* **269**, 198 (1995).
- [2] K. B. Davis, M.-O. Mewes, M. R. Andrews, N. J. van Druten, D. S. Durfee, D. M. Kurn, and W. Ketterle, *Phys. Rev. Lett.* **75**, 3969 (1995).
- [3] C. C. Bradley, C. A. Sackett, J. J. Tollett, and R. G. Hulet, *Phys. Rev. Lett.* **75**, 1687 (1995).
- [4] P. D. Lett, K. Helmerson, W. D. Phillips, L. P. Ratliff, S. L. Rolston, and M. E. Wagshul, *Phys. Rev. Lett.* **71**, 788 (1993).
- [5] A similar idea has been discussed for a dense Rydberg gas at high temperature in the paper by J. M. Raimond, G. Vitrant, and S. Haroche, *J. Phys. B* **14**, L655-L660 (1981).
- [6] P. Nosbaum, A. Bleton, L. Cabaret, J. Yu, T. F. Gallagher, and P. Pillet, *J. Phys. B* **28**, 304 (1995).
- [7] Such reactions have already been investigated in collision experiments with an effusive atomic beam by K. A. Safinya, J. F. Delpuch, F. Gounand, W. Sandner, and T. F. Gallagher, *Phys. Rev. Lett.* **47**, 405 (1981); and by R. C. Stoneman, M. D. Adams, and T. F. Gallagher, *Phys. Rev. Lett.* **58**, 1324 (1987). In our experiment we are far from the regime of collisions, and the atoms can be considered as motionless.
- [8] C. Monroe, W. Swann, H. Robinson, and C. Wieman, *Phys. Rev. Lett.* **65**, 1571 (1990).
- [9] H. B. van Linden van den Heuvell, N. H. Tran, R. Kachru, and T. F. Gallagher, *J. Appl. Phys.* **57**, 666 (1985).
- [10] R. H. Dicke, *Phys. Rev.* **93**, 99 (1954).
- [11] W. R. Anderson, J. R. Veale, and T. F. Gallagher, preceding Letter, *Phys. Rev. Lett.* **80**, 249 (1998).
- [12] Note that the mean interaction implies integration of R^{-3} over all space which diverges both at large and small distances. Given the mean spacing \bar{R} and \hbar are taken as unity, the mean interaction energy $V = 4\pi\mu_A\mu_B N_d \ln(R_t/R_{at})$, with the "cutoff" at the size of the trap R_t , and at the size of the Rydberg orbit R_{at} plays the role of the diffusion coefficient D .
- [13] W. H. Wing, *Phys. Rev. Lett.* **45**, 631 (1980).
- [14] K. Muller-Dethlefs and E. W. Schlag, *Annu. Rev. Phys. Chem.* **42**, 109 (1991); H. J. Dietrich, K. Muller-Dethlefs, and L. Ya. Baranov, *Phys. Rev. Lett.* **76**, 3530 (1996).

Annexe E

Article ” *Level-band problem and many-body effects in cold Rydberg atoms*”

(A paraître dans *Physica D*)

Level-band problem and many-body effects in cold Rydberg atoms

V.M. Akulin, F. de Tomasi, I. Mourachko and P.Pillet
*Laboratoire Aimé Cotton,
CNRS II,
Bât. 505, Campus d'Orsay, 91405 Orsay Cedex, France,*

Recent experiments with cold Rydberg atoms are analyzed in the framework of a level-band model. Statistics of coupling between the level and the band and the band density of states resulting from the $1/R^3$ interaction among the atoms are found. It turns out that strong and weak coupling are equally important, and therefore the population dynamics of such a system is different from the decay to a continuum. Returns of the population to the initial state affect strongly the lineshapes of resonances.

I. INTRODUCTION

The standard approach to the level-band problem employs the Fermi golden rule [1], and the description of such a system is known since the paper by Fano [2]. It implies that the band spectrum has a high density of states g and all these states are coupled with the level by matrix elements V of the same order of magnitude. If at $t = 0$ the population is localized at the level, then at the initial stage of evolution it decays exponentially to the states of the band with the rate $\Gamma = \hbar \overline{V^2} g$, and a lorentzian distribution of the population $\rho(\Delta_n) = \pi \Gamma / (\Gamma^2 + \Delta_n^2)$ attains at $t \gg 1/\Gamma$. Here Δ_n is the detuning of n -th state in the band from the resonance. For a discrete spectrum revivals [3] and fractional revivals [4] occur: the population returns to the initial state at a later stage of the evolution, after a time $t > g\hbar$ longer than the typical density of the states multiplied by the Planck constant.

Such scenario is not universal. Population dynamics of the level-band system is different when the coupling matrix elements V and the state density $g(V)$ of a given V change by orders of magnitude (Fig. 1). Revival and fractional revival become important much earlier, and they cannot be separated from the decay process: decay to a group of levels coexists with the revivals from another group. Among the examples of such systems the multiphoton excitation of low rovibrational levels of polyatomic molecules has been discussed [5]. One also can employ similar model to describe nonlinear resonances in multidimensional quantum systems, by the analogy to Chirikov's resonance overlap criterium [6]. Recent observation of many-body effects in a frozen Rydberg gas [7] has shown an important role of the returns of population that affects the lineshape of excitation exchange resonances.

In this paper we present an experimental manifestation of the many-body effects, discuss the level-diffusion-band model for this phenomenon, which explains some of the observed features, and compare the model with results of numerical simulation. We find the profile of state density and the coupling statistics of systems with $1/R^3$ interaction typical of the excitation exchange process. We also show that description of such a system in framework of the level-band model is consistent with numerically calculated dynamics of population, which turns out to be different from the diffusion.

II. EXPERIMENTAL EVIDENCE OF MANY-BODY EFFECTS IN COLD RYDBERG GAS

Consider an ensemble of cold atoms irradiated by a laser pulse that excites part of the atoms to a high Rydberg state. All the excited atoms are at the same Rydberg states $|np\rangle$ and they form a subsystem isolated from all other non excited atoms. The density n_{at} of excited atoms is about 10% of the total atomic density, and it ranges between 10^7 and 10^{10} atoms/cm³ depending on the laser intensity. Due to the dipole-dipole interaction atoms may change their Rydberg state. As a result of the energy exchange a couple of neighboring atoms initially in the state $|np, np\rangle$ performs a transition to the state $|ns, n's\rangle$. This energy exchange process may be viewed in the following way: one atom emits a photon and performs a transition from the $|np\rangle$ Rydberg state to the $|ns\rangle$ Rydberg state. The photon, being absorbed by the other atom, provokes a transition from $|np\rangle$ to $|n's\rangle$ state (with $n' = n + 1$). Atomic transitions $np \rightarrow ns$ and $np \rightarrow n's$ are not always strictly in resonance, but they may be set to resonance by the external static electric field, which controls by the Stark effect the detuning $\Delta_0 = (E_{n's} - E_{np}) - (E_{np} - E_{ns})$ of the transition.

After a given time ($t = 2 \mu s$) one measures the number of atoms in the higher s -state $|n's\rangle$ by applying the pulse electric field and by registering the charge of selectively ionized $n's$ -atoms. In Fig. 2 we show for different density

n_{at} of the excited atoms the ion yield in function of the detuning Δ_0 . One sees unexpected features concerning the width of resonances and the lineshapes. The width is about 200 time broader than one could expect from the size of dipole-dipole interaction μ^2/\bar{R}^3 at the average atomic distance $\bar{R} = n_{at}^{-1/3}$. Such a width could result from seldom fluctuations corresponding to atoms at short distances. However the probability of these fluctuations is low, - in the experimental conditions it is less than 1%. In the same time the total yield of the ions, originating from the atoms in $|n's\rangle$ state, exceeds 10% of the total number of excited atoms. Moreover, the lineshape changes with the increase of the atomic density n_{at} . For low n_{at} the lineshape remains qualitatively the same (lorentzian) and just the width grows. For a larger density two satellites appear on the wings of the line, and for even higher densities the line takes a two-hump shape. These two effects cannot be explained in the framework of the two-particle interaction usually employed for the description of a gas phase, and, hence, a more elaborated model that allows for many-body phenomena have to be considered.

III. THE MECHANISM OF THE EXCITATION EXCHANGE IN THE RYDBERG GAS

Possible mechanism of the phenomenon is shown in Fig. 3. The process starts at pairs of relatively closed atoms, at distances $R \ll \bar{R}$, that indeed are rather seldom fluctuations and represent at most 1% of atoms. Each of the pairs can perform a transition between the quantum states $|np, np\rangle$ and quantum states $|ns, n's\rangle$ with a large probability amplitude μ^2/R , and hence the energy exchange process can take place for a relatively large detuning Δ_0 . However, these pairs are not isolated, since each of atoms interacts with the surrounding atoms at larger distances. These atoms are in $|np\rangle$ state. Because of the excitation exchange each of the atoms of the pair can return to the state $|np\rangle$ whereas two surrounding atoms perform the transitions to $|ns\rangle$ and $|n's\rangle$ states. Viewing this process by the analogy to the quasiparticle concept one can say that the couple of states $|ns\rangle$ and $|n's\rangle$ moves to other sites as a result of the excitation exchange process. In what follows we refer to $|ns\rangle$ and $|n's\rangle$ states as to s and s' states respectively and to $|np\rangle$ state as to p state. The excitation exchange results in the motion of the s -state over the immobile atoms, thus leading to diffusion of these states out of the "active center", that is, the pair of close atoms considered. Therefore the pair can produce next $s - s'$ couple of states. This resembles an autocatalytic process, where the products of a chemical reaction produced in a seldom fluctuation of density diffuse out of the reaction zone. We thus have to consider a repeated elementary act of creation of a single $s - s'$ couple.

One circumstance is worth mentioning. If one or both s -states return to the "active center" they inhibit the process of creation of the next $s - s'$ couple. This mutual influence of the elementary acts has therefore to be taken into account. It is a many-body problem which can be solved only after a reasonable simplification. Fortunately, the simplest assumption of a Markovian character of the process is sufficient for the purpose. It allows to express the expectation value $N(t)$ of the number of $s - s'$ couples at the moment of time t in terms of the probability $\rho_0(t)$ for the initial state to survive a single elementary act of the decay. Indeed, $\rho_0(t)$ gives the probability to have no $s - s'$ couple created at time t . Hence the probability to have one couple created at dt' interval of time around t' equal $-\dot{\rho}_0(t')dt'$. The probability to have no pair created later on equals $\rho_0(t - t')$. Hence the probability to have only one $s - s'$ couple at the moment t equals

$$P_1(t) = - \int_0^t \dot{\rho}_0(t') \rho_0(t - t') dt' \quad (1)$$

By the analogy

$$P_n(t) = (-1)^n \int_0^t dt' \int_0^{t-t'} dt'' \dots \int_0^{t - \sum_{m=1}^{n-1} t^{(m)}} \dot{\rho}_0(t') \dot{\rho}_0(t'') \dots \dot{\rho}_0(t^{(n)}) \rho_0\left(t - \sum_{m=1}^n t^{(m)}\right) dt^{(n)} \quad (2)$$

gives the probability to have exactly n pairs at time t . Indeed, the combination $-\dot{\rho}_0(t')dt'$ represents the probability that during the interval $(t', t' + dt')$ the first $s - s'$ couple is created. From the assumption of statistical independency of the sequential events it follows that the probability of creation of the second couple during the interval $(t'', t'' + dt'')$ after the first event equal to $(-\dot{\rho}_0(t')dt')$ $(-\dot{\rho}_0(t'')dt'')$ etc., and after the creation of the n -th couple no more couples should be created up to the time t . The last circumstance corresponds to the factor $\rho_0(t - \sum_{m=1}^n t^{(m)})$, and the integration over all $t^{(m)}$ has to be performed. One finds the expectation value $N(t)$ of the number of $s - s'$

couples $N(t) = \sum_n n P_n(t)$ after Fourier transformation of Eq. (2) and summation of the resulting series of the type $\sum_{n=1}^{\infty} n x^n = x \frac{\partial}{\partial x} \sum x^n = x \frac{\partial}{\partial x} \frac{1}{1-x}$ which yields

$$N(t) = \frac{1}{2\pi} \int e^{-i\omega t} \frac{1}{i\omega} \left(\frac{1}{i\omega \rho(\omega)} + 1 \right) d\omega, \quad (3)$$

where

$$\rho(\omega) = \int_0^{\infty} e^{i\omega t} \rho_0(t) dt. \quad (4)$$

Here we have also employed the relation

$$\int_0^{\infty} e^{i\omega t} \dot{\rho}_0(t) dt = -1 - i\omega \rho(\omega).$$

In the long time limit Eq. (3) takes a simple form

$$N(t) \simeq \frac{t}{\rho(0)}. \quad (5)$$

Equation (5) has a simple physical meaning: the number of the $s - s'$ couples generated at time t equals to the time multiplied by the stationary decay rate $1/\rho(\omega = 0)$, which would attain in the case when the population of the initial state of the elementary act process is maintained equal to unity by an external source.

IV. A DIFFUSION-BAND MODEL OF THE ELEMENTARY ACT

We shall first consider a phenomenological model of the elementary act. The level scheme of the process is shown in Fig. 4. The initial state $|0\rangle$ corresponds to all atoms in $|np\rangle$ state. The first state $|1\rangle$ corresponds to atoms of a close pair (say the atom A and the atom B) in the states $|ns\rangle$ and $|n's\rangle$. The states $|0\rangle$ and $|1\rangle$ are coupled by the matrix element of dipole-dipole interaction $\hat{V}_{1,2} = \mu_{np}^{ns} \mu_{np}^{n's} / R_{AB}^3$ responsible for the energy exchange process. The band corresponds to locations of $|ns\rangle$ and $|n's\rangle$ states on other atoms (say C, D, F etc.). The state $|1\rangle$ is coupled by the interaction to a combination $|b\rangle = \sum V_{1n} |n\rangle$, which is a properly normalized superposition of the band states. This combination represents the $s - s'$ couple delocalized over a group of atoms near the initial pair A-B. It is also not an eigenstate of the hamiltonian, and hence it is also coupled to another combination of the band states, etc. This hierarchy of couplings of the states corresponds to a dynamical process, which resemble a diffusion process. We model it by considering the time dependent probability to return to the state $|b\rangle$. We assume that the $s - s'$ couple perform a diffusion in such a way, that the probability to be in the state $|b\rangle$ decays as

$$\rho_b = \frac{e^{-a^2/4Dt}}{(4\pi Dt)^\beta}, \quad (6)$$

where a is a typical size of the delocalization of the state $|b\rangle$, D is the diffusion coefficient, and the parameter β represents the spatial dimension of the diffusion.

Calculation of the diffusion coefficient is a problem by itself. Apparently, the scaled diffusion coefficient $n_{at}^{2/3} D$ has the dimension of frequency and hence it should be proportional to a mean interaction energy divided by the Planck constant. However, the mean interaction \bar{V} , given by the integral

$$\bar{V} = \int \frac{\mu^2}{R^3} 4\pi R^2 n_e dR, \quad (7)$$

diverges both at the lower and at the upper limits, although this divergence is logarithmically slow. We therefore can estimate the mean interaction $\bar{V} \simeq 4\pi \mu^2 n_e \ln(R_g/a)$ where R_g is the size of the trap. We take this value for the scaled diffusion coefficient.

The Shrödinger equation for the level scheme given in Fig. 4 reads

$$\begin{aligned} i \dot{\psi}_0 &= \Delta_0 \psi_0 + V_{01} \psi_1 \\ i \dot{\psi}_1 &= V_{10} \psi_0 + \sum_n V_{1n} \psi_n \\ i \dot{\psi}_n &= \Delta_n \psi_n + V_{n1} \psi_1, \end{aligned} \quad (8)$$

where ψ_0 , ψ_1 and ψ_n are amplitudes of the states $|0\rangle$, $|1\rangle$ and $|n\rangle$ respectively, and Δ_n is the detuning of the state $|n\rangle$ in the band from the state $|1\rangle$. Henceforth we put $\hbar = 1$. In this section we do not specify the matrix elements of the coupling V_{1n} , but make use of the phenomenological diffusion model. To this end we perform Fourier transformation

$$\psi_k(\varepsilon) = \int_0^{\infty} e^{i\varepsilon t} \psi_k(t) dt, \quad k = 0, 1, \dots \quad (9)$$

of Eq. (8), express ψ_n in terms of ψ_1 with help of the third equation, and substitute the result to the second equation. It yields

$$\varepsilon \psi_0(\varepsilon) = V_{01} \psi_1(\varepsilon) + \Delta_0 \psi_0(\varepsilon) + i \quad (10)$$

$$\varepsilon \psi_1(\varepsilon) = V_{10} \psi_0(\varepsilon) + \sum_n \frac{V_{1n} V_{n1}}{\varepsilon - \Delta_n + i0} \psi_1(\varepsilon),$$

and hence

$$\psi_0(\varepsilon) = \frac{i}{\varepsilon - \Delta_0 - V_{01} V_{10} \left(\varepsilon - \sum_n \frac{V_{1n} V_{n1}}{\varepsilon - \Delta_n + i0} \right)^{-1}}. \quad (11)$$

The infinitesimally small shift $i0$ in the denominator of the fraction in Eq. (10) is taken in order to ensure the convergence of the inverse Fourier transformation. The sum $G_b(\varepsilon) = \sum_n \frac{V_{1n} V_{n1}}{\varepsilon - \Delta_n + i0}$ in Eq. (11) has a clear physical meaning: it is the Fourier transform of the probability amplitude to return back to the state $|b\rangle$ given by the combination $\sum V_{1n} |n\rangle$ of the band states $|n\rangle$ at time t , once the systems left this state for the band at time $t = 0$. One can also consider it as a projection the band Green's function to the state $|1\rangle$ of the level $|1\rangle$ -band system.

In this section we take the Fourier transform $G_b(t)$ of $G_b(\varepsilon)$ equal to the square root of the probability Eq. (6) to find the s -state in the $|b\rangle$ state. It yield

$$G_b(\varepsilon) = -i \int_0^{\infty} (4\pi Dt)^{-\beta/2} \exp\{i\varepsilon t - a^2/8Dt\} dt, \quad (12)$$

and hence

$$\psi_0(\varepsilon) = \frac{i}{\varepsilon - \Delta_0 - V_{01} V_{10} \left[\varepsilon + i \int_0^{\infty} (4\pi Dt)^{-\beta/2} \exp\{i\varepsilon t - a^2/8Dt\} dt \right]^{-1}}. \quad (13)$$

The finite size a ensures the convergence of the integral Eq. (12) and may be taken as small. (Note that this integral behaves as $\varepsilon^{\beta/2-1}$ for $\beta \neq 2$ and as $\ln(\varepsilon)$ for $\beta = 2$). From Eq. (13) one find the Fourier transform $\rho(0, \Delta_0)$ of the probability at zero frequency

$$\rho(0, \Delta_0) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \psi_0(\varepsilon, \Delta_0) \psi_0^*(\varepsilon, \Delta_0) d\varepsilon \quad (14)$$

which with the help of Eq. (5) determine the profile of the ionic yield in function of the detuning Δ_0 between the states $|0\rangle$ and $|1\rangle$.

In Fig. 5 we show the dependence of the total number of $s - s'$ couples at a given time in function of the scaled detuning Δ_0/V_{01} for different dimensions β and different densities represented by the parameter D/V_{01} . For the distance $R_{AB} = 0.7\mu\text{m}$ between the atoms A and B the linewidth coincides with the experimental one, and the profiles for $\beta = 2$ are in the qualitative agreement with the observed lineshapes. One also sees similar dependencies for other dimensions β . At small densities when the diffusion is slow the lineshape are almost lorentzian. At higher densities the diffusive returns of the population play an important role by inhibiting the decay at small detuning Δ_0 . It results in a depth in the center of the line.

This phenomenological model does not reproduce the lineshapes in all details. However it shows an important role played by the non-exponential evolution and the recurrences of the population: interference of the population decay with these recurrences affects strongly the lineshapes of the resonances.

V. JUSTIFICATION OF THE LEVEL-BAND MODEL

The interference phenomena discussed at the end of previous section deserves a deeper consideration. The dynamics of returns may be, in fact, very different from the diffusive one, and therefore we have to consider it in more details. In this section we concentrate on the derivation of the band model, and the detailed analysis of returns follows.

Let us consider the Schrödinger equation Eq. (8), and take, as before, ψ_0 and ψ_1 to be the probability amplitude to have all atoms in p state and all atoms apart of A and B in p state respectively. Let us denote by ψ_m the amplitude of the configuration, where the state s is at one of the atoms of the pair and the state s' is somewhere else (at one of other atoms). By ψ'_m we denote the similar configuration for s' state, and ψ_{mk} will be the amplitude for both of s and s' states to be out of the AB pair. We also assume that the Hamiltonian of the s and s' states outside of the AB pair is diagonalized and has the eigenvalues Δ_m and Δ_k . It implies that the amplitude ψ_m and ψ'_m does not correspond to the s states located at a single atom outside of the pair, and ψ_{mk} does not corresponds to a definite location of the couple neither. In this representation the Schrödinger equation reads

$$\begin{aligned}
i \dot{\psi}_0 &= \Delta_0 \psi_0 + V_{01} \psi_1 \\
i \dot{\psi}_1 &= V_{10} \psi_0 + \sum_m V_{1m} \psi_m + \sum_m V'_{1m} \psi'_m \\
i \dot{\psi}_m &= \Delta_m \psi_m + V_{m1} \psi_1 + \sum_k V'_{1k} \psi_{km} \\
i \dot{\psi}'_m &= \Delta'_m \psi'_m + V'_{m1} \psi_1 + \sum_m V_{1m} \psi_{mk} \\
i \dot{\psi}_{km} &= (\Delta'_k + \Delta_m) \psi_{km} + V'_{1k} \psi_m + V_{1m} \psi_k.
\end{aligned} \tag{15}$$

Let us assume for simplicity that the dipole matrix elements for the transitions between $|ns\rangle$ and $|np\rangle$ states and between $|n's\rangle$ and $|n'p\rangle$ states are the same. Hence the detunings Δ_m and Δ'_m from one hand side and the couplings V_m and V'_m from the other hand side are the same manifolds. This assumption is justified for the highly excited neighboring Rydberg states, with the parameters slowly depending on the principal quantum number n .

We perform the Fourier transformation of Eq. (15), denote by $\psi'_m(\varepsilon)$ the amplitude $\psi_k(\varepsilon)$ with $k = m$, and arrive at

$$\begin{aligned}
\varepsilon \psi_0 &= \Delta_0 \psi_0 + V_{01} \psi_1 + i \\
\varepsilon \psi_1 &= V_{10} \psi_0 + \sum_m V_{1m} (\psi_m + \psi'_m) \\
\varepsilon \psi_m &= \Delta_m \psi_m + V_{m1} \psi_1 + \sum_k V_{1k} \psi_{mk}
\end{aligned}$$

$$\varepsilon\psi'_m = \Delta_m\psi'_m + V_{m1}\psi_1 + \sum_k V_{1k}\psi_{km}$$

$$\varepsilon\psi_{km} = (\Delta_k + \Delta_m)\psi_{km} + V_{1k}\psi_m + V_{1m}\psi'_k. \quad (16)$$

From the third and the fourth equations we find the sum $\psi_m + \psi'_m$ via the relation

$$\varepsilon(\psi_m + \psi'_m) = \Delta_m(\psi_m + \psi'_m) + 2V_{m1}\psi_1 + \sum_k V_{1k}(\psi_{mk} + \psi_{km}), \quad (17)$$

and substitute it to the second equation. We also note, that two state s and s' cannot be at the same atom at the same time. Therefore the Pauli exclusion principle holds for our quasiparticles. Hence the combination $\psi_m + \psi'_{m'}$ should vanish at $m = m'$ by the analogy of the wave function of two electron, which is antisymmetric with respect to the permutations of coordinates. We therefore arrive at

$$\varepsilon\psi_0 = \Delta_0\psi_0 + V_{01}\psi_1 + i \quad (18)$$

$$\varepsilon\psi_1 = V_{10}\psi_0 + \sum_m \sqrt{2}V_{1m}\tilde{\psi}_m$$

$$\varepsilon\tilde{\psi}_m = \Delta_m\tilde{\psi}_m + \sqrt{2}V_{m1}\psi_1,$$

where

$$\tilde{\psi}_m = (\psi_m + \psi'_m)/\sqrt{2}.$$

Equation (18) coincide with Eq. (8), and the detunings Δ_m can now be considered as the energies of the eigenstates corresponding to one s -state moving over the ensemble of all atoms except of A and B, whereas V_{1m} are the couplings between these eigenstates and the state when s -state is at one of the atoms (A or B).

VI. STATISTICS OF EIGENSTATE ENERGIES AND COUPLINGS

Analytical calculation of energies Δ_m of the eigenstates and the coupling V_{1m} is a challenging task. Indeed, the mean interaction Eq. (7) in a gas with $1/R^3$ binary interaction diverges both at small and long distances. It means that far atoms and close atoms are equally important for the excitation-exchange process. In such a situation it is not evident from the beginning what are the stationary states of the quasiparticles - are they localized on one or several atoms, or, on the contrary, each energy eigenstate extends over all the volume of the system like in a solid. We have undertaken a numerical simulation of the problem. A large number of atoms $N = 100 - 3000$ was randomly placed in a 3D box with cyclic boundary conditions. The density of atoms n_{at} was fixed and we have used the value $n_{at}\mu^2$ as the energy unit. One atom was supposed to be in s -state and all other atoms in p -state. States $|k\rangle$ with the s -state localized at k -th atom has been chosen as the basis set of the problem. Only the excitation exchange process $|sp\rangle \rightarrow |ps\rangle$ has been taken into account. The Hamiltonian of such a system with the matrix elements $H_{ij} = \mu^2 / (\vec{R}_i - \vec{R}_j)^3$ was diagonalized numerically. Eigenvectors ψ_k in the chosen basis give the stationary distribution of the probability amplitude for the s -state to be in k -th atom. To get an idea about the structure of the eigenstates in Fig. 6 we show the atoms that carry the main part of the population for three different types of eigenstates. One can see that along with well localized states some strongly delocalized states are possible, that have in space rather a multi-fractal structure.

In order to get an idea about the couplings we put an atom carrying s state at the origin of the reference system among other atoms in p -state. We consider the dynamic of population decay of this state and the time dependence of the mean square radius of the s -state distribution in space. In Fig. 7 we show the dynamic of the decay: the population of initial state approaches the asymptotic value $\rho(\infty) \sim 0.27$ by the square root exponential law

$$\rho(t) = \rho(\infty) + Ae^{-6.3\sqrt{t}}. \quad (19)$$

The mean square radius in turn increases as $t^{0.8}$. This result shows that the population dynamics is not diffusive but a more complicated one. Note that the Green's function corresponding to the population dynamics of Eq. (19) for $\varepsilon \neq 0$ has the form

$$G(\varepsilon) = \frac{i}{\varepsilon} \left\{ 1 - \sqrt{i \frac{\pi^3}{\varepsilon}} \left[1 - \operatorname{Erf} \left(\frac{\pi}{\sqrt{-i\varepsilon}} \right) \right] e^{i\pi^2/\varepsilon} \right\} A, \quad (20)$$

which is different from $G(\varepsilon) = [\varepsilon - G_b(\varepsilon)]^{-1}$ with $G_b(\varepsilon)$ of Eq. (12), although it has a qualitatively similar shape with a cusp at the center. Here Erf is the error function, and we have replaced the factor 6.3 by 2π .

We now turn to the density of states and the coupling statistics. In Fig. 8 and 9 we show this two distribution $g(\Delta)$ and $g(V)$ obtained numerically for 10^4 realizations of a system at 100 atoms and verified for a number of larger systems. Distribution of the coupling matrix elements and the energy are found to be independent. The coupling statistics $g(V)$ has a clear tendency to the inverse square law

$$g(V) \sim \frac{1}{V^2}, \quad (21)$$

whereas the eigenstates energy distribution are well fitted by the

$$g(\Delta) \cong \exp \left\{ 0.72809 - \sqrt{2.1^2 + \ln^2(\Delta/2\mu^2 n)} \right\} \frac{1}{\Delta} \quad (22)$$

dependence. Examination of an asymptotic behavior shows that these distributions are consistent with Eq. (20) for the Green's function.

One should note that the presence of localized states, which manifests itself in the fact that $\rho(\infty) \neq 0$ in Eq. (19), is not very important for the model of the frozen Rydberg gas, since the evacuation of s -states from the vicinity of "active center" occurs via the delocalized component. That is why the exponential of square root dependence Eq. (19) and the law $R \sim t^{0.8}$ seems to have more significant influence on the lineshapes of resonances.

VII. POPULATION DYNAMICS IN A LEVEL- INHOMOGENEOUS-BAND SYSTEM

Some of the properties of the system with $1/R^3$ interaction find their explanation in the framework of the level-inhomogeneous-band model. In Fig. 1 one sees the situation typical of such a system: density of weakly coupled states increases while the typical matrix element of coupling decreases. Some aspects of the behavior of such a system has been considered in [7]. Briefly the results are following. Decay can be complete or incomplete, depending on the value of the integral $\int Vg(V) dV$, and the behavior at long t depends on the asymptotic behavior of $g(V)$ at small V . Indeed, a two-level system is resonant when the detuning between the levels is less than their coupling. Let us calculate the probability P_r to have a resonance suggested by this criterium. Consider levels of the type i that all have matrix elements of coupling V_i and the spectral density g_i of these states. The ratio of a typical detuning and the coupling can be estimated by the product $g_i V_i$. It gives the probability to have a resonance. In order to get the total probability to have a resonance one has to sum up all the types of level and arrive at $P_r = \sum_i g_i V_i$. In a system with distributed parameters the sum has to be replaced by the integral

$$P_r = \int Vg(V) dV. \quad (23)$$

The probability $P_i \gg 1$ represents the expectation value of the number of resonances.

The integral Eq. (23) may be large or even may diverge at the lower limit, which means that the expected number of resonances is much larger than one or even is infinite. Note, that this integral represents the number of resonances suggested by the criterium for a two-level system. However, in a multilevel system this criterium is different. For example, for a uniform distribution of levels with constant coupling the number of levels in resonance N_R is equal to the density of states g multiplied by the decay rate $2\pi |V^2| g$, that is $N_R = 2\pi |V^2| g^2$. At the same time the two-level-system criterium yields for the same system $P_r = Vg$, which gives $N_R = 2\pi P_r^2$. The same situation is typical of a strongly inhomogeneous level-band system [5], where resonant levels form a sort of Cantor set: the average probability to have a resonance can be finite, although the localized and delocalized states can be very close in energies.

For the statistics Eq. (21), $g(V) \sim 1/V^2$, the integral Eq. (23) diverges as a logarithm at the lower limit. It also means that the number of levels in resonance can be large or even infinite for a system of infinite size. Moreover, the largest contribution is given by the weakly coupled levels. It means that the number of levels involved in the process increases in course of time. At the first stage of the process the population rapidly oscillates among a relatively small number of states for which $Vt \gtrsim 1$. Later on, new and new weakly coupled levels satisfy this condition and therefore

become important, and hence a number of slow Rabi oscillations replace the rapid process. It means that the typical frequency scales down in course of time, until it becomes zero.

Let us consider such a process with the particular form of $g(\Delta)$ and $g(V)$ given by Eqs. (21,22). The Schrödinger equation for a level-band system in Fourier representation reads

$$\varepsilon\psi_1 = \sum_m V_{1m}\psi_m + i$$

$$\varepsilon\psi_m = V_{m1}\psi_m + \Delta_m\psi_m. \quad (24)$$

It yields

$$\psi_1(\varepsilon) = \frac{i}{\varepsilon - \sum_m V_{1m}V_{m1}/(\varepsilon - \Delta_m + i0)}. \quad (25)$$

In the situation where all the levels are similar and each of them is weakly populated and hence never takes a significant part of total population, one can replace the sum by the integral $\sum_m \dots \rightarrow \int g(\Delta)d\Delta \int g(V)dV\dots$ at $t \ll g$. For matrix element different by orders of magnitude this replacement is illegal, since some of the levels can take the significant part of the total population more often and hence during a finite interval of time they contribute to the sum Eq. (25) with higher weights. In such a situation the statistical spread of different physical values is large, and in order to get a consistent description one has to perform the ensemble average of the variable of interest. In particular, the correct approach to the dynamics of populations is the following. One has first to write the population

$$\rho_1(t) = \psi_1(t)\psi_1^*(t) = \frac{1}{4\pi^2} \int d\varepsilon d\xi \frac{e^{i(\varepsilon-\xi)t}}{\varepsilon - \sum_m V_{1m}V_{m1}/(\varepsilon - \Delta_m + i0)} \frac{1}{\xi - \sum_m V_{1m}V_{m1}/(\xi - \Delta_m - i0)}, \quad (26)$$

and then perform the ensemble average over the detunings Δ_m and the couplings V_{0m} suggested by the distribution functions Eq. (21) and Eq. (22).

Let us start with a uniform distribution of the states over the band $g(\Delta, V) = g(V)\Theta(\Gamma - |\Delta|)/2\Gamma$. Here $\Gamma \rightarrow \infty$ is a large width of the band. Equation (26) yields the average population

$$\langle \rho_1(t) \rangle = \frac{1}{4\pi^2} \prod_m \left\{ \int_{-\Gamma}^{\Gamma} \frac{d\Delta_m}{2\Gamma} \right\} \int_{-\infty}^{\infty} d\varepsilon d\xi \times \frac{e^{-i(\varepsilon-\xi)t}}{\left(\varepsilon - \sum_m V_{1m}V_{m1}/(\varepsilon - \Delta_m + i0) \right) \left(\xi - \sum_m V_{1m}V_{m1}/(\xi - \Delta_m - i0) \right)}. \quad (27)$$

We introduce new variable $\zeta = \varepsilon - \xi$, $\eta = (\varepsilon + \xi)/2$, $x_m = \Delta_m - \eta$ and arrive at

$$\langle \rho_1(t) \rangle = \frac{1}{4\pi^2} \prod_m \left\{ \int_{-\Gamma-\eta}^{\Gamma-\eta} \frac{dx_m}{2\Gamma} \right\} \int_{-\infty}^{\infty} d\zeta d\eta \times \frac{e^{-i\zeta t}}{\left(\eta + \zeta/2 - \sum_m |V_{1m}|^2 / (\zeta/2 - x_m + i0) \right) \left(\eta - \zeta/2 - \sum_m |V_{1m}|^2 / (-\zeta/2 - x_m - i0) \right)}. \quad (28)$$

We now neglect η with respect to large Γ in the limits of integration over dx_m and perform integration over $d\eta$, which yields

$$\langle \rho_1(t) \rangle = \frac{-i}{2\pi} \int_{-\infty-i0}^{\infty-i0} d\zeta \prod_m \left\{ \int_{-\Gamma}^{\Gamma} \frac{dx_m}{2\Gamma} \right\} \frac{e^{-i\zeta t}}{\left(\zeta - \sum_m |V_{1m}|^2 \left(\frac{1}{\zeta/2 - x_m} + \frac{1}{\zeta/2 + x_m} \right) \right)}. \quad (29)$$

Note that on the integration path in ζ -plane the denominator of the integrand Eq. (28) has a negative imaginary part. We therefore can make use of the representation $1/x = \int_0^{i\infty} e^{-x\tau} d\tau$ and write

$$\frac{1}{\zeta - \sum_m |V_{1m}|^2 \zeta / \left((\zeta/2)^2 - x_m^2 \right)} = \int_0^{i\infty} d\tau \prod_m \left\{ \exp \left[\frac{|V_{1m}|^2 \zeta \tau}{(\zeta/2)^2 - x_m^2} \right] \right\} e^{-\tau \zeta}. \quad (30)$$

This representation allows us to separate the variables and perform the integration over dx_m independently for each m . Substitution of Eq. (30) to Eq. (29) yields

$$\langle \rho_1(t) \rangle = \frac{-i}{2\pi} \int_{-\infty-i0}^{\infty-i0} d\zeta e^{-i\zeta t} \int_0^{i\infty} d\tau e^{-\tau \zeta} \prod_m \left\{ \frac{1}{2\Gamma} \int_{-\Gamma}^{\Gamma} dx_m \exp \left[\frac{|V_{1m}|^2 \zeta \tau}{(\zeta/2)^2 - x_m^2} \right] \right\}. \quad (31)$$

In the limit of large number of states and large Γ (with a constant state density) it reads

$$\langle \rho_1(t) \rangle = \frac{-i}{2\pi} \int_{-\infty-i0}^{\infty-i0} d\zeta e^{-i\zeta t} \int_0^{i\infty} d\tau e^{-\tau \zeta} \exp \left\{ \sum_m \frac{1}{2\Gamma} \int_{-\Gamma}^{\Gamma} dx_m \left[\exp \left(\frac{|V_{1m}|^2 \zeta \tau}{(\zeta/2)^2 - x_m^2} \right) - 1 \right] \right\}. \quad (32)$$

Here we have make use of the relation

$$1 + \frac{1}{2\Gamma} \int_{-\Gamma}^{\Gamma} dx_m \left[\exp \left(\frac{|V_{1m}|^2 \zeta \tau}{(\zeta/2)^2 - x_m^2} \right) - 1 \right] \cong \exp \left\{ \frac{1}{2\Gamma} \int_{-\Gamma}^{\Gamma} dx_m \left[\exp \left(\frac{|V_{1m}|^2 \zeta \tau}{(\zeta/2)^2 - x_m^2} \right) - 1 \right] \right\}. \quad (33)$$

In this limit one can also replace $\sum_m 1/2\Gamma$ by the integral over the density of states $g(V) dV$.

We note that $\exp \left\{ \frac{|V_{1m}|^2 \zeta \tau}{(\zeta/2)^2 - x_m^2} \right\} \rightarrow 1$ for $x \rightarrow \infty$ and hence

$$\int_{-\Gamma}^{\Gamma} dx_m \left[\exp \left\{ \frac{|V_{1m}|^2 \zeta \tau}{(\zeta/2)^2 - x_m^2} \right\} - 1 \right] = \int_C dx_m \exp \left\{ -\frac{|V_{1m}|^2 \zeta \tau}{(\zeta/2)^2 - x_m^2} \right\}, \quad (34)$$

where C is a contour that goes from $-\infty$ to $+\infty$ along the real axis and returns to $-\infty$ along the half of a loop of infinite radius in the lower plane. (the integration over the half of the loop gives -1). Note that this contour can be transformed to a small loop around the point $x_m = -\zeta/2$ which is the only singularity in the upper part of the complex x_m -plane. After replacement $x_m = u\zeta/2$ the integral takes the form

$$I = -\frac{\zeta}{2} \int_C du \exp \left\{ \frac{4|V_{1m}|^2 \tau}{\zeta} \frac{1}{1-u^2} \right\}, \quad (35)$$

where contour C goes around the point $u = -1$. Evaluation of the integral should be performed for an imaginary τ . It yields

$$I = -2\pi |V|^2 \tau \exp \left\{ \frac{4|V|^2 \tau}{\zeta} \right\} \left\{ J_0 \left(\frac{2|V|^2 \tau}{i\zeta} \right) - iJ_1 \left(\frac{2|V|^2 \tau}{i\zeta} \right) \right\}, \quad (36)$$

where J_0 and J_1 are the Bessel functions.

We now replace the summation $(1/2\Gamma) \sum_m f(V_{1m})$ in Eq. (32) by the integration $\int g(V) f(V) dV$, where $g(V)$ is the density of states for a given coupling. The expression in parentheses of Eq. (32) reads

$$\sum_m \frac{1}{2\Gamma} \dots = \int_0^\infty dV g(V) 2\pi |V|^2 \tau \exp \left\{ \frac{4|V|^2 \tau}{\zeta} \right\} \left\{ J_0 \left(\frac{2|V|^2 \tau}{i\zeta} \right) - iJ_1 \left(\frac{2|V|^2 \tau}{i\zeta} \right) \right\}. \quad (37)$$

For a long time t small value of ζ are important, which means, that in Eq. (37) we can replace $g(V)$ by its asymptotic form $g(V) = g_0/V^2$ for small V suggested by Eq. (21). For the population Eq. (32) it yields

$$\langle \rho_1(t) \rangle |_{t \rightarrow \infty} = \frac{-i}{2\pi} \int_{-\infty-i0}^{\infty-i0} d\zeta e^{-i\zeta t} \int_0^{\infty} d\tau e^{-\tau\zeta} \exp \left\{ -2g_0 \sqrt{\zeta\pi\tau} \right\}, \quad (38)$$

where we have employed the relation

$$\int e^{-iu^2} J_0(u^2) du - i \int e^{-iu^2} J_1(u^2) du = \sqrt{\frac{-2i}{\pi}}. \quad (39)$$

Replacement of variables $\tau = z/\zeta$ yields

$$\langle \rho_1(t) \rangle |_{t \rightarrow \infty} = \frac{-i}{2\pi} \int_{-\infty-i0}^{\infty-i0} d\zeta \frac{e^{-i\zeta t}}{\zeta} \int_0^\infty dz e^{-z-2g_0\sqrt{\pi z}}. \quad (40)$$

The first integral amounts to $2\pi i$, and the second one can be found in terms of the error function. From the distribution Eq. (22) it follows that at $\Delta \ll 2\mu^2 n_{at}$ the level density is uniform, and in the units of $n_{at}\mu^2$ it takes the numeric value $g_0 = 1/2$. In the agreement with the results of simulation shown in Fig. 7 this integration yields $\rho_1(t \rightarrow \infty) = 0.276194$.

In order to find the behavior of the level-inhomogeneous-band system at long times t one has to take into account a finite width of the density of states $g(\Delta)$. We note, that if at long times the wave function consist of a constant part $\psi(t = \infty)$ and a decaying part $\psi_d(t) \rightarrow 0$, the probability $|\psi(t)|^2$ is determined by the product $|\psi(\infty)|^2 + \psi(\infty)\psi_d^*(t) + \psi^*(\infty)\psi_d(t) + o(\psi_d(t))$. It means that for the systems with $\rho_1(t = \infty) \neq 0$, the behavior of the population at long t is determined by the ensemble average of the amplitude $\psi_d(t)$. We therefore have to find the mean decaying part of amplitude $\langle \psi(t) \rangle$. To this end we take Eq. (25) and make use of the representation Eq. (30), which separates the variables Δ_m . We arrive at

$$\langle \psi_1(t) \rangle = \frac{-i}{2\pi} \int d\varepsilon \int_0^{-i\infty} d\tau e^{-i\varepsilon t - \tau\varepsilon} \prod_m \left\{ \exp \left[\frac{|V_{1m}|^2 \tau}{\varepsilon - \Delta_m + i0} \right] \right\}. \quad (41)$$

By the analogy to Eq. (32) we obtain

$$\langle \psi_1(t) \rangle = \frac{-i}{2\pi} \int d\varepsilon e^{-i\varepsilon t} \int_0^{-i\infty} d\tau e^{-\tau\varepsilon} \exp \left\{ \int g(V) g(\Delta) \left[\exp \left(\frac{|V|^2 \tau}{\varepsilon - \Delta_m + i0} \right) - 1 \right] dV d\Delta \right\}. \quad (42)$$

Consider the integral in the exponent. Integration over dV with $g(V) = 1/V^2$ yields for small ε

$$-2\sqrt{\pi} \int g(\Delta) \sqrt{\frac{\tau}{\varepsilon - \Delta_m + i0}} d\Delta \simeq -2\sqrt{2\pi i\tau} \int_0^\infty \frac{g(\Delta)}{\sqrt{|\Delta|}} d\Delta, \quad (43)$$

where we make use of the expression $\int \frac{du}{u^2} (e^{-u^2} - 1) = \Gamma(-1/2) = -2\sqrt{\pi}$. Substitution of Eq. (43) to Eq. (42) after the replacement $\tau = -i\tau$ yields

$$\langle \psi_1(t) \rangle = \frac{1}{2\pi} \int d\varepsilon \int_0^{-i\infty} d\tau e^{-i\varepsilon t + i\tau\varepsilon} \exp \left[-2\sqrt{2\pi\tau} \int_0^\infty \frac{g(\Delta)}{\sqrt{|\Delta|}} d\Delta \right]. \quad (44)$$

Integration over $d\varepsilon$ gives $2\pi\delta(t - \tau)$ and after integration over $d\tau$ we obtain

$$\langle \psi_1(t) \rangle = \exp \left[-2\sqrt{2\pi t} \int_0^\infty \frac{g(\Delta)}{\sqrt{|\Delta|}} d\Delta \right] = e^{-6.34056\sqrt{t}}. \quad (45)$$

Where we have made use of the distribution Eq. (22). From Eq. (45) it follows that at long times t the decaying part of the population is proportional to $e^{-6.3\sqrt{t}}$, which is in agreement with the result of the numerical simulation Eq. (19).

VIII. CONCLUSION

Behavior of a level-band system with coupling matrix elements that change by orders of magnitude is very different from the irreversible exponential decay, typical of a level-continuum system. The decay coexist with the recurrences that is with returns of the population to the initial state. This fact plays an important role in the population dynamics and affects the spectral dependence of the decay rate. Such a situation is typical for a gas of two-level particles with the $1/R^3$ excitation-exchange interaction. In particular, the experimentally observed excitation exchange rate in a gas of cold Rydberg atoms depends on the detuning between the atomic transition in an unsuspected way. This dependence gradually evolves with the increase of the atomic density, and it changes its shape from a lorentzian curve to a more complicated two-hump profile with a depth in the center. This shape can be qualitatively explained by allowing for the returns of populations in the framework of a diffusion-band model. However, detailed numerical analysis shows that the population dynamics in a system with $1/R^3$ interaction does not have a character of diffusion. Nevertheless, the problem still conforms a level-band model with independent statistics of positions Δ of levels in the band and couplings V to the level. The coupling statistics $g(V) = 1/V^2$, and the density of states $g(\Delta) \sim \Delta^{-1} \exp \left[-\sqrt{\text{const} + \ln^2(\Delta/2n\mu^2)} \right]$, that emerge from numerical simulations, are found to be consistent with the temporal evolution of the system.

The calculation of the excitation-exchange rate in a cold Rydberg gas suggested by this statistics is the subject of our future work.

-
- [1] E. Fermi, *Notes on Quantum Mechanics*, (Chicago, University of Chicago Press, 1961).
 - [2] U. Fano, *Phys. Rev.* **124**, 1866-1878 (1961).
 - [3] J. H. Eberly, N. B. Narozhny, J. J. Sanchez-Mondragon, *Phys. Rev. Lett.* **44**, 1323-1326 (1980).
 - [4] I. Sh. Averbukh and N. F. Perelman, *Phys. Lett. A* **139**, 449 (1989); I. Sh. Averbukh, M. J. J. Vrakking, D. M. Villeneuve, and A. Stolow, *Phys. Rev. Lett.* **77**, 3518-3521 (1996).
 - [5] V. M. Akulin, *Sov. Phys. JETP* **56**, 533-538 (1982); V. M. Akulin and N. V. Karlov, *Intense Resonant Interactions in Quantum Electronics*, (Springer, Berlin, 1991).
 - [6] B. V. Chirikov, *Atomic Energiy* **6**, 630-638 (1959) [in Russian]; B. V. Chirikov, *Phys. Rept.* **52**, 263 (1979).
 - [7] W. R. Anderson, J. R. Veale and T. F. Gallagher *Phys. Rev. Lett.* **80**, 249-252 (1998); I. Mourachko, D. Comparat, F. de Tomasi, A. Fioretti, P. Nosbaum, V. M. Akulin, and P. Pillet *Phys. Rev. Lett.* **80**, 253-256 (1998).

FIG. 1. A quantum state coupled to an inhomogeneous band. Few levels are strongly coupled by a large coupling matrix element V_1 . Density of these state g_1 is small. A large number of levels is coupled by a smaller coupling V_2 , but their density g_2 is higher, etc. Dynamics of such a system is very different from the case, where all V are of the same order of magnitude.

FIG. 2. Experimental profiles of the yield of Cs atoms in the Rydberg state $24s$ in function of detuning Δ_0 between states $23p + 23p$ and $23s + 24s$. The detuning is controlled by a static electric field \mathcal{E} . Densities of Rydberg atoms n_{at} are: a) $4 \cdot 10^8 \text{ cm}^{-3}$, b) $7 \cdot 10^8 \text{ cm}^{-3}$, c) $4 \cdot 10^9 \text{ cm}^{-3}$, d) 10^{10} cm^{-3} .

FIG. 3. A couple of s -states (ss' -couple) is created at a pair of close atom (A and B). Excitation exchange process result in diffusion of these states out the pair. When the s -states are left the pair can produce the next ss' -couple.

FIG. 4. Level scheme of the elementary act. Initial state $|np, np\rangle$ corresponds to both of atoms A and B of the pair in the state $|np\rangle$. It is coupled by the energy exchange matrix element V_{01} to the state where one of the atoms is in the Rydberg state $|ns\rangle$, whence the other is in the state $|(n+1)s\rangle$. Diffusion of the $|ns\rangle$ and $|(n+1)s\rangle$ states over the ensemble of other atoms via the excitation exchange mechanism is represented by transitions to the band.

FIG. 5. The yield (Fig. 2) calculated with the help of Eqs. (5), (9) for different dimensionality β of the random walk $\beta = 1/2$ (solid line), $\beta = 1$ (dashed line), $\beta = 3/2$ (dotted line), and $\beta = 2$ (bold solid line) and for different atomic densities n_{at} , that are parametrized by the ratio $\bar{n} = D/V_{01}$, a) $\bar{n} = 1/30$, b) $\bar{n} = 1/13$, c) $\bar{n} = 1/4$, d) $\bar{n} = 1/\sqrt{2}$.

FIG. 6. Atoms that carry the main part of the population for different eigenstates in a system with $1/R^3$ interaction. a) well-localized eigenstate (majority of states), b) more dispersed eigenstate, c) delocalised eigenstate (arc seldom).

FIG. 7. Dynamics of population. a) Probability to stay at the initial state (see Eq. (19)). b) Mean square radius of the spacial distribution of the population $\sqrt{\langle R^2 \rangle}$ scales as $t^{0.8}$, while it remains much smaller than the size of the system.

FIG. 8. Distribution of the couplings for a) $N = 1000$ atoms and b) $N = 100$ atoms (20000 realizations) in Log-Log scale. (Distribution is found numerically for $\delta \log(V)$ boxes). The solid line (extrapolation for $N \rightarrow \infty$) correspond to $g(V) = 1/V^2$ law.

FIG. 9. Density of states, calculated numerically for $N = 100$ atoms and averaged over 20000 realization in Log-Log scale (for $\delta \log(\Delta)$ boxes). The fit correspond to the law $g(\Delta) = \Delta^{-1} \exp\left\{0.72809 - \sqrt{2.1^2 + \ln^2(\Delta/2\mu^2 n_{at})}\right\}$. A larger system of $N = 1000$ atoms has the same statistics.

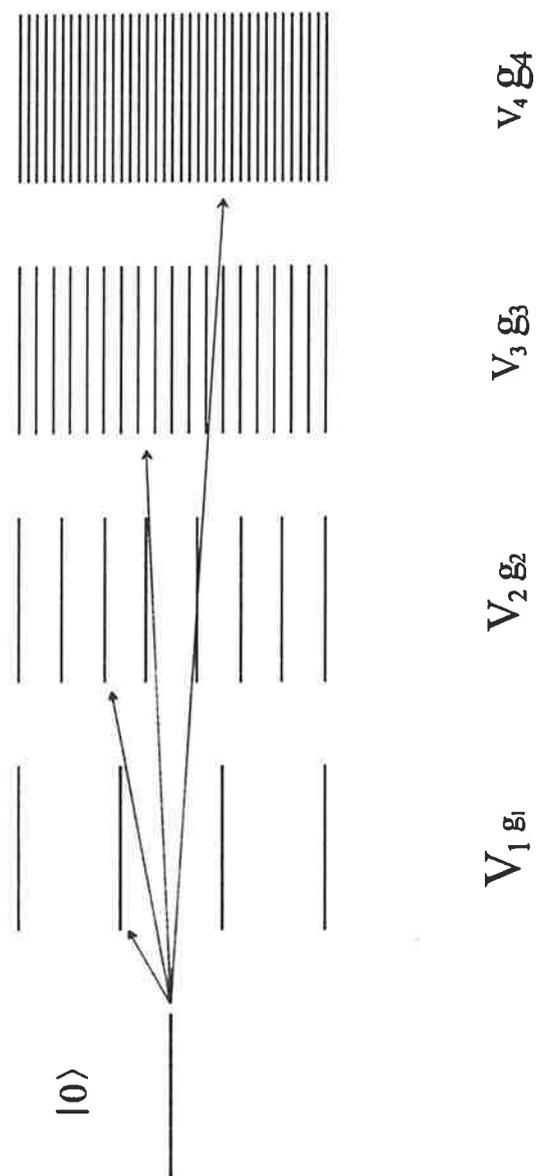


Fig. 1

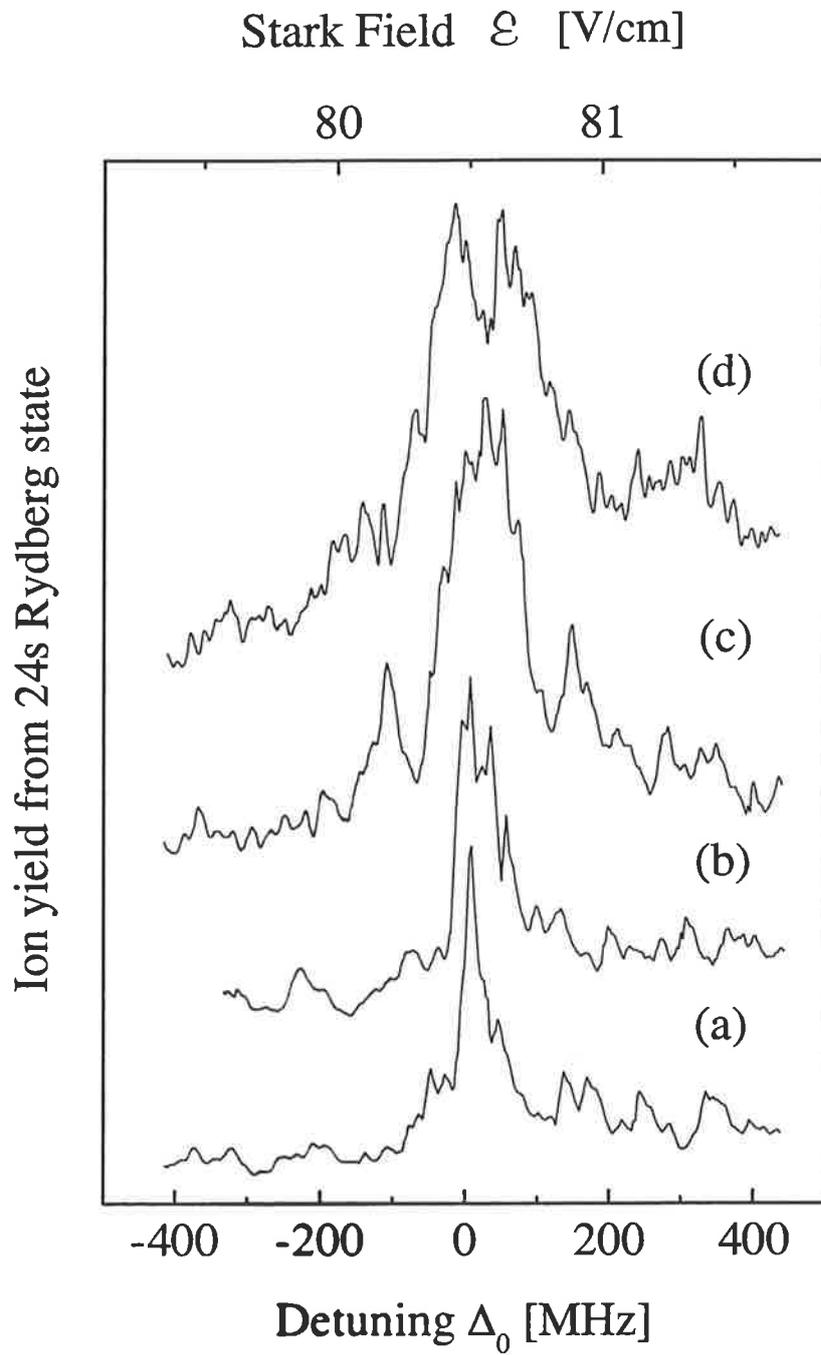


Fig. 2

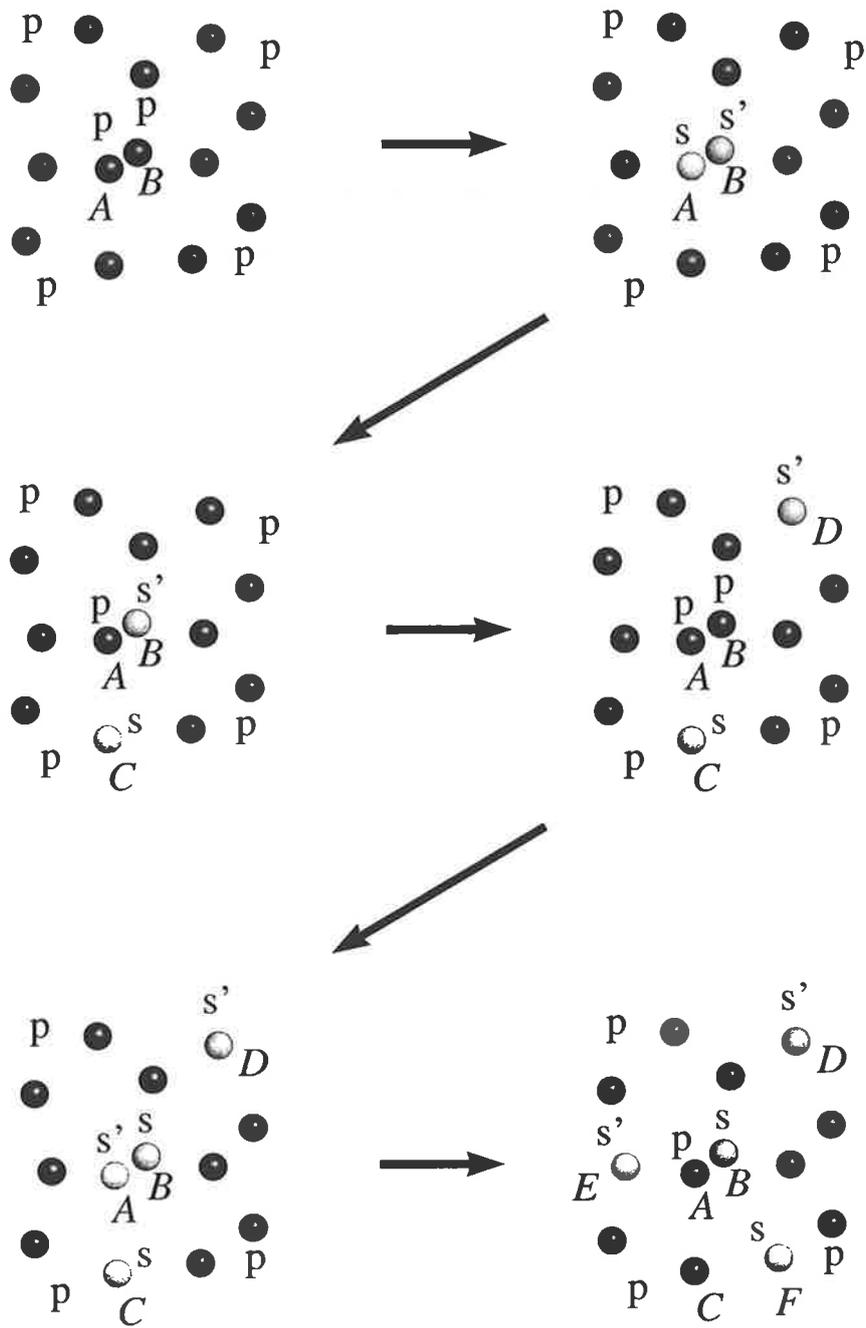


Fig. 3

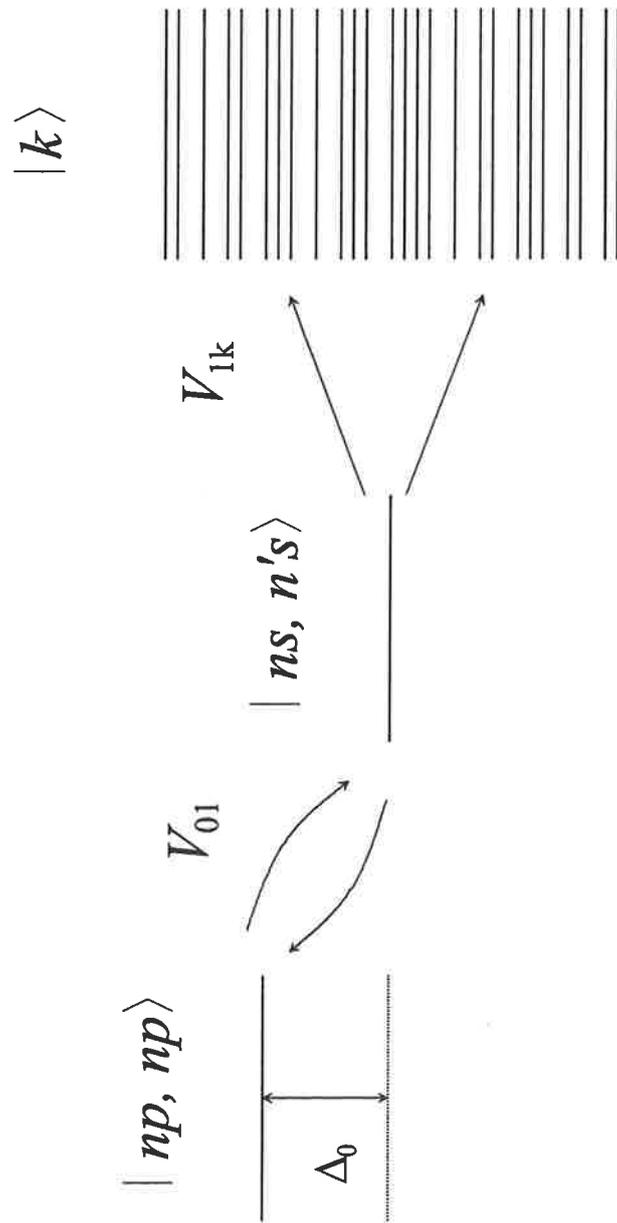


Fig. 4

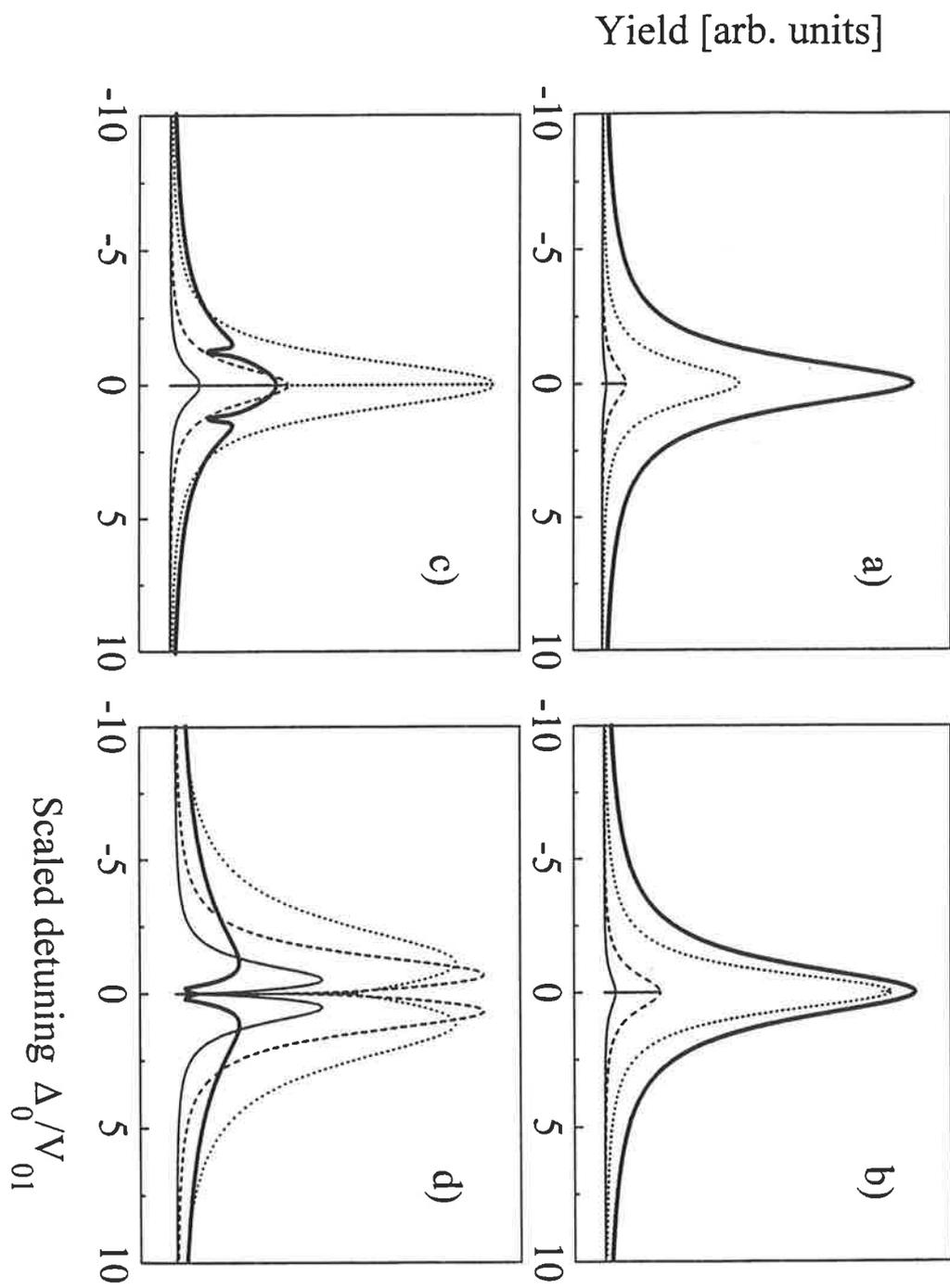


Fig. 5

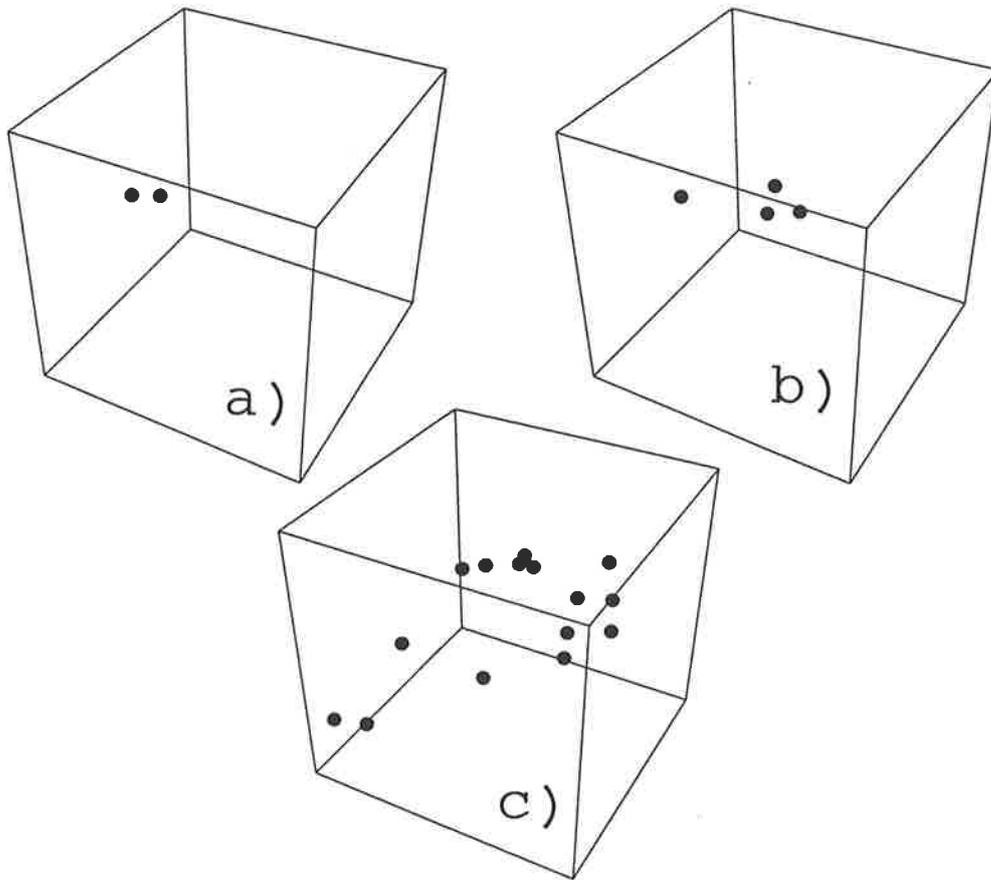


Fig. 6

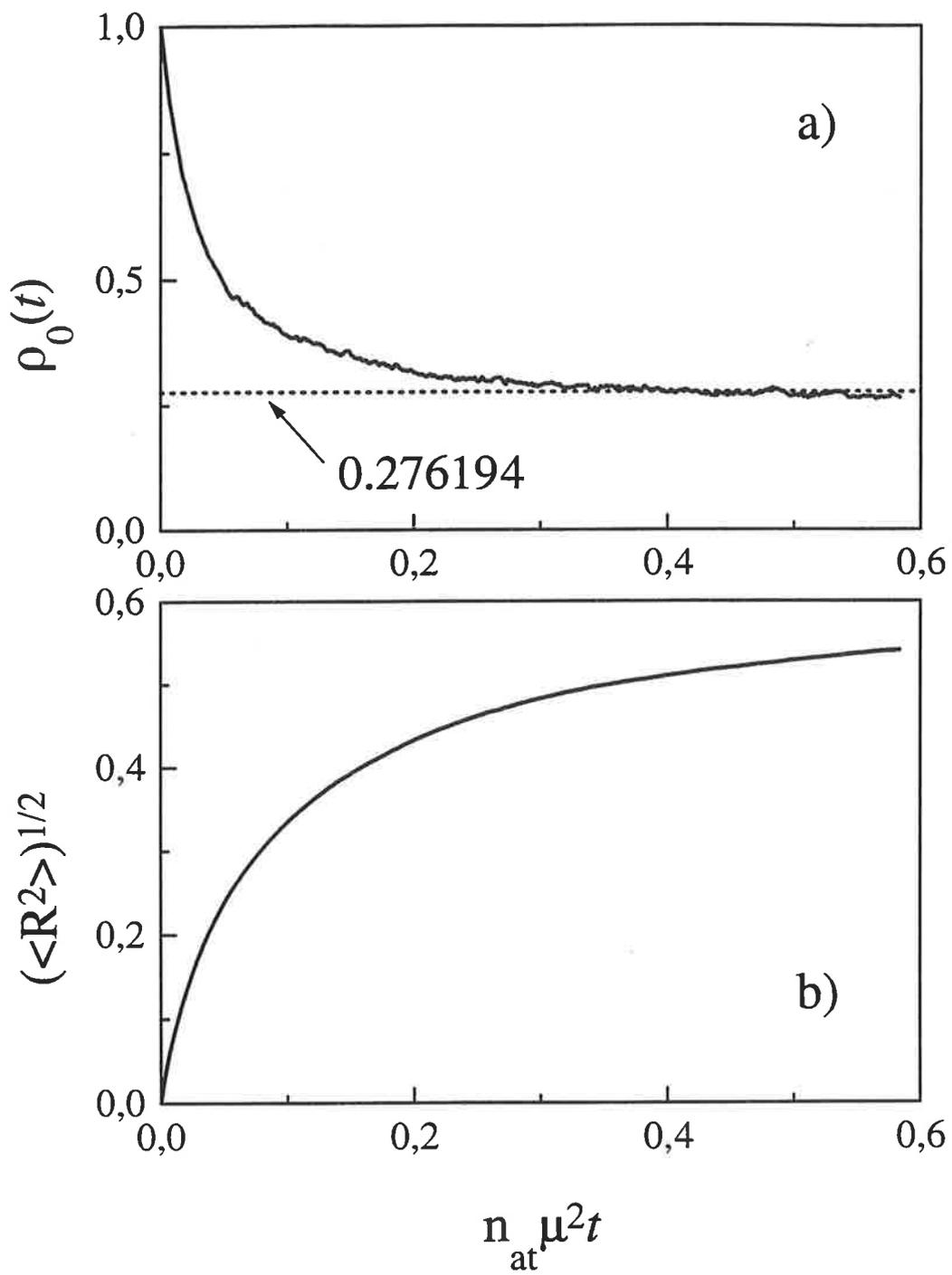


Fig. 7

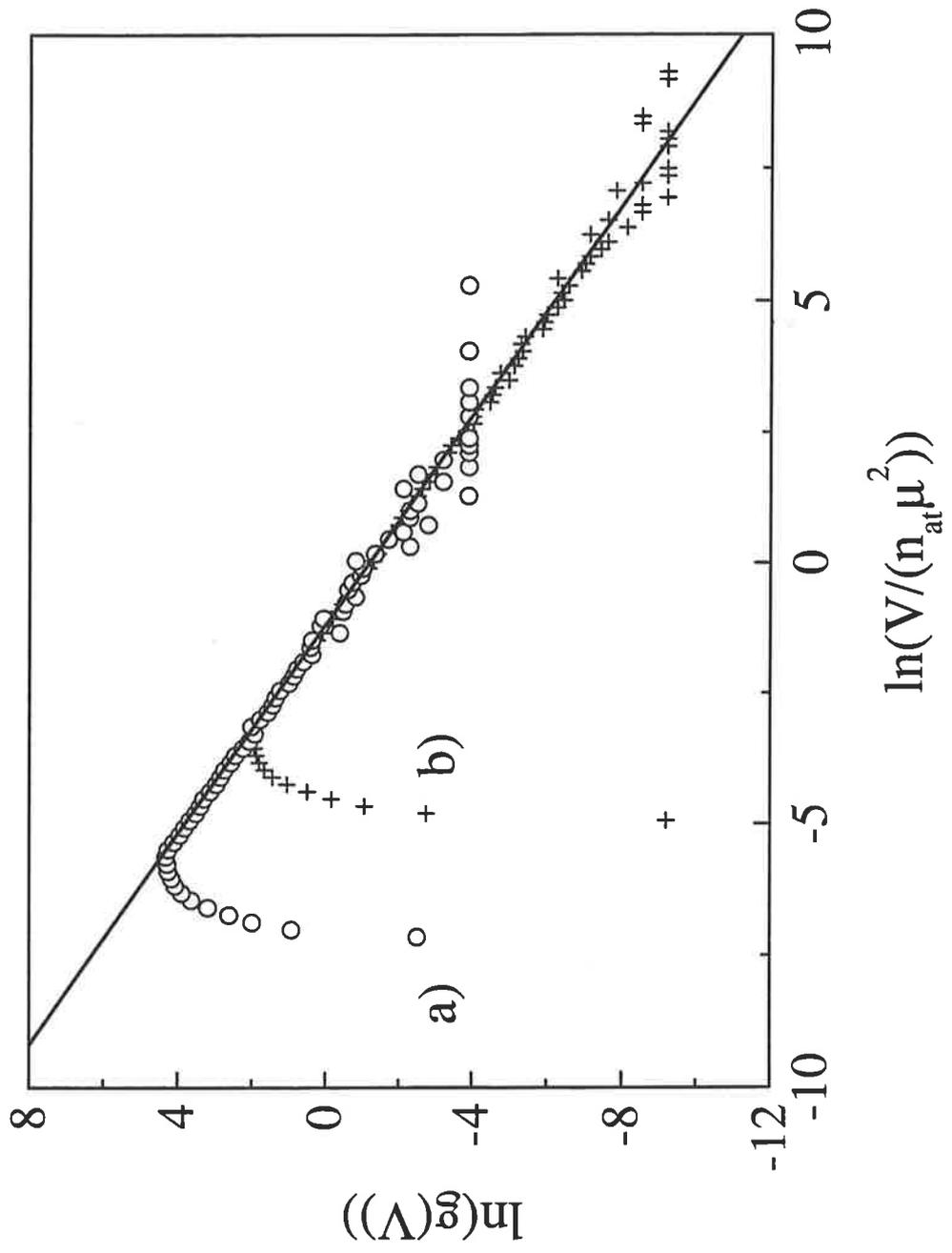


Fig. 8

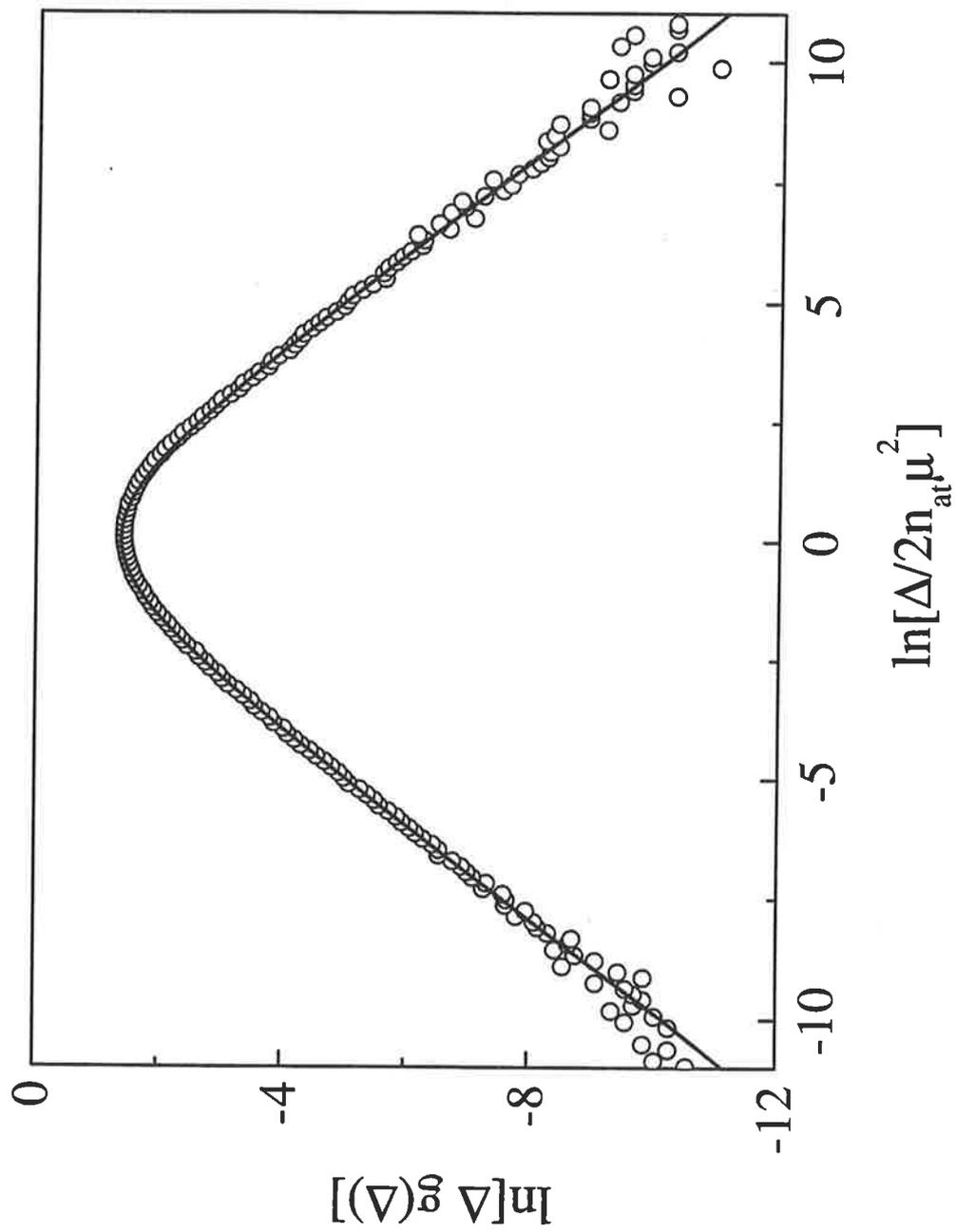


Fig. 9

Bibliographie

- [1] F. Bardou, O. Emile, J.-M. Courty, C. I. Westbrook, and A. Aspect. *Europhys. Lett.*, 20: 681, 1992.
- [2] K. Gibble and S. Chu. *Phys. Rev. Lett.*, 70: 1771, 1993.
- [3] M. H. Anderson, J. R. Ensher, M. R. Matthews, C. E. Wieman, and E. A. Cornell. *Science*, 269: 198, 1995.
- [4] C. C. Bradley, C. A. Sackett, J. J. Tollett, and R. G. Hulet. *Phys. Rev. Lett.*, 75: 1687, 1995.
- [5] C. C. Bradley, C. A. Sackett, and R. G. Hulet. *Phys. Rev. Lett.*, 78: 985, 1997.
- [6] H. R. Thorsheim, J. Weiner, and P. S. Julienne. *Phys. Rev. Lett.*, 58: 2420, 1987.
- [7] A. Fioretti, D. Comparat, A. Crubellier, O. Dulieu, F. Masnou-Seeuws, and P. Pillet. *Phys. Rev. Lett.*, 80: 4402, 1998.
- [8] K. A. Safinia, J. F. Deplech, F. Gounand, W. Sander, and T. F. Gallagher. *Phys. Rev. Lett.*, 47: 405, 1981.
- [9] T. F. Gallagher. *Rydberg Atoms*. Cambridge University Press, 1994.
- [10] T. F. Gallagher, K. A. Safinya, F. Gounand, J. F. Deplech, W. Sander, and R. Kachru. *Phys. Rev. A*, 25: 1905, 1982.

- [11] R. C. Stoneman, M. D. Adams, and T. F. Gallagher. *Phys. Rev. Lett.*, 58: 1324, 1987.
- [12] C. Monroe, W. Swann, H. Robinson, and C. Wieman. *Phys. Rev. Lett.*, 65: 1571, 1990.
- [13] S. D. Gensemer and P. L. Gould. *Phys. Rev. Lett.*, 80: 936, 1998.
- [14] A. M. Steane, M. Chowdhury, and C. J. Foot. *J. Opt. Soc. Am. B*, 9: 2142, 1992.
- [15] D. Sesko, T. Walker, C. Monroe, A. Gallagher, and C. Wieman. *Phys. Rev. Lett.*, 63: 961, 1989.
- [16] T. Walker, D. Sesko, and C. Wieman. *Phys. Rev. Lett.*, 64: 408, 1990.
- [17] M. Drewsen, Ph. Laurent, A. Nadir, G. Santarelli, A. Clairon, Y. Castin, D. Grison, and C. Salomon. *Appl. Phys. B*, 59: 283, 1994.
- [18] C. J. Cooper, G. Hillenbrand, J. Rink, C. G. Townsend, K. Zetie, and C. J. Foot. *Europhys. Lett.*, 28: 397, 1994.
- [19] W. Ketterle, K. B. Davis, M. A. Joffe, A. Martin, and D. E. Pritchard. *Phys. Rev. Lett.*, 70: 2253, 1993.
- [20] C. Cohen-Tannoudji, J. Dupont-Roc, and G. Grynberg. *Atom-Photon Interactions*. John Wiley and Sons, Inc., 1992.
- [21] T. W. Hänsch and A. Schawlow. *Opt. Commun.*, 13: 68, 1975.
- [22] D. Wineland and H. Dehmelt. *Bull. Am. Phys. Soc.*, 20: 637, 1975.
- [23] P. D. Lett, W. D. Phillips, S. L. Rolston, C. E. Tanner, R. N. Watts, and C. I. Westbrook. *J. Opt. Soc. Am. B*, 6: 2084, 1989.
- [24] D. Wineland and W. Itano. *Phys. Rev. A*, 20: 1521, 1979.

- [25] P. Lett, R. Watts, C. Westbrook, W. D. Phillips, P. Gould, and H. Metcalf. *Phys. Rev. Lett.*, 61: 169, 1988.
- [26] Y. Shevy, D. S. Weiss, P. J. Ungar, and S. Chu. *Phys. Rev. Lett.*, 62: 1118, 1989.
- [27] J. Dalibard, C. Salomon, A. Aspect, E. Arimondo, R. Kaiser, N. Vansteenkiste, and C. Cohen-Tannoudji. Proceedings of the 11th conference on atomic physics. page 199. World Scientific, Singapore, 1989.
- [28] S. Chu, D. S. Weiss, Y. Shevy, and P. J. Ungar. Proceedings of the 11th conference on atomic physics. page 636. World Scientific, Singapore, 1989.
- [29] D. S. Weiss, E. Riis, Y. Shevy, P. J. Ungar, and S. Chu. *J. Opt. Soc. Am. B*, 6: 2072, 1989.
- [30] J. Dalibard and C. Cohen-Tannoudji. *J. Opt. Soc. Am. B*, 6: 2023, 1989.
- [31] P. J. Ungar, D. S. Weiss, E. Riis, and S. Chu. *J. Opt. Soc. Am. B*, 6: 2058, 1989.
- [32] A. M. Steane and C. J. Foot. *Europhys. Lett.*, 14: 231, 1991.
- [33] A. Höpe, D. Haubrich, G. Müller, W. G. Kaenders, and D. Meschede. *Europhys. Lett.*, 22: 669, 1993.
- [34] P. Kohns, P. Buch, W. Süptitz, C. Csambal, and W. Ertmer. *Europhys. Lett.*, 22: 517, 1993.
- [35] K. Mølmer. *Phys. Rev. A*, 44: 5820, 1991.
- [36] T. Bergman, G. Erez, and H. J. Metcalf. *Phys. Rev. A*, 35: 1535, 1987.
- [37] R. W. Ditchburn and J. C. Gilmour. *Rev. Mod. Phys.*, 13: 310, 1941.
- [38] R. J. Rafac, C. E. Tanner, A. E. Livingston, K. W. Kukla, H. G. Berry, and C. A. Kurtz. *Phys. Rev. A*, 50: R1976, 1994.

- [39] M. H. Anderson, W. Petrich, J. R. Ensher, and E. A. Cornell. *Phys. Rev. A*, 50: R3597, 1994.
- [40] K. E. Gibble, S. Kasapi, and S. Chu. *Opt. Lett.*, 17: 526, 1991.
- [41] I. Serre. *Thèse de Doctorat*. Université Paris XI, Centre d'Orsay, 1996.
- [42] C. G. Townsend, N. H. Edwards, C. J. Cooper, K. P. Zetie, and C. J. Foot. *Phys. Rev. A*, 52: 1432, 1995.
- [43] D. Hoffman, P. Feng, and T. Walker. *J. Opt. Soc. Am. B*, 11: 712, 1994.
- [44] S. Grego, M. Colla, A. Fioretti, J. H. Müller, P. Verkerk, and E. Arimondo. *Opt. Commun.*, 132: 519, 1996.
- [45] D. W. Sesko, T. G. Walker, and C. E. Wieman. *J. Opt. Soc. Am. B*, 8: 946, 1991.
- [46] W. Petrich, M. H. Anderson, J. R. Ensher, and E. A. Cornell. *J. Opt. Soc. Am. B*, 11: 1332, 1994.
- [47] C. G. Townsend, N. H. Edwards, C. J. Cooper, K. P. Zetie, J. Rink, and C. J. Foot. *Phys. Rev. A*, 53: 1702, 1996.
- [48] A. Corney. *Atomic and Laser Spectroscopy*. Oxford University Press, 1977.
- [49] P. S. Julienne and F. H. Mies. *J. Opt. Soc. Am. B*, 6: 2257, 1989.
- [50] P. Goy, J. M. Raimond, G. Vitrant, and S. Haroche. *Phys. Rev. A*, 26: 2733, 1982.
- [51] R. F. Stebbings and F. B. Dunning, editors. *Rydberg states of atoms and molecules*. Cambridge University Press, 1983.
- [52] F. Gounand. *J. Phys. (Paris)*, 40: 457, 1979.
- [53] W. E. Cooke and T. F. Gallagher. *Phys. Rev. A*, 21: 588, 1980.
- [54] P. Nosbaum. *Thèse de Doctorat*. Université Paris XI, Centre d'Orsay, 1996.

- [55] T. W. Ducas, M. G. Littman, R. R. Freeman, and D. Kleppner. *Phys. Rev. Lett.*, 35: 366, 1975.
- [56] D. H. Tuan, S. Liberman, and J. Pinard. *Opt. Commun.*, 18: 533, 1976.
- [57] J. M. Raimond, G. Vitrant, and S. Haroche. *J. Phys. B*, 14: L655, 1981.
- [58] H. A. Bethe and E. E. Salpeter. *Quantum Mechanics of One and Two Electron Atoms*. Academic Press, New York, 1957.
- [59] G. V. Marr. *Photoionisation Processes in Gases*. Academic Press, New York, 1967.
- [60] P. Nosbaum, A. Bleton, L. Cabaret, J. Yu, T. F. Gallagher, and P. Pillet. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, 28: 1707, 1995.
- [61] C. Fabre. *Thèse de Doctorat d'Etat*. Université Pierre et Marie Curie, 1980.
- [62] D. S. Thomson, M. J. Renn, and T. F. Gallagher. *Phys. Rev. Lett.*, 65: 3273, 1990.
- [63] R. H. Dicke. *Phys. Rev.*, 93: 99, 1954.
- [64] I. Mourachko, D. Comparat, F. De Tomasi, A. Fioretti, P. Nosbaum, V. M. Akulin, and P. Pillet. *Phys. Rev. Lett.*, 80: 253, 1998.
- [65] W. R. Anderson, J. R. Veale, and T. F. Gallagher. *Phys. Rev. Lett.*, 80: 249, 1998.
- [66] V. M. Akulin, F. De Tomasi, I. Mourachko, and P. Pillet. *Physica D (to be published)*.
- [67] J. H. Eberly, N. B. Narozhny, and J. J. Sanchez-Mondragon. *Phys. Rev. Lett.*, 44: 1323, 1980.
- [68] I. Sh. Averbukh and N. F. Perelman. *Phys. Lett. A*, 139: 449, 1989.
- [69] I. Sh. Averbukh, M. J. J. Vrakking, D. M. Villeneuve, and A. Stolow. *Phys. Rev. Lett.*, 77: 3518, 1996.
- [70] L. Landau and E. Lifchitz. *Mécanique des fluides*. Editions Mir, 1971.

- [71] J. Bass. *Cours de mathématiques*, volume I. Maisson et C-ie, 1968.
- [72] M. Abramowitz and I. A. Stegun. *Handbook of Matematical Functions*. Dover, New York, 1972.
- [73] I. S. Gradshteyn and M. Yu Ryzhik. *Table of Integrals, Series and Products*. Academic Press, 1965.
- [74] A. Fioretti, D. Comparat, C. Drag, T. F. Gallagher, and P. Pillet. *Phys. Rev. Lett.* (to be published).
- [75] H-J Dietrich, K. Müller-Dethlefs, and L. Ya. Baranov. *Phys. Rev. Lett.*, 76: 3530, 1996, and references therein.
- [76] W. H. Wing. *Phys. Rev. Lett.*, 45: 631, 1980.
- [77] I. I. Sobel'man. *Introduction to the theory of atomic spectra*. Pergamon Press, 1972.
- [78] D. A. Varshalovich, A. N. Moskalev, and V. K. Khersonskii. *Quantum Theory of Angular Momentum*. World Scientific, 1988.

Igor MOURACHKO

"Contribution expérimentale et théorique à l'étude des effets à N corps dans un gaz de Rydberg gelé de césium"

Résumé. Cette thèse concerne l'étude des effets à N corps dans un gaz d'atomes de Rydberg froids de césium obtenu en utilisant un piège magnéto-optique. Le processus d'échange résonnant d'énergie interne régi par l'interaction dipôle-dipôle a été étudié expérimentalement dans des conditions où le gaz atomique peut être considéré comme figé: un gaz de Rydberg gelé. Les profils des résonances observées présentent des largeurs beaucoup plus grandes que celles qui correspondraient aux interactions dipôle-dipôle moyennes entre les atomes de Rydberg proches voisins, comme celles prévues par un modèle de gaz dilué où les collisions binaires prédominent. Le système mésoscopique d'atomes de Rydberg froids s'apparente davantage à un solide amorphe où les effets à N corps deviennent importants.

Un modèle phénoménologique de type réaction-diffusion a été développé en prenant en compte deux processus essentiels. Le premier concerne le transfert d'énergie entre deux atomes très proches conduisant à la création "d'excitations élémentaires": états de Rydberg atomiques différents des états initiaux. Le deuxième processus correspond à une interaction à N corps conduisant à la migration diffusive de ces "excitations" à travers le "bain" des autres atomes de Rydberg. Ce modèle explique les particularités d'échange d'énergie dans un gaz de Rydberg gelé: les fluctuations rares des paires d'atomes très proches sont à l'origine des largeurs des résonances observées tandis que la diffusion des états quantiques explique la dépendance des profils des résonances avec la densité.

Mots-clés:

Atomes froids	Piège magnéto-optique	Atomes de Rydberg
Interaction dipôle-dipôle	Diffusion d'excitation	Effets à N-corps
Systèmes mésoscopiques	Dynamique des systèmes complexes	

